



新闻动态

科技新闻

通知公告

支部活动

学习园地

信息公开

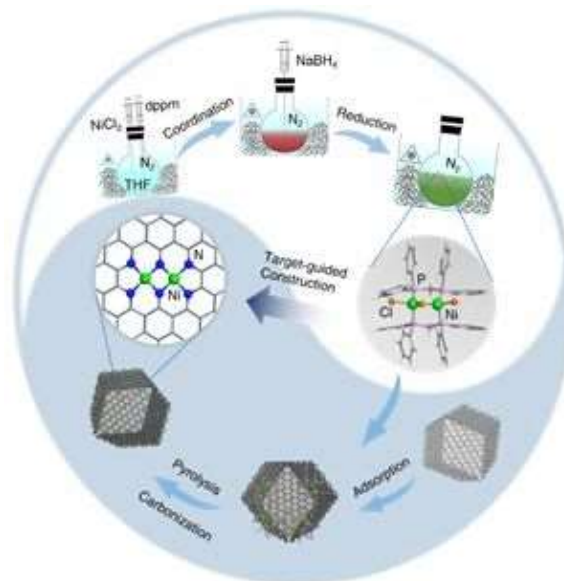
科技新闻

当前位置: 首页 | 新闻动态 | 科技新闻

中国科大在原子级催化剂设计与同步辐射表征中取得新进展

来源: 科研部 发布时间: 2021-08-07 浏览次数: 179

近年来, 双原子位点催化剂因其独特的原子和电子特性, 在一些复杂的多电子催化反应中具有明显的优势。发展原子级精确的双核位点多相催化剂不仅可以实现高效的催化活性, 更有助于从原子尺度上深入理解催化反应中的协同作用机制, 具有重要的科学意义和应用前景。然而, 制备原子级精确的负载型双核位点催化剂仍然是一项巨大的挑战。同时, 双核位点结构的精准鉴别, 以及它们在真实催化反应条件下的原子和电子结构的动态演变过程仍然模糊不清, 阻碍了对催化反应机理的认识。

图1. 碳基Ni₂双原子催化剂的合成示意图。

针对上述关键科学问题, 中国科大国家同步辐射实验室姚涛教授课题组与安徽大学朱满洲教授、南京师范大学李亚飞教授合作, 以理性设计的Ni₂(dppm)₂Cl₃ (dppm = Ph₂PCH₂PPh₂) 金属团簇为前驱体, 金属有机框架材料 (MOFs) 衍生的氮掺杂多孔碳为载体, 成功实现了结构明确的碳基Ni₂双核位点催化剂的精准构筑。发展原位同步辐射吸收谱和红外光谱技术, 并结合理论计算, 揭示了上述双核位点催化剂在电化学CO₂还原反应条件下催化活性位点的动态结构变化过程, 该动力学结构演变极大提升了材料的催化反应性能。相关研究成果以“Atomic-precise dinuclear site active toward electrocatalytic CO₂ reduction”为题, 发表于《美国化学会志》杂志 (J. Am. Chem. Soc. 2021, 143, 11317-11324)。论文的共同第一作者是中国科大特任副研究员丁韬、博士后刘满康和安徽大学研究生陶枝南。

原位同步辐射X射线吸收精细结构谱技术清晰地揭示了Ni₂位点在电催化CO₂还原反应中原子和电子结构的动态演变。结果表明, 初始的Ni₂-N₆结构吸附电催化环境中的含氧官能团, 从而形成O-Ni₂-N₆结构, 同时在反应过程中伴随着Ni原子间距缩短和相互作用增强。理论计算表明, 经过动态演变形成的关键O-Ni₂-N₆结构会显著降低CO₂分子活化的能垒, 使得双核Ni₂催化剂表现出优异的电催化CO₂还原制CO性能。这项研究不仅提供了双核位点催化剂的精准制备方法, 还从精确的原子水平上理解了双核位点的结构演变和催化机制, 为设计和调控高性能的双原子甚至多原子催化剂提供了理论和实验基础。

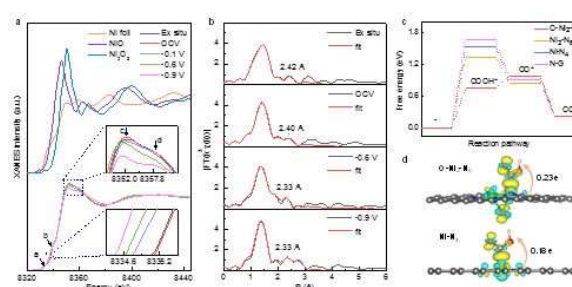


图2. 原位同步辐射表征和理论计算。

该研究得到了国家杰出青年基金、科技部重点研发计划、中科院青年创新促进会专项资金等项目的资助, 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://pubs.acs.org/doi/10.1021/jacs.1c05754>

(国家同步辐射实验室、科研部)

