

[Article]

www.whxb.pku.edu.cn

促进型 PtMoSi/C 催化剂的制备、表征及电催化活性

蔡育芬 刘军民 廖世军*

(华南理工大学化学科学学院, 广州 510641)

摘要: 采用甲醛还原、 H_2 还原、肼还原三种方法制备了添加硅钼酸的 PtMoSi/C 阳极催化剂, 并用 XRD、XPS 和 TEM 技术对催化剂进行了表征. XRD 表明 Pt 粒子呈立方面心晶态结构, TEM 显示 PtMoSi/C 催化剂粒径小(3-4 nm), 分布窄, 分散性好. XPS 分析可知 Pt 主要以 0 价, Mo 主要以 6 价, Si 主要以 4 价形态存在于催化剂中. 同时通过循环伏安法和线性扫描法考察了制备方法和添加硅钼酸对催化剂电催化活性的影响. 结果表明, 甲醛还原法制备的 PtMoSi/C 催化剂(Pt、Mo 的原子比为 3:1)对甲醇氧化的电催化性能和抗中毒性能优于自制的 PtRu/C 和 E-TEK PtRu/C 催化剂, 可能是因为添加硅钼酸可以使活性组分的分散度提高, 从而提高了催化剂的活性和抗毒性能.

关键词: 硅钼酸; 直接醇类燃料电池; 催化剂

中图分类号: O643.36

Preparation, Characterization and Electrocatalytic Properties of Promoted PtMoSi/C Catalysts

CAI Yu-Fen LIU Jun-Min LIAO Shi-Jun*

(College of Chemistry, South China University of Technology, Guangzhou 510641, P. R. China)

Abstract: PtMoSi/C nanocatalysts were prepared by chemical reduction using formaldehyde, H_2 , and hydrazine as reducing agents, respectively. The nanocompositions were characterized by X-ray diffraction (XRD), X-ray photoelectron spectroscopy (XPS), and transmission electron microscopy (TEM). XRD patterns showed a face-centered cubic crystal structure, and TEM images indicated that the nanoparticles that were uniformly dispersed on carbon were 3-4 nm in diameter. XPS analysis revealed that the catalysts contained mostly Pt(0), Mo(VI), and Si(IV). The effects of preparation methods and additives on the catalytic activity were then studied by linear sweep voltammetry (LSV) and cyclic voltammetry (CV). It was found that the PtMoSi/C nanocatalysts ($n_{Pt}:n_{Mo}=3:1$ was the optimal ratio of Pt to Mo) prepared using formaldehyde as reducing agent showed higher electrocatalytic activity and better tolerance to poisoning species in methanol oxidation compared with the homemade PtRu/C and the commercial E-TEK PtRu/C catalysts, and this could be ascribed to the high dispersion of Pt nanoparticles on the carbon by the addition of silicomolybdic acid.

Key Words: Silicomolybdic acid hydrate; Direct methanol fuel cells; Catalyst

直接甲醇燃料电池(DMFC)被广泛认为是一种有可能大规模应用于交通、通讯、军事和其他移动用途的燃料电池^[1]. 然而 DMFC 存在以下突出问题: 一是甲醇从阳极透过电解质膜渗透到阴极严重; 二是低温下甲醇在阳极上的电催化氧化活性不高, 极化

严重, 且甲醇的部分氧化中间产物易使电催化剂中毒^[2]. 因此, 研制具有良好活性和抗毒性的阳极催化剂是直接甲醇燃料电池研究中最具有挑战性的任务之一.

通过添加促进剂来制备具有良好活性和抗毒性

Received: June 26, 2006; Revised: September 18, 2006. English edition available online at www.sciencedirect.com

*Corresponding author. Email: chsjliao@scut.edu.cn; Tel: +8620-87113586; Fax: +8620-87112906.

