

中国科大等发现氢气在氧化物表面活化的新模式

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/6872.html>

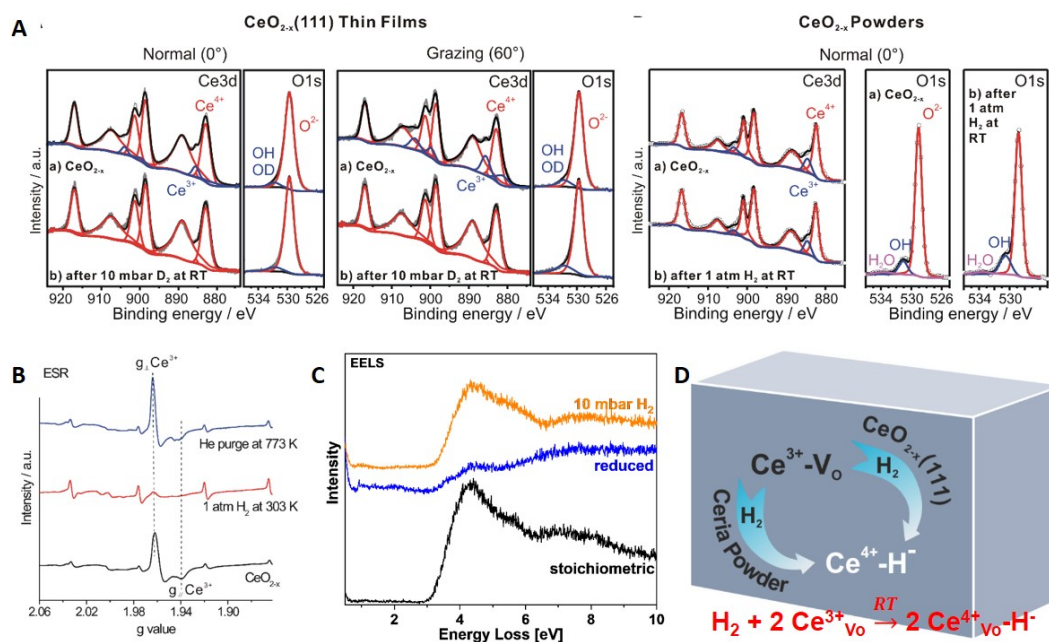
本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

中国科大等发现氢气在氧化物表面活化的新模式。中国科学技术大学化学与材料科学学院教授黄伟新与德国马普学会Fritz-Haber研究所教授Hans-Joachim Freund合作，在H₂与氧化物相互作用体系研究中取得新进展，发现了H₂在具有氧缺陷的二氧化铈(CeO_{2-x})表面发生均裂生成H·，同时氧化CeO_{2-x}的新活化模式。研究结果“Oxidation of Reduced Ceria by Incorporation of Hydrogen”以全文形式在线发表在《德国应用化学》(Angew. Chem. Int. Ed. DOI: 10.1002/anie.201907117)。

H₂与氧化物(MO_x)相互作用广泛存在于多相催化反应体系。已有研究结果表明了H₂在氧化物表面吸附活化存在异裂生成质子(OH)和M-H-的模式(H₂+ M_{2x++} O₂₋ → O₂-H₊₊ M_{2x+-}H-)和均裂生成质子并还原氧化物的模式(H₂+ M_{2x++} 2O₂₋ → 2O₂-H₊₊ 2M(2x-1)+)。在本工作中，黄伟新与Hans-Joachim Freund利用多种谱学表征技术，合作研究了H₂在具有氧缺陷的CeO_{2-x}粉末和CeO_{2-x}(111)单晶薄膜表面的吸附。X-射线光电子能谱(图A)、电子顺磁共振(图B)和电子能量损失谱(图C)的表征结果均观察到常温H₂的吸附显著降低CeO_{2-x}样品中Ce³⁺的含量。这些结果表明常温H₂在CeO_{2-x}表面吸附能够导致CeO_{2-x}的氧化，从而揭示了H₂在CeO_{2-x}氧缺陷位均裂生成Ce⁴⁺-H·并氧化氧化物(H₂+ 2M(2x-1)+Vo → 2M(2x)+Vo-H-)的全新模式(图D)，并且生成的H·物种易于从CeO_{2-x}表面扩散至体相。该模式的发现加深了对氧化物催化剂活化H₂以及氧化物催化剂体系氢物种的基础理解。

黄伟新在氧化物体系氢物种及其反应性能研究方向开展了系统研究，建立了“氧缺陷控制氧化物表面羟基反应性能”概念(Surf. Sci. 600 (2006) 793; J. Phys. Chem. B 109 (2005) 9202; J. Am. Chem. Soc. 131 (2009) 16366; J. Phys. Chem. C 111 (2007) 2198/115 (2011) 6815/115 (2011) 14290/116 (2012) 11921/117 (2013) 5800/120 (2016) 9845/120 (2016) 26968/122 (2018) 22530; PCCP 15 (2013) 12068; Chem. Eur. J. 21 (2015) 4252)，制备了氧化物表面H·物种并研究其反应行为(PCCP 16 (2014) 7051; Chin. Chem. Lett. 29 (2018) 752)，明确了氧化物光催化分解水制氢的活性氢物种(J. Phys. Chem. C 116 (2012) 11921/Sci. China Chem. 62 (2019) 199)，受邀在Encyclopedia of Interfacial Chemistry: Surface Science and Electrochemistry(ISBN: 9780128097397, Ed. Klaus Wandelt, Vol. 3, Elsevier B.V., 2018, pp 666-672)撰写“Surface Oxygen Vacancy-Controlled Reactivity of Hydroxyl Groups on Transitional Metal Oxide Surfaces”条目。此次H₂在氧化物氧缺陷位均裂生成M-H-活化模式的发现将为该研究方向提供新的思路。

黄伟新与Hans-Joachim Freund为论文共同通讯作者，中国科大博士研究生李兆瑞、德国马普学会Fritz-Haber研究所博士研究生Kristin Werner和中国科大特任副研究员乾坤为论文共同第一作者。研究得到科技部国家重大科学研究计划、国家自然科学基金委员会和教育部长江特聘教授项目的资助。



中国科大等发现氢气在氧化物表面活化的新模式

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](https://www.iikx.com)转发