大连化物所等在单原子催化研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/6618.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！

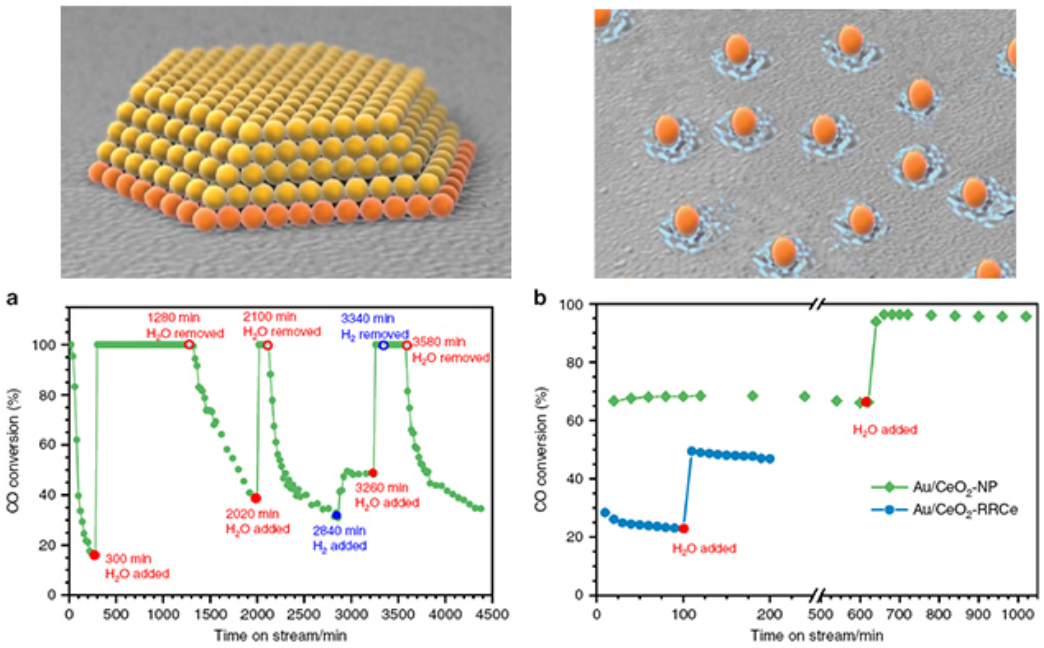
大连化物所等在单原子催化研究中取得进展。近日，中国科学院大连化学物理研究所催化与新材料研究中心研究员乔波涛、中科院院士张涛团队与清华大学教授李隽、亚利桑那州立大学教授刘景月合作，在单原子催化研究方面取得新进展，发现在CO氧化反应中水对单原子催化剂和纳米催化剂呈现出显著不同的促进作用。详细研究结果揭示，由于单原子催化剂独特的微环境和电子性质，使有水条件下CO氧化反应按照新的高效路线进行。相关成果发表于《自然-通讯》(Nat. Commun.)上。

近年来，人们发现很多多相催化反应的活性位在纳米粒子和载体界面处，其特点是界面原子直接与载体接触并形成相互作用。单原子催化剂中所有金属原子均与载体接触，因而很可能具有与界面原子类似的催化性能，从而实现界面原子的最大化，这一理念在该团队前期研究工作中得到证实(Angew. Chem. Int. Ed.，2018)。但是由于可能存在的量子效应和集团效应，单原子位点与纳米界面是否具有完全一致的催化性能仍有待研究。

可还原氧化物负载金催化剂上CO氧化是典型的界面催化反应之一。该研究发现，对于Au1/CeO2单原子催化剂上的CO氧化反应，少量水的加入能大幅度提高反应活性，反应速率可提升两个数量级;而在Au/CeO2纳米颗粒催化剂上，水促进作用较弱，反应速率提升不超过3倍。DFT计算结合原位红外表征发现，在不加水条件下，单原子与纳米颗粒催化剂均遵循氧化还原(Redox)机理，但是载体表面的羟基会抑制单原子催化剂的晶格氧反应活性;而当反应体系中引入水，单原子催化剂上的CO氧化可以按照CO+OH的反应途径高效进行，活性远高于Redox反应途径。而纳米催化剂界面处有无水的存在均以Redox机理为主，因此水的存在对催化反应性能影响较小。进一步DFT计算分析发现，单原子和界面位点上水的不同影响主要源于其不同的微环境结构与电子性质：单原子催化剂中Au原子全部与载体O原子相连，因而具有更高化学价(δ+)，并且在反应过程中可变价，因此可以开辟新的反应途径(CO+OH);而在纳米催化界面处，Au原子除与载体作用外，还与其它Au原子相连，使其电荷被平均化，因而以近零价存在，并且在反应过程中不能发生化合价变化，因此反应不能按照新的途径进行。

该研究结果不仅对深入理解单原子催化位与纳米催化界面位的催化性能有借鉴作用，同时为设计合成高性能的CO氧化催化剂提供理论依据。

该工作得到国家自然科学基金委、中科院战略性先导科技专项和国家重点研发计划“纳米科技”重点专项等的资助。



大连化物所等在单原子催化研究中取得进展

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