国家自然科学基金(20476034)资助项目

的催化剂一直是阳极催化剂研制的重要方向,目前被研究过的具有显著促进作用的物质主要是 Ru、W、Mo 等^[3-8]. 如 Kita 等^[9]发现了 Pt-Mo 合金对甲醇氧化具有促进作用,且认为这种促进作用不是源于 Mo 的催化作用而是源于其氧化还原性. Lima 等^[10]用化学沉积法制备了 Pt-Ru-Mo/C 催化剂,结果发现其不仅对甲醇的电氧化活性比 Pt/Ru 催化剂高,且稳定性也要好. Götz 等^[11]认为 W 含量较高时(Pt/Ru/W)的原子比是1:1:1.5)催化性能最好,其实验结果显示,当各元素的原子比为 1:1:1 时的三元催化剂对甲醇的催化活性顺序为 Pt/Ru/W>Pt/Ru/Mo>Pt/Ru>Pt/Ru/Sn.

迄今关于杂多酸对阳极电氧化的促进作用的研究只有少量报道^[2,9-11]. 我们曾研究了在Pt/C类催化剂中添加硅钼酸、磷钨酸对甲醇的电氧化作用的影响,取得的初步结果表明,杂多酸的添加对催化剂的催化性能和抗毒性能有良好的促进作用^[2]. 本文在此基础上,用三种方法制备了添加硅钼酸的 PtMoSi/C 阳极催化剂,采用 XRD、XPS 和 TEM 表征了其粒子大小和物相结构,通过电化学方法研究了催化剂的活性,比较了制备方法和改变硅钼酸含量对催化剂活性的影响.

1 实验部分

1.1 PtMoSi/C 催化剂制备

Vulcan XC-72R 的预处理:首先将 XC-72R 碳黑加入 $1.0 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ HNO_3 溶液中,搅拌煮沸 1 h,放置 8 h. 抽滤洗涤至中性,在 $110 \text{ }^\circ\text{C}$ 下烘干,研磨后保存. 制备方法 1,将一定量经过处理的 XC-72R 碳黑在异丙醇中润湿分散,加入氯铂酸和硅钼酸溶液,恒温 $80 \text{ }^\circ\text{C}$ 搅拌,调节 pH 值为 8-9,加入甲醛,反应 3.5 h 后静置沉淀. 抽滤, $80 \text{ }^\circ\text{C}$ 下烘干,研磨备用. 方法 2 的步骤同方法 1,但还原剂用肼代替甲醛. 方法 3,如方法 1 将 XC-72R 碳黑分散在异丙醇溶液中,加入氯铂酸和硅钼酸溶液,恒温 $80 \text{ }^\circ\text{C}$ 搅拌,使溶剂挥发. 将得到的物体放于烘箱中 $110 \text{ }^\circ\text{C}$ 烘干,放入管式炉中,通入 H_2 , $200 \text{ }^\circ\text{C}$ 还原. 所制得催化剂中 Pt 的含量(质量分数,下同)为 20%. 为做比较,我们使用方法 1 制备了 Pt-Ru/C(Pt、Ru 的原子比为 1:1)催化剂.

1.2 测试电极的制备

称取一定量的催化剂,在催化剂中添加少量的 Nafion 溶液和 Teflon 乳液,搅匀后均匀涂在 $1 \text{ cm} \times 1 \text{ cm}$ 大小的碳布的一侧,然后在 $120\text{--}160 \text{ }^\circ\text{C}$ 下热压成

片,制成含 Pt 约 $2 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$, 表面积为 1.0 cm^2 的碳布电极.

1.3 电化学测试

电化学测试在德国 Zahner Mebtechnik 公司 IM6/IM6e 电化学工作站上进行,操作软件为 Thales. 采用三电极体系,铂片为对电极,饱和甘汞电极 $\text{Hg}/\text{Hg}_2\text{Cl}_2(\text{SCE})$ 为参比电极,所测得的电极电位值均为相对于 SCE 的值. 反应在一带有磁搅拌的恒温反应器(实验室自制)中进行,温度控制精度为 $\pm 0.1 \text{ }^\circ\text{C}$, 反应溶液为 $0.5 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{CH}_3\text{OH} + 0.5 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{H}_2\text{SO}_4$ 溶液,其中硫酸为支持电解质,在电位为 $0\text{--}1.2 \text{ V}$ 范围内做循环伏安扫描(CV)和线性伏安扫描(LSV),扫描速率为 $10 \text{ mV} \cdot \text{s}^{-1}$,温度为 $25 \text{ }^\circ\text{C}$. 电化学活性面积的测试在 $0.5 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1} \text{H}_2\text{SO}_4$ 溶液中进行,扫描速率为 $15 \text{ mV} \cdot \text{s}^{-1}$,温度为 $25 \text{ }^\circ\text{C}$.

