大连化物所等提出通过次表面La缺陷活化钙钛矿晶格氧实现甲烷高效转化

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/28136.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！

近日，中国科学院大连化学物理研究所催化与新材料研究中心研究员王晓东、副研究员黄传德团队，联合西北大学教授朱燕燕、大连理工大学副教授蒋博等，在钙钛矿催化甲烷高效选择性氧化研究方面取得进展。

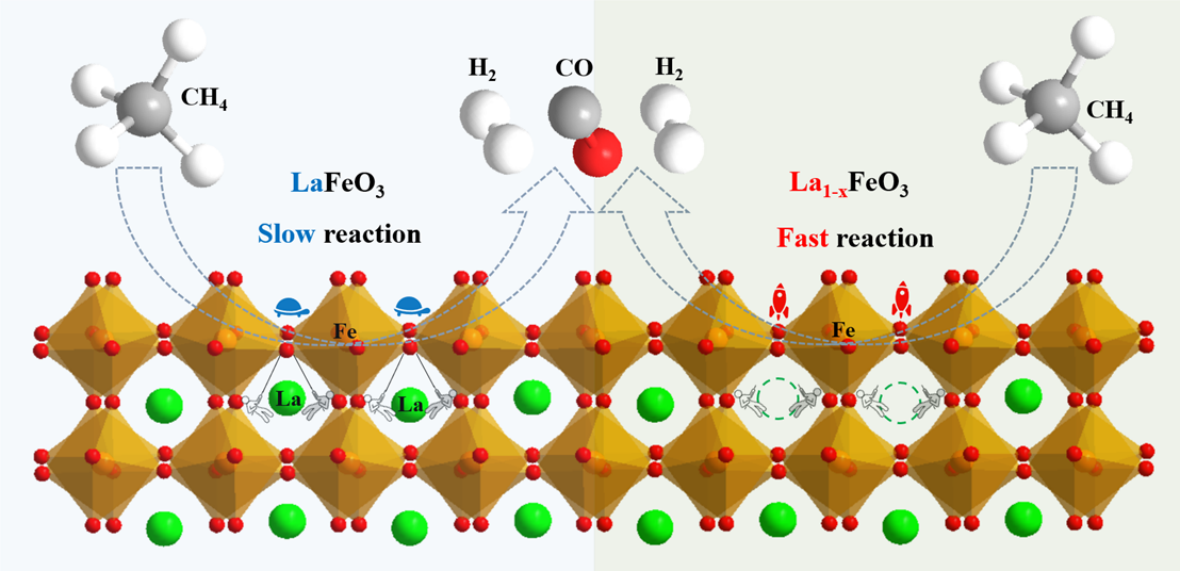
金属氧化物的晶格氧活性在遵循Mars-van Krevelen机制的催化反应中具有重要作用。调控晶格氧活性，有望克服氧化还原反应中活性和选择性之间的“跷跷板效应”。钙钛矿氧化物具有优良的结构稳定性、氧化还原活性以及灵活可调的晶体结构，在氧化还原反应中得到关注。相比化学惰性的A位原子，科研人员普遍将钙钛矿结构优异的氧活性归功于B位过渡金属，而认为A位原子的作用有限，仅能通过改变晶体结构或调整B位原子价态等间接方式来调节氧活性，忽视A位原子在直接调控氧活性方面的潜在作用。这导致对于氧活性的激活机制理解有限，难以实现对氧活性的精准调控。

该研究发现降低La/Fe比（$La_{0.97}FeO_3$）或经氧化还原处理表面重构的$LaFeO_3$均可产生次表面La（$La_{sub.}$）缺陷。实验和理论研究表明，次表面$La_{sub.}$-O相互作用的缺失可以降低表面氧的电子密度，提高氧迁移率，使CH_4活化能垒从1.88eV降低至1.03eV，从而提高甲烷制合成气的性能，使合成气产率提高2.7至2.9倍，并保持较高的合成气选择性。

与传统观点不同，该工作强调了A位原子在直接调节氧活性方面的重要性，为氧化还原催化剂设计提供了新思路。

相关研究成果以*Subsurface A-site vacancy activates lattice oxygen in perovskite ferrites for methane anaerobic oxidation to syngas*为题，发表在《自然-通讯》（*Nature Communications*）上。研究工作得到国家自然科学基金“单原子催化”基础科学中心项目、中国科学院相关项目的支持。

论文链接



大连化物所等提出通过次表面La缺陷活化钙钛矿晶格氧实现甲烷高效转化

研究团队单位：大连化学物理研究所

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转发