

化学所提出研究贵金属单原子催化机理新方法

文章来源：化学研究所

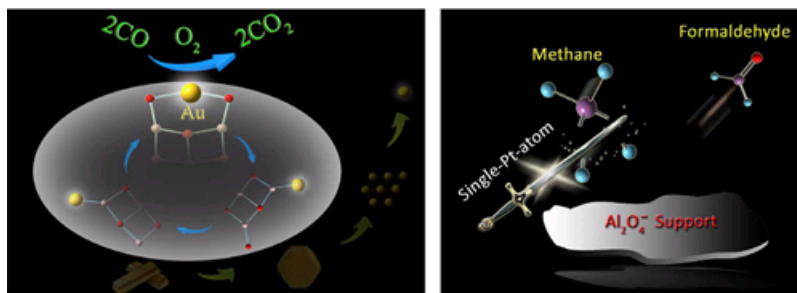
发布时间：2014-10-29

【字号：小 中 大】

贵金属表现出优良的催化反应性，将其以单个原子的状态分布在载体表面，形成的单原子催化剂能够最大效率地利用贵金属，也为控制催化反应的活性和选择性提供新途径。研究贵金属单原子催化反应中的基元步骤，认识贵金属催化的机理和本质，对理性设计催化反应具有重要的意义。然而，在单原子分辨水平上研究催化过程具有很强的技术挑战性。

最近，在国家自然科学基金委、科技部和中国科学院的支持下，中科院化学研究所分子动态与稳态结构实验室的研究人员尝试将单个贵金属原子负载到有限数目原子形成的团簇上，使用高分辨率质谱技术，在单一原子量分辨水平上测量团簇单原子催化剂的反应性，取得了系列研究进展。

氧化物是一类重要的催化剂载体材料，研究人员前期系统研究了氧化物载体团簇的结构与性质，对活性氧的成键及其反应性调控有了深入认识 (*Acc. Chem. Res.* 2012, 45, 382; *J. Am. Chem. Soc.* 2013, 135, 2991; *Angew. Chem. Int. Ed.* 2013, 52, 2444)。研究人员发现，将单个金原子负载到廉价金属氧化物团簇上，金可以高效俘获一氧化碳分子并将其传送到团簇载体上进行氧化，金通过氧化价态的极性反转有效存储反应中释放的电子，因而极大地提高了体系的反应活性 (*J. Am. Chem. Soc.* 2014, 136, 3617; *J. Phys. Chem. Lett.* 2014, 5, 1585)。进一步，在团簇体系中引入活性氧物种，结合同位素取代实验，研究人员明确观测到了单个金原子的催化反应性 (*J. Am. Chem. Soc.* 2014, 136, 14307)，机理研究表明，金原子依次与氧和金属成键来释放和存储电子，进而驱动催化反应的循环 (图一左)。研究人员还发现团簇负载的单个铂原子能够有效活化特别稳定的甲烷分子 (*Angew. Chem. Int. Ed.* 2014, 53, 9482)，在室温下将其转化为甲醛 (图一右)。这些工作为认识贵金属单原子催化的机理提供了新方法和新思路。



原子团簇负载的 (左) Au原子催化氧化CO (右) Pt原子室温活化转化CH₄

打印本页

关闭本页