1.4 表征仪器

使用日本岛津的 XD-3A 型 X 射线衍射仪测定催化剂的结构和晶粒度, Cu 靶, Ni 滤波,射线波长为 0.15418 nm ,管电压 30 kV ,管电流 30 mA ,扫描速率 $4 \text{ (}^\circ\text{)} \cdot \text{min}^{-1}$. XPS 电子能谱仪(美国 PHI600 型 ESCA 系统),X 光源为 $\text{Mg } K_\alpha$ 射线,功率 300 W ,电压 15 kV ,分析面积 0.8 mm^2 ,以 C 1s 的峰电位 284.6 eV 为校准荷电,分辨率 0.7 eV . 在荷兰 Philips 公司的 CM300 电镜上进行高分辨透射电子显微像分析,加速电压为 300 kV ,采用铜网微栅样品架,样品先在水乙醇中超声分散,然后负载到样品架上制成电镜样品.

2 结果与讨论

2.1 催化剂的物性特征

2.1.1 XRD

图 1 为采用不同制备方法得到的 PtMoSi/C ($20\% \text{ Pt}$, $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=3:1$)和 Pt/C($20\% \text{ Pt}$)、XC-72R 碳黑的 XRD 结果. 由图可知, 25° 左右的峰为活性碳(002)晶面的衍射峰. 39° 、 46° 、 68° 处的峰为 PtMoSi/C 和 Pt/C 中 Pt 衍射峰,分别来自 Pt(111)、Pt(200)、Pt(220)晶面,表明 Pt 粒子呈立方面心晶态结构. 与 Pt/C 相比, PtMoSi/C 的谱图上没有出现 Mo 氧化物的特征衍射峰,可推测掺杂的硅钼酸是以非晶体的形态存在的. 根据 Sherrer 公式: $d=k\lambda/\beta\cos\theta$, 利用 Pt(220)晶面来计算 Pt 金属或其合金粒子大小,发现用甲醛还原得到的催化剂 PtMoSi/C 粒径最小,为 3.5 nm ,而用甲醛还原得到的催化剂 Pt/C 粒径为 4.2 nm ,说明添

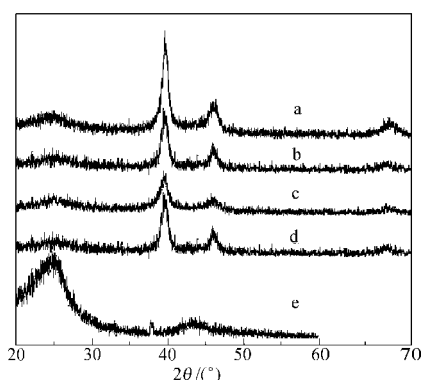


图1 (a)肼还原、(b)氢还原、(c)甲醛还原制备的PtMoSi/C及(d)Pt/C和(e)XC-72R碳黑的XRD图

Fig.1 XRD patterns of PtMoSi/C prepared by (a) hydrazine, (b) hydrogen, (c) formaldehyde, (d) Pt/C reduced by formaldehyde, and (e) XC-72R (C)

加硅钼酸可以使活性组分的分散度提高. 同时, 由Pt(111)晶面与碳晶面的相对峰高(I_P/I_C)的比例大小来评估Pt的结晶度, I_P/I_C 越大, 说明Pt的结晶度越高. 从图中我们可清楚看到, 用甲醛还原得到的催化剂PtMoSi/C结晶度最低, 这预示着其将有更大的活性比表面积和更好的电催化性能.

