
边缘位点在铂纳米催化剂析氢反应中占主导地位

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/27363.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

边缘位点在铂纳米催化剂析氢反应中占主导地位。

2024年5月22日，美国加州大学洛杉矶分校段镶锋教授、黄昱教授团队和加州理工学院William A. Goddard III教授团队在Nature Catalysis期刊上发表题为Edge sites dominate the hydrogen evolution reaction on platinum nanocatalysts的最新研究成果。

该研究结合自主研发的电子传输谱（ETS）表征手段和理论计算，对析氢反应过程中铂催化剂表面不同位点的氢吸附及其反应动力学进行研究，发现边缘位点对于析氢反应有更低的活化能，其转换频率相比于（100）和（111）晶面高出2-4个数量级。同时，该研究还发现碱性条件下边缘位点的氢吸附被大大抑制，这也从分子水平上解释了碱性析氢反应缓慢的动力学。

论文通讯作者是段镶锋教授、黄昱教授和William A. Goddard III教授，第一作者是黄志红，程涛和Aamir Hassan Shah。

铂催化剂被认为是最有效的析氢反应催化剂，通常铂催化剂表面会有多种氢吸附位点，这些不同的位点展现出不同的催化活性。因此，准确识别这些活性位点并理解其反应动力学对催化剂的设计和开发具有重要的指导意义。然而，析氢反应过程中催化剂表面氢的吸附行为一直缺乏有效的研究手段。其中最大的挑战来源于反应过程中产生的巨大的电化学反应和气泡，这些干扰因素让一些常规的表征手段束手无策。

为此，该团队利用电子传输谱，一种通过将材料表面分子吸附行为转变为可监测的材料导电性变化的表征手段，实现对析氢反应过程中铂表面不同位点氢吸附电位和覆盖率的表征。通过对不同电位下铂纳米线导电性变化的监测，他们解析出常规的欠电位吸附氢（Hupd）和一种新发现的过电位吸附氢（Hopd）。其中过电位吸附氢的吸附电位在0.038VRHE，这和析氢反应的起始电位刚好一致，因此过电位吸附氢和析氢反应的动力学息息相关。

