中国科大在高活性高稳定性单原子催化剂设计方面取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/6970.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！

中国科大在高活性高稳定性单原子催化剂设计方面取得进展。负载型金属催化剂广泛应用于多种工业催化反应中。单原子催化剂因其高金属原子利用率和新奇的催化特性，近些年引发科研工作者们的热烈关注。然而伴随着尺寸减小带来的表面自由能的升高，很容易导致单原子催化剂的稳定性降低，容易发生团聚，进而使得催化剂失活。为解决这一难题，中国科学技术大学教授路军岭课题组与教授韦世强、副教授张文华合作，通过利用金属-载体之间的电子相互作用(Electronic metal-support interactions, EMSIs)，调控金属单原子的d轨道能级，设计出了高活性和高稳定性的单原子催化剂。研究成果以Highly Active and Stable Metal Single-Atom Catalysts Achieved by Strong Electronic Metal – Support Interactions 为题，发表在国际期刊《美国化学会志》上(J. Am. Chem. Soc. 2019, 141, 37,
14515-14519)，并被选为当期封面，论文的共同第一作者是博士研究生李俊杰、关桥桥和吴红。

在该工作中，研究人员首先利用ALD在Co3O4、CeO2、ZrO2以及石墨烯四种不同的载体上制备出Pt单原子催化剂。随后结合X-射线吸收谱(XAFS)、光电子能谱(XPS)、漫反射红外CO吸收谱(DRIFTS)对四种单原子催化剂进行电子结构表征，发现Pt1/Co3O4中的Pt单原子具有更大程度的未占据5d电子轨道状态，这表明Pt单原子和Co3O4之间存在强EMSIs (图2a-d)。

在氨硼烷水解制氢反应中，作者发现EMSIs对其活性和稳定性有着重要影响。发现Pt1/Co3O4单原子催化剂表现出来的活性和稳定性均远高于其他三个Pt单原子催化剂(图2
e,f)。张文华课题组通过密度泛函理论对Pt 5d轨道进行了密度态分析，发现Pt1/Co3O4中Pt的5d电子轨道状态得到了调制，使得氨硼烷分子在Pt单原子上的吸附适中，而且对氢气的吸附大大弱化，进而促进了其催化活性的提高。这种通过EMSIs同时提升催化剂活性和稳定性的思路，同样可以推广至Pd1/Co3O4单原子催化剂以及其他催化反应中，例如加氢反应。因此，该工作为人们提出了一种新的制备高活性、高稳定单原子催化剂的普适方法。