2.1.2 XPS

用XPS对PtMoSi/C(20%Pt, $n_P:n_M=3:1$)和Pt/C(20%Pt)催化剂进行了表征, 观察到PtMoSi/C的XPS图(图2a)中存在Pt、Mo、Si的峰, 其中Si 2p的电子结合能为103.2 eV, 说明Si主要以4价存在于催化剂中. 比较PtMoSi/C和Pt/C催化剂中的Pt 4f的结合能(图2b), 发现PtMoSi/C中的Pt 4f_{7/2}的结合能(71.45 eV)略高于Pt/C中的Pt相应的结合能(71.35 eV), 但所升高的数值远小于PtO和PtO₂中Pt的结合能, 说明Pt与硅

钼酸之间存在化学作用力, 而不是简单的物理混合. 由于硅钼酸的存在使Pt的氧化态升高, 但Pt并未发生价态的变化. 图2c为Mo 3d的XPS图谱, 显示了Mo 3d具有双光电峰, 分别为低电子结合能的Mo 3d_{5/2}(232.2 eV)和高电子结合能的Mo 3d_{3/2}(236.3 eV)光电峰. 为了细化此阶段Mo的存在状态, 我们使用XPS PEAK软件对UIMH XPS谱图进行了拟合处理. 拟合可给出4对Mo 3d光电峰, 分别对应为Mo(0)、Mo(IV)、Mo(V)、Mo(VI)四个物种, 其中Mo(VI)相对强度为85%, 表明Mo主要以6价形态存在, 这与目前普遍接受的MoO₃而非钼原子促进阳极催化剂活性的机理相吻合^[12].

2.1.3 TEM

图3(A、B)分别是PtMoSi/C催化剂(20%Pt, $n_P:n_M=3:1$)低放大倍数(标尺为50 nm), 高放大倍数(标尺为10 nm)的粒径和分布TEM照片. 照片中灰色的阴影部分是碳载体, 其上分布的黑色小颗粒是催化剂粒子. 从图中可以看到, 催化剂粒子均匀地分布在碳载体上, 没有出现明显的团聚现象, 而且催化剂粒子的粒径分布窄, 平均粒径在(3.0±0.5) nm左右.

2.2 催化剂的电化学测试

2.2.1 不同制备方法对PtMoSi/C催化剂电化学活性面积和性能的影响

固定Pt和Mo的原子比为4:1, 考察不同制备方法对PtMoSi/C(含20%Pt)电化学活性面积的影响. 图4为采用不同还原剂制得的PtMoSi/C催化剂在0.5 mol·L⁻¹ H₂SO₄溶液中的循环伏安曲线. 从图中可以看出用甲醛还原方法得到的催化剂氢脱附面积最大. 由于吸附在铂表面的氢的氧化脱附电量为210 μC·cm⁻², 对CV图进行分析, 利用经验公式 $S_E=$

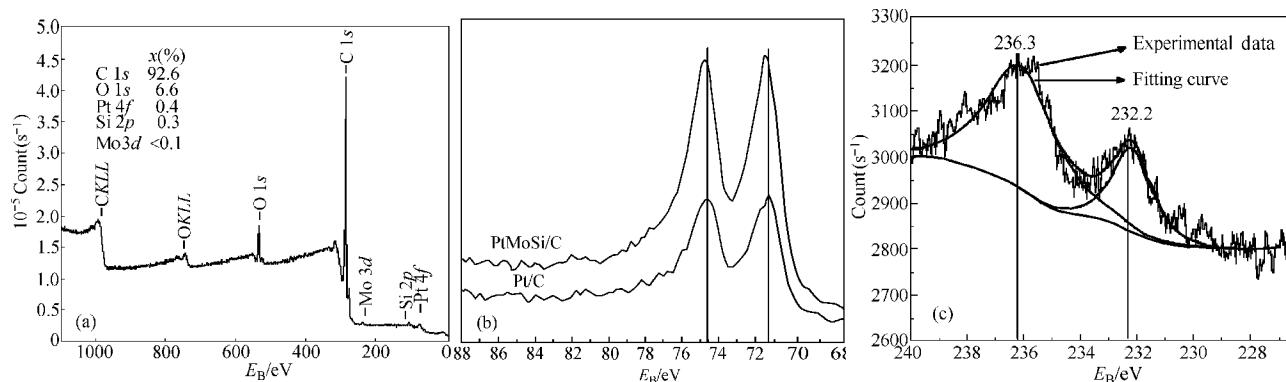


图2 甲醛还原制备的PtMoSi/C(20%Pt, $n_P:n_M=3:1$)的(a) XPS全谱图, (b) Pt 4f的XPS谱图, (c) Mo 3d的XPS谱图