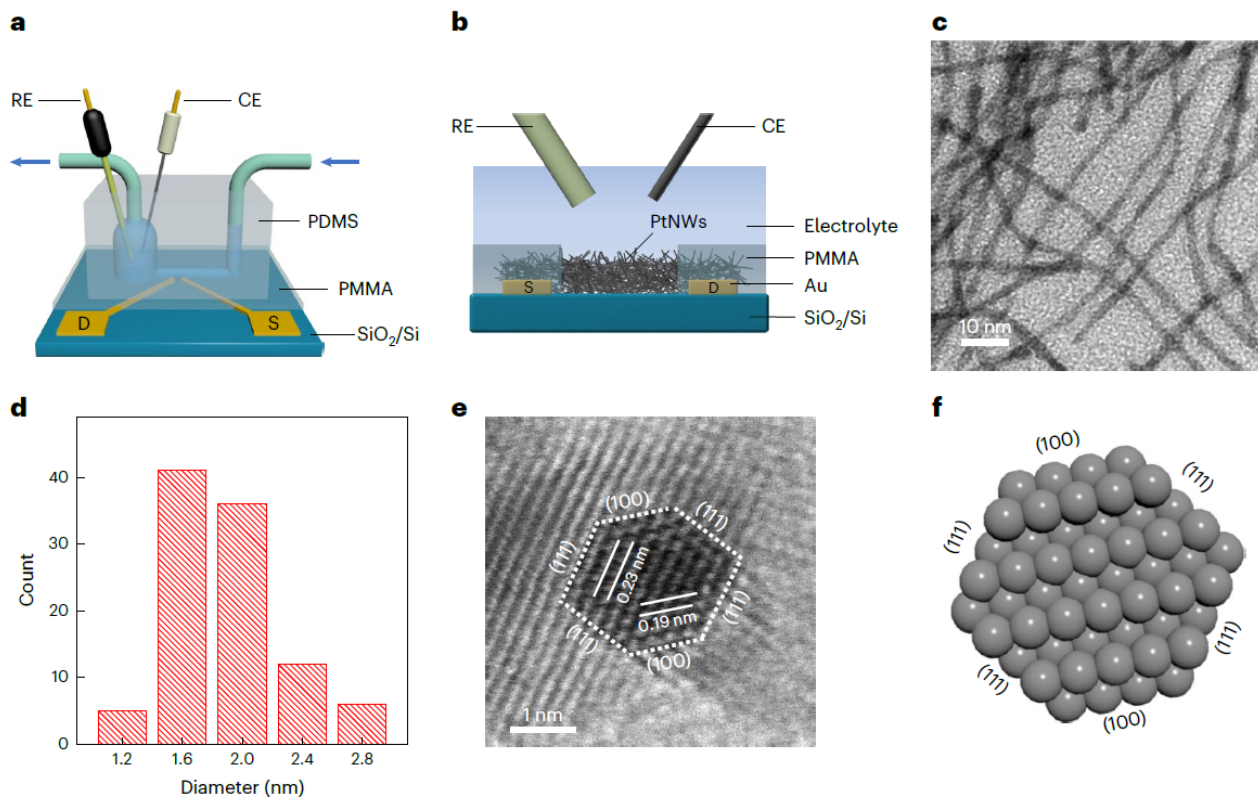


图1：电子传输谱的实验装置以及所研究的铂纳米线的表征。

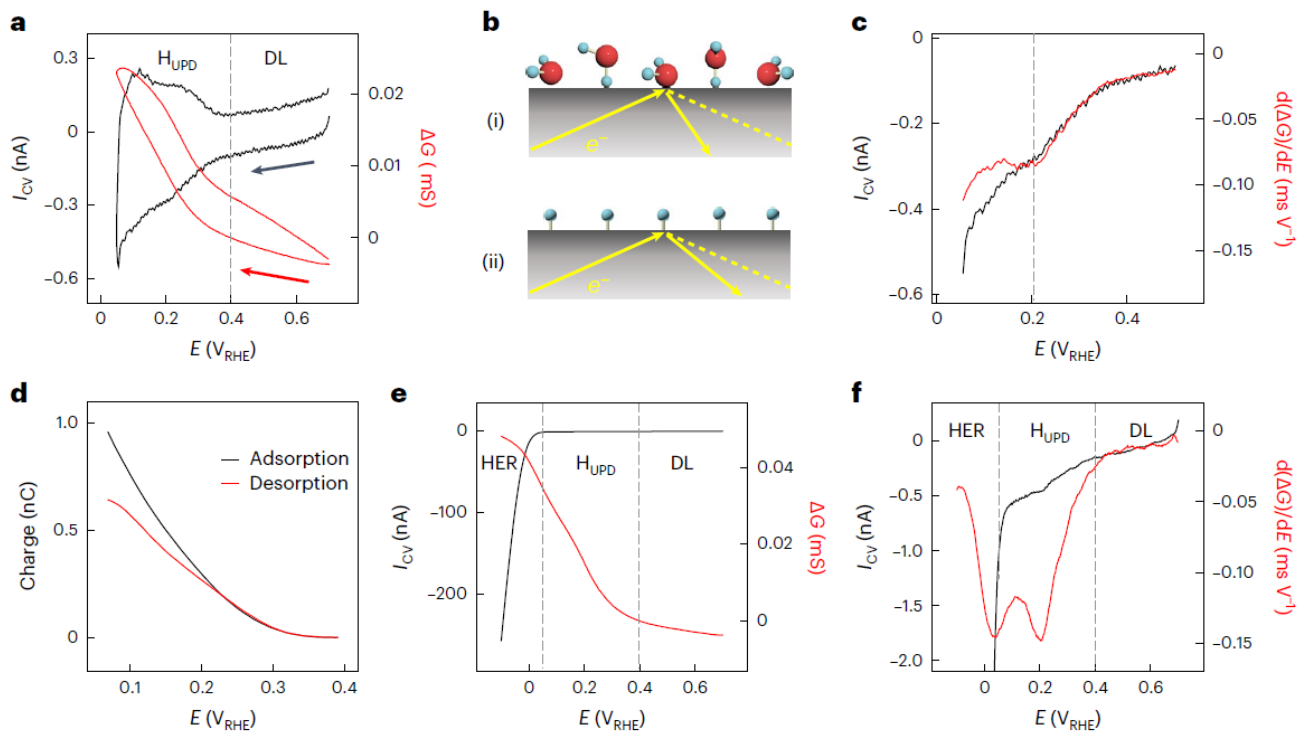


图2：原位电子传输谱对铂纳米线表面氢吸附的研究。

理论计算表明，过电位吸附氢是吸附在边缘位点的氢，而欠电位吸附氢是吸附在(100)和(111)晶面上的氢。进一步的动力学研究表明，边缘位点上吸附的氢对于析氢反应有更低的活化能，其转换频率相比于(100)和(111)晶面高出了2-4个数量级。因此，边缘位点是析氢反应主要的活性位点，其贡献了反应过程中主要的电化学电流。这为催化剂的设计提供了重要的指导思路，即，通过材料的结构设计，提高材料表面边缘位点的比例，有助于合成更高效的析氢催化剂。