该项研究得到国家自然科学基金、中央高校基础研究基金、中科院合肥科学中心优秀项目和Max-Planck合作伙伴小组的资助。

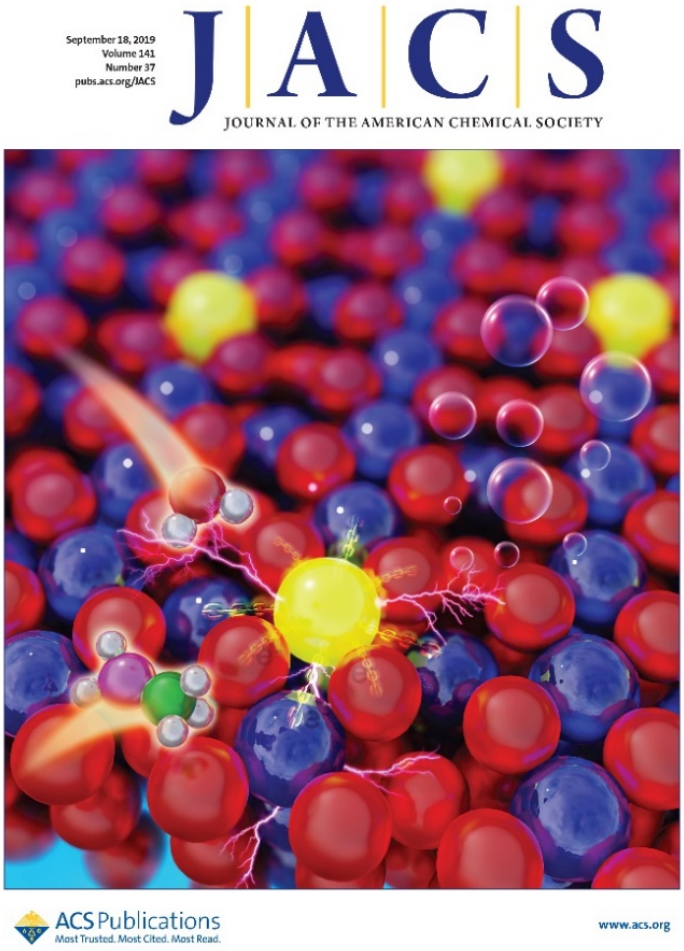


图1 被当选的杂志封面图

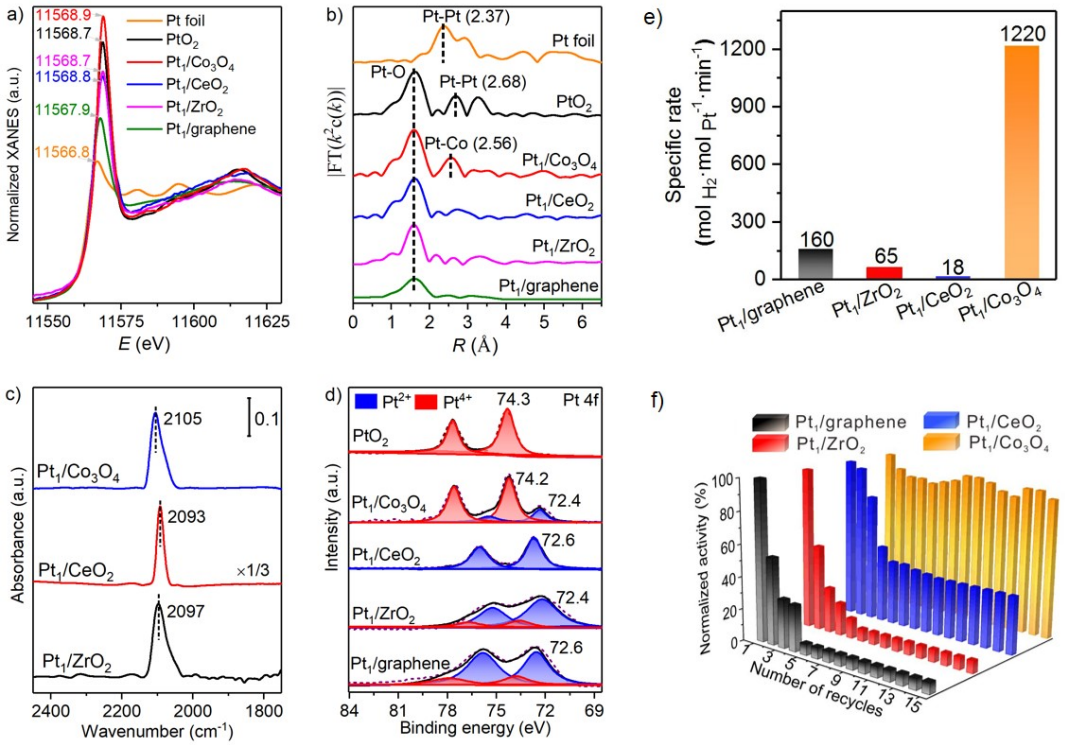


图2.Co3O4、CeO2、ZrO2以及石墨烯担载的Pt单原子结构表征和催化性能。(a) XANE; (b) EXAFS; (c) DRIFTS CO; (d) XPS. (e)氨硼烷水解制氢活性和(f)循环稳定性。

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