Fig.2 XPS of (a) PtMoSi/C (20%Pt, $n_P:n_M=3:1$), (b) Pt 4f for PtMoSi/C and Pt/C, (c) Mo 3d for PtMoSi/C prepared using formaldehyde

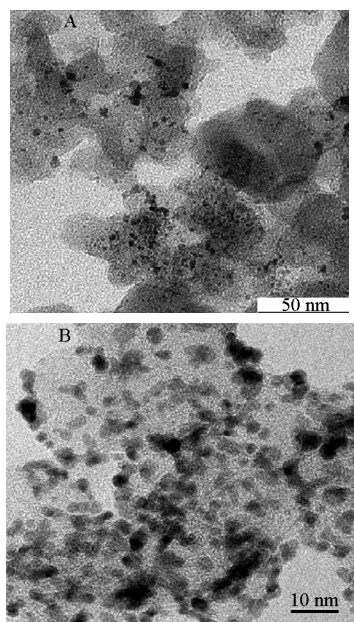


图3 甲醛还原制备的催化剂 PtMoSi/C(20%Pt, $n_{Pt}:n_{Mo}=3:1$)的(A)低放大倍数,(B)高放大倍数的透射电镜照片
Fig.3 (A) A low-magnification, (B) a high-magnification TEM image of PtMoSi/C (20%Pt, $n_{Pt}:n_{Mo}=3:1$) prepared using formaldehyde

$Q/(2.10 m)$ (式中 S_E 为催化剂的电化学活性面积, Q 为电量, 单位为库仑, 根据铂上氢的脱附峰面积 S , 可转换成电量, m 为催化剂表面担载铂的质量, 单位为 g), 可以计算出不同还原剂制备的催化剂中铂的电化学活性面积, 结果列于表 1.

从表 1 的分析结果可以看出: 甲醛还原得到的催化剂的电化学活性面积最大, 比肼还原和 H_2 还原方法得到催化剂的电化学活性面积分别高出 6.8 和 $6.5 m^2 \cdot g^{-1}$. 说明催化剂的制备过程中, 通过肼还原

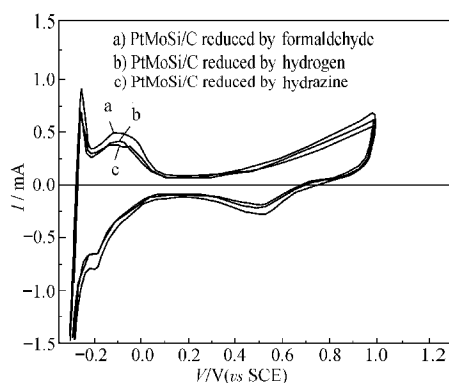


图4 不同还原剂制得的 PtMoSi/C 催化剂在 $0.5 mol \cdot L^{-1} H_2SO_4$ 溶液中的循环伏安曲线
Fig.4 CV curves of PtMoSi/C prepared using different reducing agents in $0.5 mol \cdot L^{-1} H_2SO_4$ solution

表 1 不同还原剂制得的 PtMoSi/C 催化剂的电化学活性面积

Table 1 Electrochemical active area of PtMoSi/C catalysts prepared using different reducing agents

Reducing agent	Peak area (mA·V)	Electrochemical active area ($m^2 \cdot g^{-1}$)
formaldehyde	0.14912	28.4
hydrogen	0.11498	21.9
hydrazine	0.11368	21.6

和 H_2 还原方法得到的催化剂中铂的粒径比较大, 造成了催化剂的活性面积的降低. 这与上述的 XRD 结果一致.

