利用原位同步辐射发现单原子近自由催化动力学行为

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/8508.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！

利用原位同步辐射发现单原子近自由催化动力学行为。在能源催化领域中，精确探测催化剂在服役状态下原子尺度结构的动态变化过程对于催化剂的理性设计具有重要意义。

近几十年，科学家对纳米尺度材料的深入理解和可控构筑极大地促进了催化科学的基础和应用研究的发展。其中，单原子催化剂由于其高的原子利用效率、优异的反应活性和选择性，成为了近年来能源催化领域的明星材料。单原子催化剂的活性和选择性高度取决于其金属原子的局域原子和电子结构，及其与载体间的相互作用。然而，单原子催化剂在实际反应状态下，受到温度、电场、光照等外界环境激发，会发生结构演变的响应，因此，原位实时在线表征这种特殊的结构响应行为对于理解单原子催化的本质并发现新的催化现象具有重要的启发意义。同步辐射X射线吸收谱是描绘催化中心局域空间和电子结构最强有力的工具之一，能在实际催化环境中实现固、液、气态样品的原位探测。因此，高亮度和高灵敏的先进同步辐射光源为研究这一亟待突破的问题提供了契机。

近日，中国科学技术大学教授姚涛课题组发展原位同步辐射吸收谱学技术，发现铂(Pt)单原子催化剂在电催化还原反应中的近自由演变的动力学行为，这种动力学演变极大促进了Pt单原子催化剂在广泛pH电解液中的析氢性能。相关研究成果以Uncovering near-free platinum single-atom dynamics duringelectrochemical hydrogen evolution reaction为题，发表在《自然-通讯》上(Nature Communications 11, 1029 (2020))。论文的第一作者是中国科大硕士生方师。

研究团队发展同步辐射原位X射线吸收谱学技术，选取活性位点高度均一的Pt单原子催化剂作为模型催化剂，实时监测Pt单原子位点在电还原工作状态下的演变过程。观察到在一定还原电压下，Pt原子和载体上C/N原子的配位减少，Pt价态降低，Pt的电子结构接近自由单原子。理论计算表明，经过这种动态演变，Pt原子的d带结构得到优化，促进了Pt单原子活性位点对水分子的吸附，并有利于氢中间体的吸附和脱附，从而使得该催化剂在广泛pH的电解液中都具有优异的析氢性能。这项研究成功地利用原位X射线谱学技术精确表征了Pt1/N-C单原子催化剂的三维原子和电子结构，还发现了在电催化还原的工作状态中一种普适的近自由单原子动态演变，为今后能源催化剂的结构设计和调控提供了新的思路。

该研究受到国家自然科学基金委、中科院青年创新促进会专项资金、科技部重点研发计划等的资助。(来源：中国科学技术大学)

相关论文信息：https://doi.org/10.1038/s41467-020-14848-2

作者：姚涛等 来源：《自然—通讯》

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