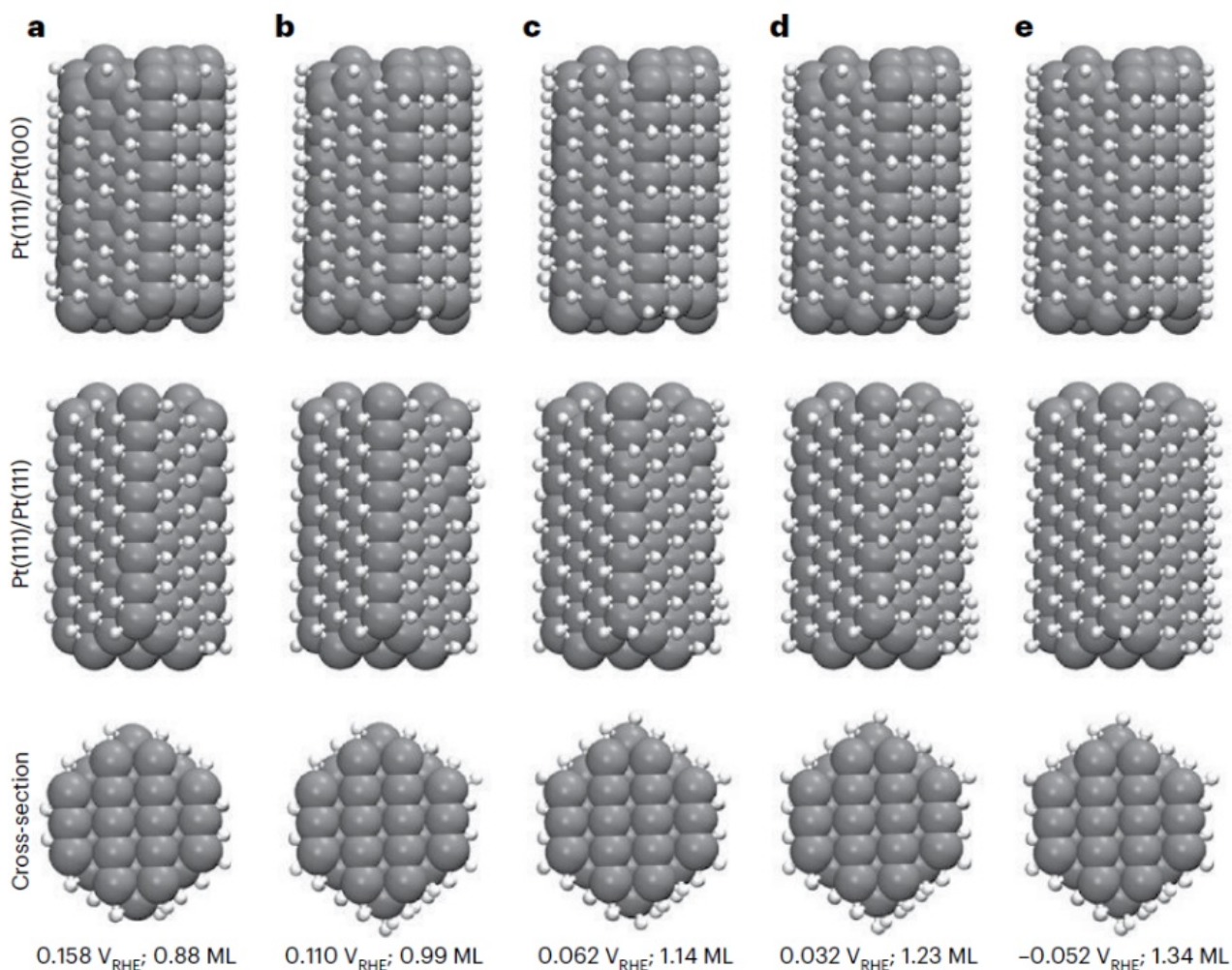


图3：理论模拟不同电位下铂纳米线表面不同位点的氢覆盖率变化。

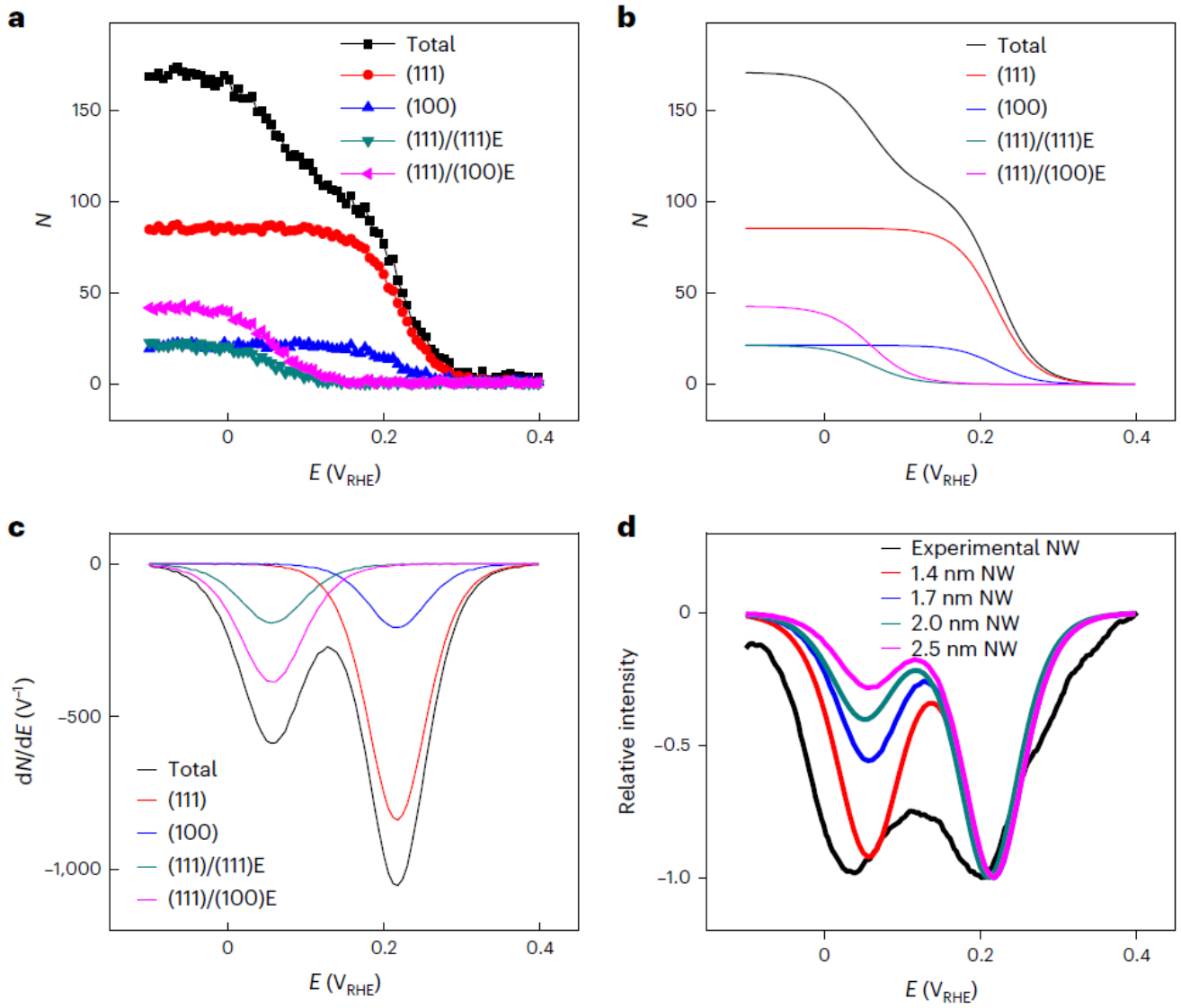


图4：理论模拟出不同位点氢吸附电位及覆盖率。

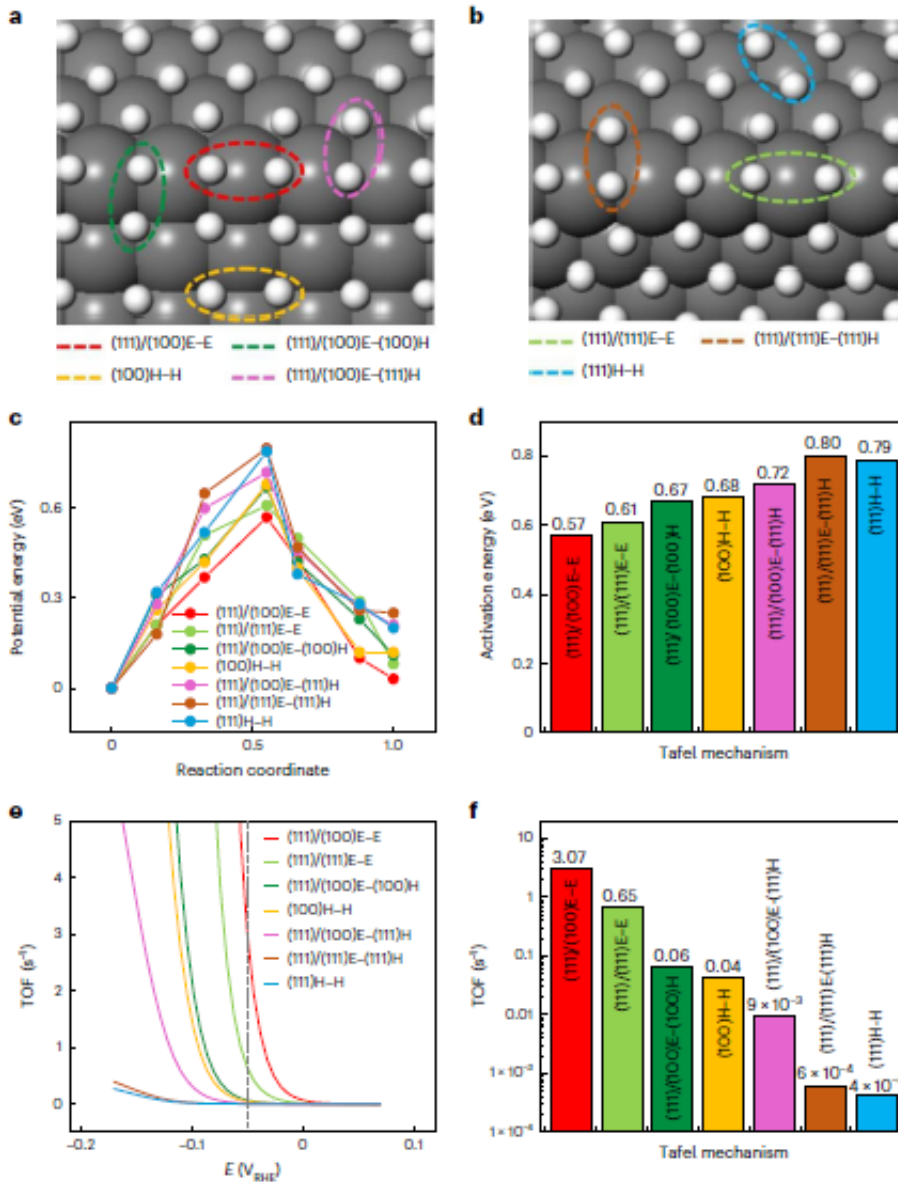


图5：不同位点上析氢反应动力学研究。