同时我们采用线性扫描的方法, 考察了不同制备方法和硅钼酸的添加对 PtMoSi/C(含 20%Pt)甲醇氧化性能的影响, 由图 5 可知, 添加硅钼酸得到的催化剂对甲醇的电催化氧化性能要明显优于 Pt/C 催化剂的, 而甲醛还原法得到的 PtMoSi/C 效果最好. 其出峰电流密度 ($1.05 V, 175 mA \cdot cm^{-2}$), 是 Pt/C 出峰电流密度的 1.3 倍. 推测硅钼酸的促进作用的可能原因有: 一是硅钼酸本身具备氧化性; 二是硅钼酸的添加使催化剂表面富含 OH 基团, 有助于表面吸附的 CO 等毒性基团氧化和清除; 三是硅钼酸是良好的质子导体, 其添加可改善催化剂层的质子传导性能.

2.2.2 不同铂钼原子比对 PtMoSi/C 催化剂电化学活性面积和性能的影响

采用甲醛还原法, 改变硅钼酸的添加量, 考察不同铂钼原子比对 PtMoSi/C(含 20%Pt)催化剂电化学活性面积的影响. 图 6 为不同 PtMo 的原子比的 PtMoSi/C 催化剂在 $0.5 mol \cdot L^{-1} H_2SO_4$ 溶液中的循

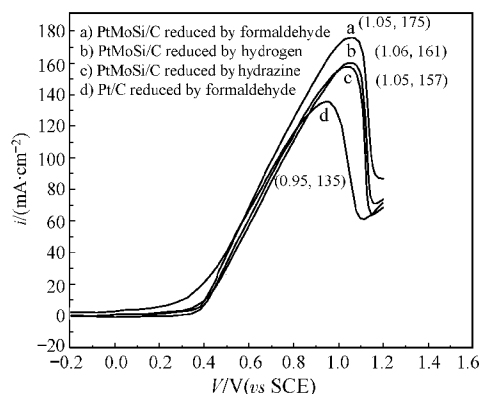


图5 不同还原剂制得的 PtMoSi/C 催化剂对 CH_3OH 氧化的线性扫描伏安曲线
Fig.5 LSV curves of PtMoSi/C prepared using different reducing agents for methanol oxidation

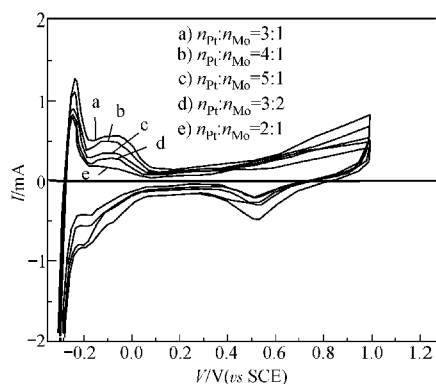


图6 不同PtMo原子比的PtMoSi/C催化剂在0.5 mol·L⁻¹ H₂SO₄溶液中的循环伏安曲线

Fig.6 CV curves of PtMoSi/C with various ratios of Pt to Mo in 0.5 mol·L⁻¹ H₂SO₄ solution

环伏安曲线. 从图中可见当 $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=3:1$ 时, 其氢脱附面积最大, 据此得到表2中不同Pt、Mo的原子比的PtMoSi/C催化剂的电化学活性面积. 由表可知, $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=3:1$ 时, 催化剂的活性面积最大, 为 $37.5 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 其次 $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=4:1$ 时, 得到的活性面积为 $28.4 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 而 $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=5:1$ 时降到 $24.9 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$. 这表明适量硅钼酸的添加可以抑制Pt晶体的生长, 有效地提高活性组分Pt的分散度, 这从上面的甲醛还原得到的Pt/C (4.4 nm, $21.2 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$) 和PtMoSi/C (3.8 nm, $37.5 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$) 的对比中可得以证明. 然而, 增大硅钼酸的含量到 $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=3:2$ 时, PtMoSi/C催化剂活性面积降到了 $17.6 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 再增大到 $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=2:1$ 时, 则变为 $15.0 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$. 可能的原因是, 过量硅钼酸的加入部分地掩盖了Pt的活性位点, 从而使催化剂的活性面积降低.

