
科学家提出单原子和团簇协同光催化的新机制

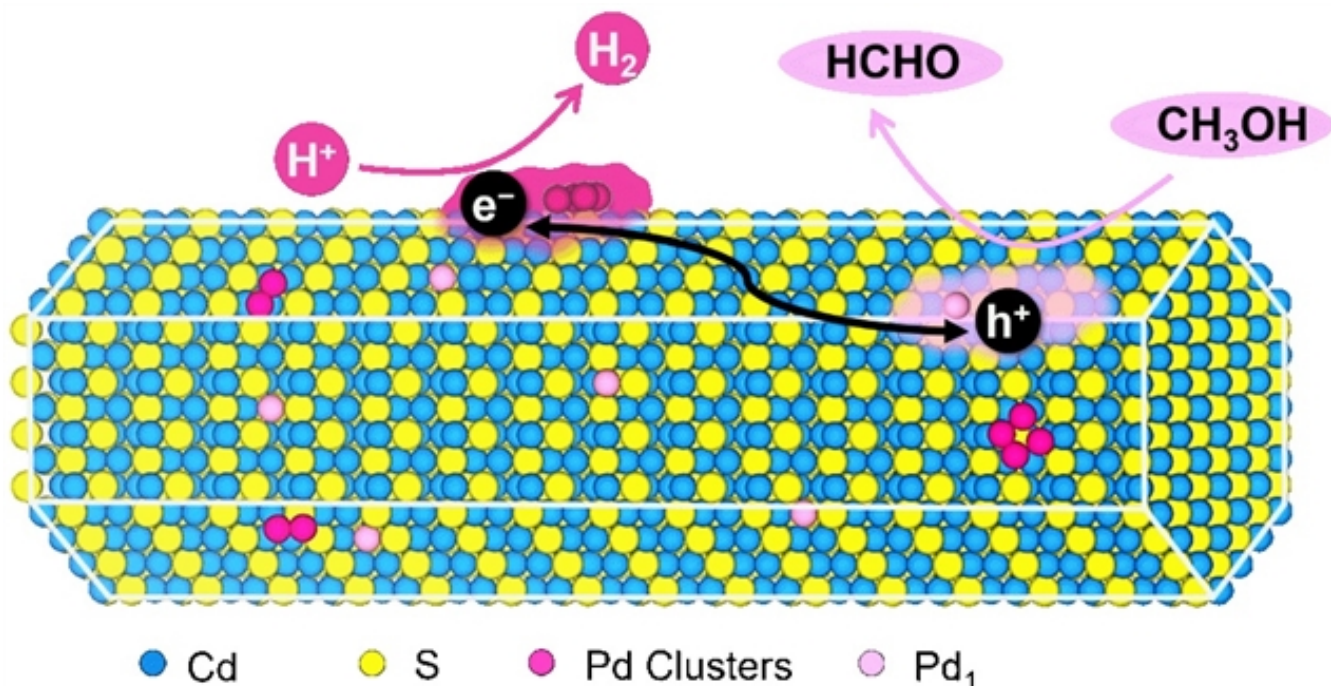
作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/29295.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！

科学家提出单原子和团簇协同光催化的新机制。近日，中国科学院大连化学物理研究所生物能源研究部生物能源化学品研究组（DNL0603组）王峰研究员、罗能超副研究员团队和意大利的里雅斯特大学Paolo Fornasiero教授合作，在光催化甲醇无氧脱氢方面取得新进展。团队通过离子交换和光沉积先后将Pd单原子和Pd团簇引入光催化剂表面，两者作为空穴和电子的聚集位点，分别参与氧化和还原半反应，最终实现甲醇脱氢联产氢气和甲醛。

自单原子催化概念被提出以来，许多研究结果发现，在催化反应中单原子可能与团簇存在协同催化的作用。热催化中较为常见的协同催化为单原子与团簇协同完成一个催化反应过程，或单原子和团簇作为不同反应的催化位点，其中可以存在催化位点间的活性物种迁移，例如活性氢物种的迁移。而在光催化或电催化反应中，协同催化的表现形式大多为团簇、载体和单原子三者之间存在电子转移的相互作用，从而影响催化位点上底物或中间物种的吸附，最终实现反应速率的提升或选择性调控。另外，还存在两类特殊的协同作用：一是单原子合金上单位点金属中心与周围第二种金属之间的协同效应；二是团簇与单原子掺杂产生的催化剂上的氧空位间的协同效应。上述金属单原子与团簇间协同效应的特点是由于热催化中氧化还原反应的反应条件不相容，电催化中氧化还原反应在空间上分离，因此两者只能参与氧化反应，或参与还原反应。光催化剂上负载的金属单原子和团簇有可能同时影响氧化和还原半反应。然而，迄今为止报道的光催化中的协同效应基本限于上述电子转移的形式。



本工作提出了单原子与团簇之间的一种新型协同效应：两者作为空穴和电子的聚集位点，分别参与氧化和还原半反应。在光催化甲醇脱氢反应中，通过离子交换法制备的Pd单原子可以捕获光生空穴，而通过光沉积制备的Pd团簇可以捕获光生电子。在促进光生电荷分离的同时，Pd单原子和团簇分别催化甲醇C-H键断裂和析氢反应，氢气和甲醛的量子产率均达到 $87 \pm 1\%$ (452nm)。这种协同催化效应在金属负载的半导体光催化剂中可能更为普遍。本工作研究结果也表明，在考虑提高催化活性时，研究相同负载金属元素的不同分散状态具有重要意义，以及精确构建金属单原子和团簇这两种催化位点是研究协同催化的基础。本工作分别通过离子交换和光沉积将Pd单原子和团簇独立可控地负载在CdS上，并用同样的制备方法获得了三种对比催化剂。对比这些催化剂，光催化甲醇脱氢的活性可以更好地用来研究Pd单原子和团簇的催化作用。此外，两种金属物种的数量可以独立优化，金属元素的类别可以改变，这意味着可以根据不同反应的需要选择合适的负载金属元素作为氧化和还原位点。

相关工作以Photocatalytic Methanol Dehydrogenation Promoted Synergistically by Atomically Dispersed Pd and Clustered Pd为题，发表在《美国化学会志》(Journal of the American Chemical Society)上。该工作的第一作者是DNL0603组博士后高著衍和的里雅斯特大学Tiziano Montini副教授。(来源：中国科学院大连化学物理研究所)

相关论文信息：<https://pubs.acs.org/doi/full/10.1021/jacs.4c06573>

特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性；如其他媒体、网站或个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“来源”，并自负版权等法律责任；作者如果不希望被转载或者联系转载稿费事宜，请与我们联系。

作者：王峰等 来源：《美国化学会志》

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](http://www.iikx.com)转发