催化剂结构演变与反应进程的“多米诺效应”被揭示

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/33706.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，中国科学院院士、大连化学物理研究所研究员张涛与副研究员杨冰团队，联合上海高等研究院研究员朱倍恩，在动态金属催化研究与设计方面取得进展。该团队通过原位解析不同尺寸的Pd/FeO_x催化剂在CO_2
加氢过程中的动态演变行为，揭示了催化剂结构演变与反应进程之间的“多米诺效应”，为催化剂的高效设计提供了新思路。

在多相催化领域中，动态碳化作为常见的催化剂重构过程，其关键调控因素的识别对催化剂性能优化至关重要。然而，在实际反应进程中，反应环境、反应中间体与催化剂结构演变之间存在错综复杂的耦合作用，对原位解析高活性结构、实现催化剂的理性设计提出了挑战。

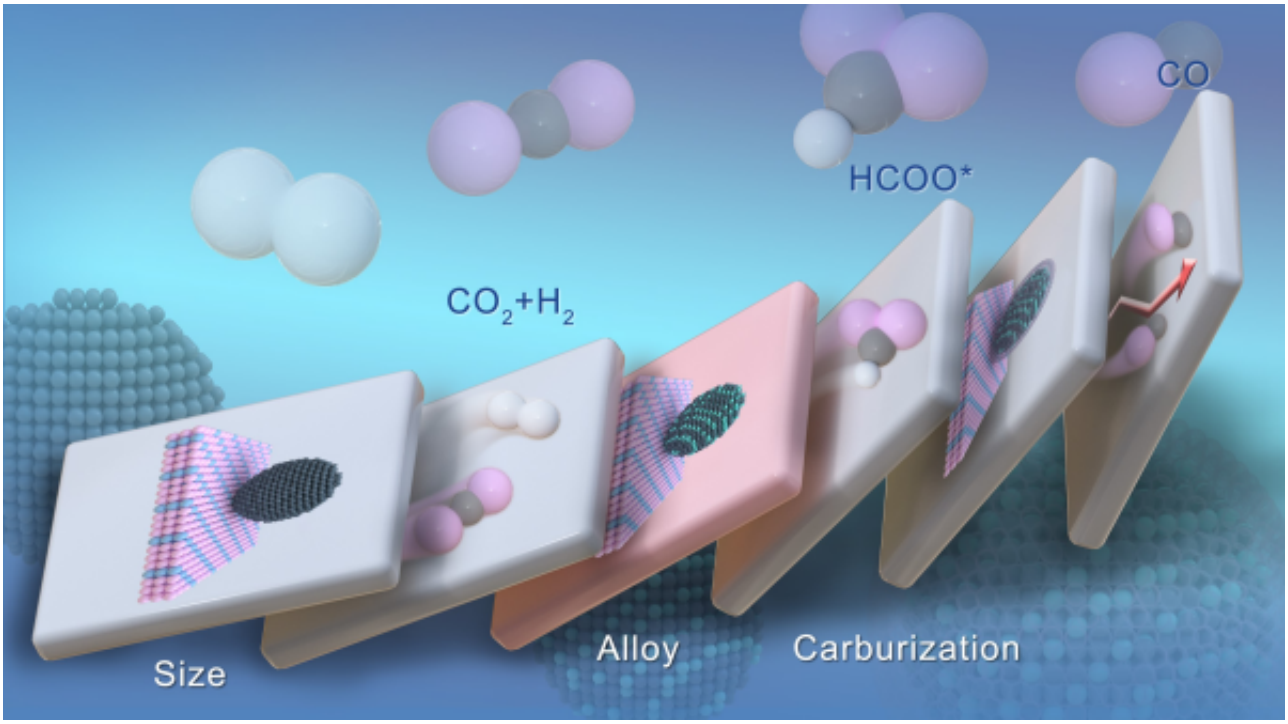
该团队发现，大颗粒$5Pd-FeO_x$催化剂在反应初期受H_2
主导，促进金属载体合金化产生Pd_3
Fe合金
。该合金表面
进一步促进HCOO*反应中间
体，导致快速表面碳化，形成高活性$Pd_3Fe@Fe_5C_2/Fe_3O_4$
结构，展现出优异的逆
水汽变换反应活性。相比之下，小尺寸$0.5Pd-FeO_x$催化剂由于强金属载体相互作用，使FeO_x
包覆层抑制Fe的还原
和碳化过程，导致相对较低的反应活性。
而$0.05Pd-FeO_x$
单原子催化剂由于金属载体电子相互作用，
促进CO_2
直接解离，并在CO诱导下产生缓慢体相碳化，经过20小时诱导期，可将CO生成速率从27 mmol $g_{cat}^{-1}h^{-1}$提升至42 mmol $g_{cat}^{-1}h^{-1}$。

上述研究揭示了催化剂动态结构演化的复杂性及其与反应进程、反应网络之间的交互耦合机制，阐明了金属粒径→反应气→界面重构→反应中间体→动态碳化→反应产物的链式“多米诺效应”。团队解耦这一复杂动态过程发现，相比于尺寸效应和金属-载体相互作用，合金化过程才是加速催化剂碳化进而提高反应活性的关键因素。基于这一认识，团队进一步设计出高活性、短诱导期的低载量$0.5Pd_3Fe/FeO_x$

合金催化剂，提升了反应性能
及贵金属利用率，实现了高性能CO_2
加氢反应中催化剂的高效设计。同时，该研究强调了原位解耦催化剂复杂动态演变的重要性，为发展原位结构解析驱动的催化剂理性设计提供了范例。

相关研究成果发表在《美国化学会志》（*JACS*
）上。研究工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金、中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划等的支持。

论文链接



催化剂结构演变与反应进程的“ 多米诺效应 ”被揭示

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