同时我们采用线性扫描的方法, 考察了不同硅钼原子比对PtMoSi/C (含20%Pt) 催化剂电化学性能的影响. 从图7中可看到Pt、Mo原子比为3:1时, 催化剂的电化学性能最好, 峰电流密度达到 $195 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$. 而增大或减小Mo原子的比例时, 催化活性下

表2 不同Pt、Mo原子比的PtMoSi/C催化剂的电化学活性面积

Table 2 Electrochemical active areas of PtMoSi/C electrocatalysts with various ratios of Pt to Mo

$n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}$	Peak area (mA·V)	Electrochemical active area ($\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)
3:1	0.19698	37.5
4:1	0.14912	28.4
5:1	0.13081	24.9
3:2	0.09233	17.6
2:1	0.07879	15.0

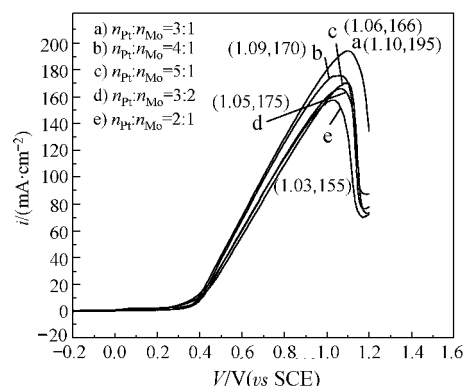


图7 不同PtMo原子比的PtMoSi/C催化剂对CH₃OH氧化的线性扫描伏安曲线

Fig.7 LSV curves of PtMoSi/C with various ratios of Pt to Mo for methanol oxidation

降. 这与前面得到的电化学活性面积结果相一致, 添加适量硅钼酸可增大催化剂活性面积, 提高催化剂的活性, 硅钼酸的最适合掺杂量为 $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=3:1$.

2.2.3 自制催化剂PtMoSi/C, PtRu/C与E-TEK PtRu/C的性能比较

将甲醛还原制备的催化剂PtMoSi/C, PtRu/C (20%Pt, $n_{\text{Pt}}:n_{\text{Mo}}=3:1$) 与商品催化剂E-TEK PtRu/C进行电化学性能对比, 得到图8. 自制的催化剂PtMoSi/C和PtRu/C的出峰电流密度为195和170 $\text{mA} \cdot \text{cm}^{-2}$, 与商品催化剂相比, 电流密度分别增大了43与18 $\text{mA} \cdot \text{cm}^{-2}$. 说明自制催化剂PtMoSi/C和PtRu/C对甲醇氧化的电化学性能要好于E-TEK PtRu/C催化剂.

图9为自制催化剂PtMoSi/C, PtRu/C与E-TEK PtRu/C在0.6 V下0.5 mol·L⁻¹ H₂SO₄+0.5 mol·L⁻¹ CH₃OH溶液中的计时电流曲线图. 图中曲线都显示

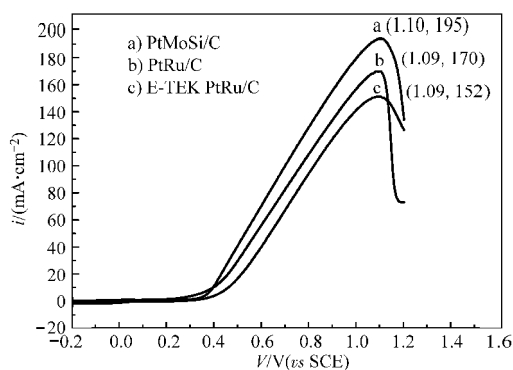


图8 自制催化剂PtMoSi/C, PtRu/C与E-TEK PtRu/C对CH₃OH氧化的线性扫描伏安曲线

Fig.8 LSV curves of PtMoSi/C, PtRu/C (self-made), and PtRu/C (E-TEK) catalysts for methanol oxidation

