中国科大团队通过调控局域反应环境实现高效析氢

来源：科研部 发布时间：2022-04-27 浏览次数：124

近日，中国科学技术大学国家同步辐射实验室闫文盛教授研究组与孙治湖副研究员合作，提出了通过调控催化剂的反应环境来优化催化剂催化性能的技术策略。在实验上，将此策略应用到了负载于MgO纳米片上的Pt纳米颗粒催化剂，突破了其在碱性溶液中，析氢反应（HER）活性低的内在缺陷。相关研究成果以“Engineering a local acid-like environment in alkaline medium for efficient hydrogen evolution reaction”为题发表在国际著名学术期刊《自然-通讯》上（Nat. Commun. 2022, doi.org/10.1038/s41467-022-29710-w）。

电化学以其低反应活化能、高反应速率和高能量效率的特点在能源的转化与存储中发挥着重要作用。目前为止，大部分研究工作主要是通过各种方法改善催化剂本征活性来提高电极反应效率，例如，调控晶面、外来原子掺杂、创建双活性位点、工程缺陷和应变等。事实上，催化剂周围的局部反应环境在电极反应过程中也起着至关重要的作用（通常被忽略）。因此，通过固-液界面之间的多种物理化学作用来调节局部反应环境，将是提高电催化性能和设计高效电催化剂的一种新途径。

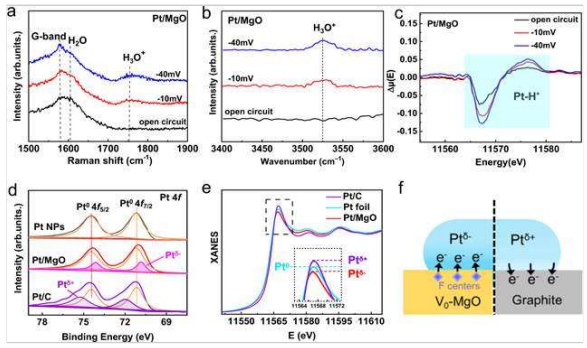

图1.原位多谱学解析局域类酸性环境形成的微观机制。（a）原位Raman谱图，(b)原位SR-FTIR谱图，（c）原位ΔXANES谱图，(d) Pt 4f XPS谱图, (e) Pt L_3-edge XANES谱图, (f) Pt纳米粒子和载体（V_O-MgO和石墨）之间电子转移示意图。

基于此，该研究团队以Mg-MOF为前驱体，利用两步浸渍-热解的方法合成了负载在V_O-MgO纳米片上的$Pt^{\delta-}$纳米颗粒催化剂，并将其用于碱性介质中的析氢反应。电化学测试表明Pt/MgO催化剂具有优异的HER活性，在电流密度为10 mA cm^{-2}时，过电位只有39 mV，显著低于20 wt% Pt/C的过电位（62 mV）。利用原位拉曼光谱、同步辐射红外光谱和X射线吸收光谱表明该催化剂能够在碱性介质中产生局部的酸性环境（图1），并获得了与Pt/C在酸性介质中相当的析氢反应(HER)性能。结合理论计算，提出了Pt/MgO催化剂在碱性介质中显示出优异HER性质的微观机制：首先，V_O-MgO有利于水的离解和负价$Pt^{\delta-}$物种的形成。然后，由于静电相互作用，H_3O^+会向$Pt^{\delta-}$附近迁移并聚集，从而在碱性介质中形成局部类酸性反应环境（图2）。这种局部酸性环境为铂在碱性电解质中提供了良好的反应条件，从而实现了高效HER活性。

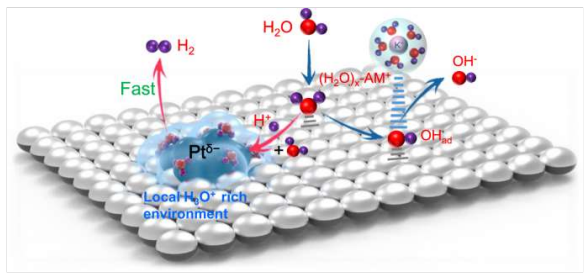

图2.反应机理示意图。

这项工作得到了国家重点研发计划、国家自然科学基金、中央高校基本科研业务费专项资金、中国科学院合肥大科学中心等项目的支持，也得到了合肥国家同步辐射实验室、上海和北京同步辐射装置测试机时的支持。

论文链接:https://doi.org/10.1038/s41467-022-29710-w

(国家同步辐射实验室、核科学技术学院、科研部)

中国科学技术大学 University of Science and Technology of China 科研部
Copyright 2009-2020 中国科学技术大学科研部 All Rights Reserved.
电话: 0551-63601954 传真: 0551-63601795 E-mail: ustckjc@ustc.edu.cn
办公地址：安徽省合肥市包河区金寨路96号中国科大东区老图书馆三楼 邮编: 230026
微信公众号
事业单位