同时，该团队还研究了碱性条件下铂表面氢吸附行为。研究表明，碱性条件下，边缘位点氢的吸附被大大抑制，这也解释了碱性条件下铂表面缓慢的析氢动力学。酸性条件和碱性条件下铂表面析氢活性的巨大差异一直是催化领域难解的一个问题，该研究也从分子水平上揭露了这个活性差异的根源。

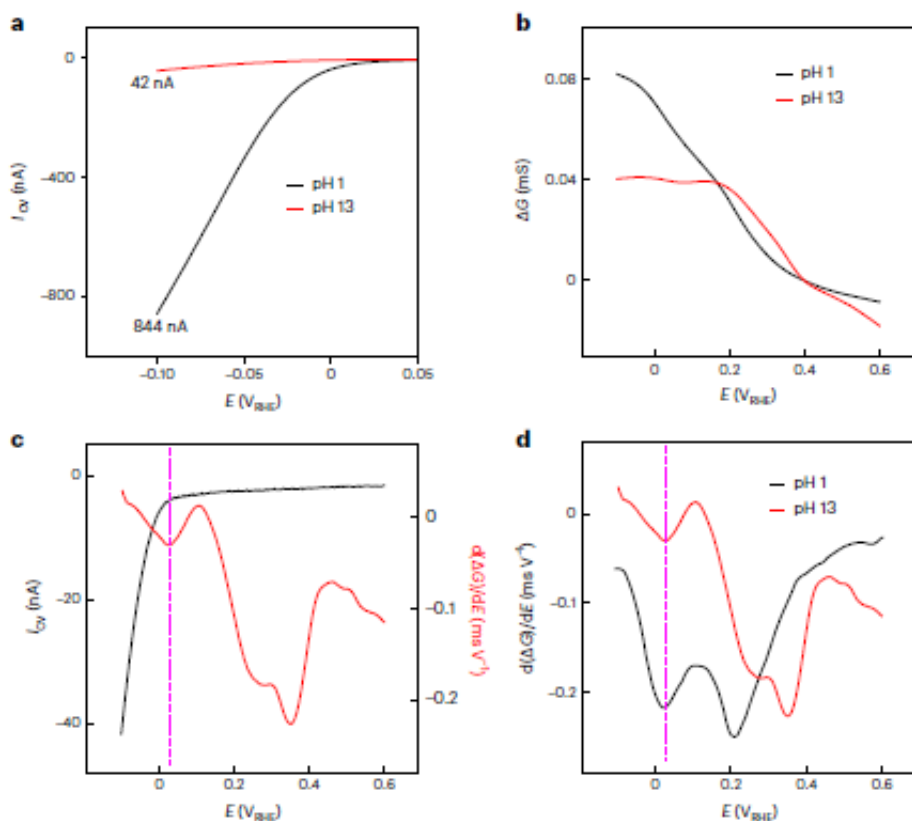


图6：酸性条件和碱性条件下铂表面氢吸附行为对比。

总之，研究者通过实验表征和理论计算解析出铂表面不同位点的氢吸附及其析氢动力学，并发现边缘位点的氢对催化剂的析氢活性起到主导作用。这不仅完善了析氢反应的基础理论，建立了材料结构和活性之间的关系。同时也对更高效催化剂的开发起到指导作用。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41929-024-01156-x>

作者：段镶锋等 来源：《自然-催化》

更多科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发