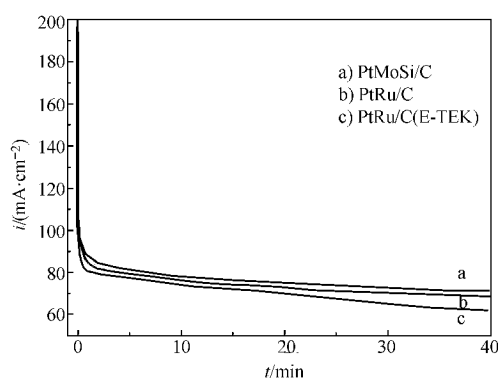


图9 不同催化剂在电位 0.6 V 的恒电压极化曲线

Fig.9 Chronopotentiometric curves of catalysts at 0.6 V for methanol oxidation

出一定的电流衰减现象,其原因归结于甲醇催化氧化过程中出现线性吸附的 CO 毒化作用.但是自制 PtMoSi/C 的衰减速度要小于自制 PtRu/C,而自制 PtRu/C 中毒速度小于商品催化剂,这些结果表明,自制催化剂 PtMoSi/C 和 PtRu/C 的抗 CO 毒化性能都要优于商品催化剂,而硅钼酸的添加可有效地提高催化剂的活性和稳定性.

3 结论

(1) 采用甲醛还原、 H_2 还原、肼还原三种方法制备了添加硅钼酸的PtMoSi/C阳极催化剂, XRD和电化学方法测试表明, 甲醛还原得到的PtMoSi/C催化剂粒径最小, 电化学活性面积最大, 对甲醇氧化性能最好.

(2) 采用 TEM 和 XPS 表征了 PtMoSi/C 粒子大小和物相结构, 表明催化剂活性组分颗粒度小(3-4 nm), 分散均匀, 且 Pt 与硅钼酸之间存在化学作用

力, 而不是简单的物理混合. Pt 主要以 0 价, Mo 主要以 6 价, Si 主要以 4 价形态存在于催化剂中.

(3) 采用甲醛还原法, 改变硅钼酸的添加量, 考察了不同硅钼原子比对 PtMoSi/C(含 20%Pt)催化剂电催化活性面积和性能的影响, 发现硅钼酸的最适合掺杂量为 $n_{Pt}:n_{Mo}=3:1$ (原子比).

(4) 制备了电化学活性和抗中毒性能均优于 E-TEKPt-Ru/C 的电催化剂, 表明添加适量的硅钼酸是研制具有良好活性和抗毒性能的醇类氧化阳极催化剂的重要方法之一.

References

- 1 Lamy, C.; Lima, A.; Lerhun, V. *J. Power Sources*, **2002**, **105**: 283
- 2 Bursten, T. G.; Barnett, J. C.; Kucernak, A.; Williams, K. *Catal. Today*, **1997**, **38**: 425
- 3 Nakajima, H.; Kita, H. *Electrochim. Acta*, **1990**, **35**: 849
- 4 Lima, A.; Coutanceau, C.; Leger, J. M. *J. Appl. Electrochem.*, **2001**, **31**: 379
- 5 Götz, M.; Wendt, H. *Electrochim. Acta*, **1998**, **43**: 3637
- 6 Antolini, E. *Mater. Chem. Phys.*, **2003**, **78**: 563
- 7 Liu, Z. L.; Lin, X. H.; Lee, J. Y.; Zhang, W. D. *Langmuir*, **2002**, **18**: 4054
- 8 Jusys, Z.; Schmidt, T. J.; Dubau, L. *J. Power Sources*, **2002**, **105**: 297
- 9 Ndzebet, E.; Savadogo, O. *Int. J. Hydrogen Energ.*, **1995**, **20**: 635
- 10 Liao, S. J.; Linkov, V.; Petrik, L. *Appl. Catal. A: Gen.*, **2004**, **258**: 183
- 11 Liao, S. J.; Linkov, V.; Petrik, L. *Appl. Catal. A: Gen.*, **2002**, **235**: 149
- 12 Liao, S. J.; Ye, L. Y. *J. South China Uni. Technol. (Natural Sci. Ed.)*, **2005**, **33**: 1 [廖世军, 叶立炎. 华南理工大学学报(自然科学版), **2005**, **33**: 1]