

科研人员构建出氮化碳负载铜原子簇催化剂

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/32724.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！

科研人员构建出氮化碳负载铜原子簇催化剂。

在催化科学领域，单原子催化剂因独特的催化潜力而备受关注。但是，单原子催化剂的本征质量活性受限，制约其实际应用。

中国科学院青岛生物能源与过程研究所与兰州化学物理研究所合作，基于少原子团簇催化剂精准可控的结构与金属聚集效应等优势，通过原子级活性位点的设计与多原子协同作用的调控，构建出氮化碳负载铜原子簇催化剂（ Cu_3/CN ）。这一催化剂在苯选择氧化制苯酚反应中展现出优异的催化性能。

研究结合原位/

非原位表面分析，明确铜位点吸附氧物种（ $\text{Cu}=\text{O}^*$ ）在C-H键活化中的作用。密度泛函理论

计算发现，相较于孤立的 Cu_1 位点， Cu_3 原子簇的d

带中心位置更高，且与 H_2O_2

分子间存在更强的电荷转移作用。这

种电荷转移效应促使 H_2O_2 分子中O-O键拉伸，促进 $\text{Cu}=\text{O}^*$ 活性物种形成。

更重要的是， Cu_3 位点中的 $\text{Cu}=\text{O}^*$ 在费米能级附近呈现O 2p轨道与Cu

3d

轨道杂化特征，赋

予其优异的苯分子活化能力。进一步

，理论计算显示， Cu_3

原子簇特有的组装效应是实现高性能催化的关键所在。研究建立的构效关系阐释了原子簇结构优化催化功能的微观机制，为精准设计高性能氧化催化剂提供了理论依据。

研究探讨了 Cu_3

原子团簇催化剂在

苯选择氧化制苯酚反应中的聚集效应

：在优化条件下， Cu_3

/CN催化剂的苯转化率为76.2%，苯酚选择性为96.1%，优于已有成果。研究揭示了活性位点原子核数对反应速率的影响：

随着Cu原子数目增加，反应速度控制步骤由 H_2O_2 的活化转变为C-H参与的O插入

，体现出活性位点结构对催化

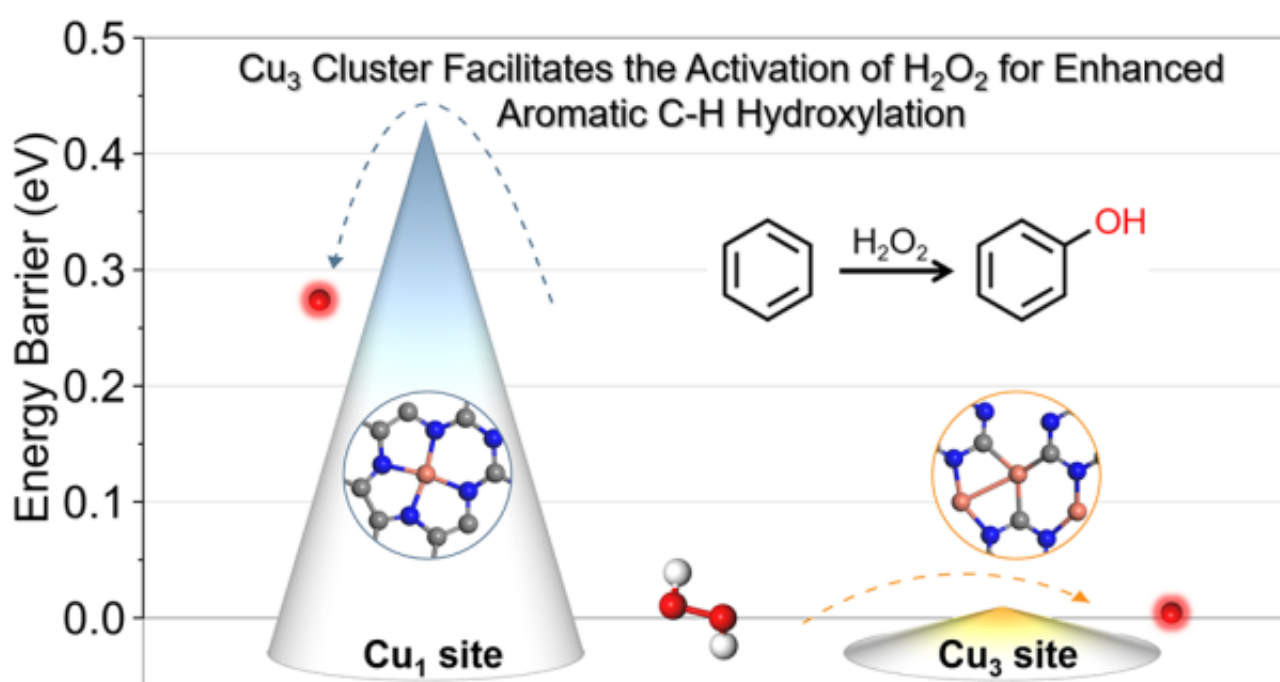
性能的重要影响。研究通过构筑 Cu_3 团簇改善电荷转移： Cu_3

团簇的构建提高了Cu位点的d带中心，加速其与吸附 H_2O_2 之间的电荷转移，利于 $\text{Cu}=\text{O}^*$ 关键氧化物种形成。同时， $\text{Cu}=\text{O}^*$ 中的 O^* 2p轨道和Cu的3d轨道在费米能级附近明显杂化，利于 $\text{C}_6\text{H}_6\text{O}^*$ 中间体形成。

上述研究确立了催化活性位点结构与催化性能之间的关联，揭示了原子簇结构在优化催化性能方面所发挥的关键作用，为亚纳米尺度非贵金属催化剂的设计提供了基础见解，并针对碳氢化合物氧化反应的高效催化剂设计建立了通用的合成范例。

相关研究成果发表在《美国化学会志》（JACS）上。研究工作得到国家自然科学基金等的支持。

[论文链接](#)



Cu_3 团簇优化 H_2O_2 活化促进苯选择氧化制苯酚

研究团队单位：青岛生物能源与过程研究所

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

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