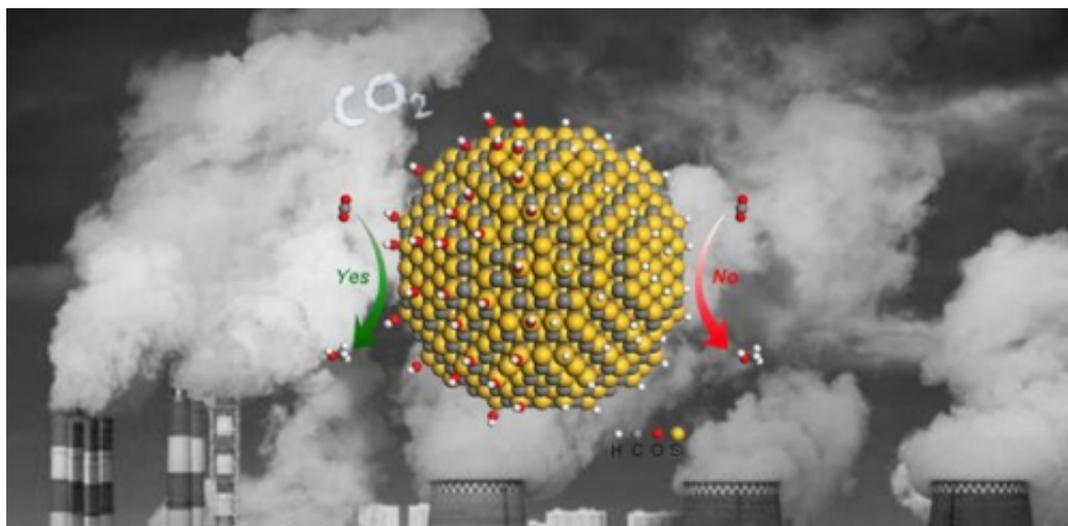


中国科大揭示亲疏水性对二氧化碳加氢反应的作用机制



SiC催化CO₂加氢反应示意图

近日，中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心和化学与材料科学学院教授曾杰课题组，以碳化硅体系为研究对象，发现亲疏水性在催化反应过程中起重要作用，并从原子尺度上解释了这种作用的“来源”：亲水性的碳化硅量子点表面富含羟基结构，可以有效促进二氧化碳分子的活化。研究成果以Molecular-Level Insight into How Hydroxyl Groups Boost Catalytic Activity in CO₂ Hydrogenation into Methanol为题，在线发表在Chem上，论文的共同第一作者是博士生彭钰涵、博士生王梁炳和特任副研究员罗其全。

催化反应是在催化剂表面发生的，通常可以调控催化剂表面的性质来提升催化反应的活性、选择性和稳定性。亲疏水性是一个重要的表面性质参数，过去人们对于亲疏水性质的理解基本停留在对底物分子的富集作用上，例如亲水的催化剂表面容易吸附醇类等物种，而疏水性表面容易吸附酯类酮类等物种。但这种理解是比较宏观的，因此从原子尺度上揭示催化剂表面亲疏水性影响催化反应的本质，对于设计高效催化剂具有重要指导意义。

研究人员对比商用碳化硅和量子点碳化硅二氧化碳加氢反应活性，发现亲水性的量子点碳化硅在32atm和150oC的条件下，质量活性（mass activity）比同等条件下疏水性的商用碳化硅高出三个数量级。量子点碳化硅的表观活化能是（48.6 kJ mol⁻¹），只有商用碳化硅（94.7 kJ mol⁻¹）的一半左右。借助原位同步辐射X射线光电子能谱和近边X射线吸收谱等技术手段，研究人员发现亲水性的量子点碳化硅表面富含羟基，羟基上的H原子可以直接与二氧化碳相互作用形成HCOO*中间物种，从而直接参与到催化反应过程中。这种特殊的反应路径降低了HCOO*形成的活化能，从而促进了二氧化碳的活化。基于该认识，研究人员构筑了一系列表面富含羟基的催化剂，这些催化剂在CO₂加氢反应中的活性比其不含羟基的结构高出一个数量级。该课题组对亲疏水性在CO₂加氢反应中的作用的理
解，突破了人们对于亲疏水性的传统认知，为今后寻找更高效的CO₂加氢催化剂开拓了新思路。

研究工作得到了中科院前沿科学重点研究项目、国家重大科学研究计划、国家自然科学基金等的资助。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/121569.html>