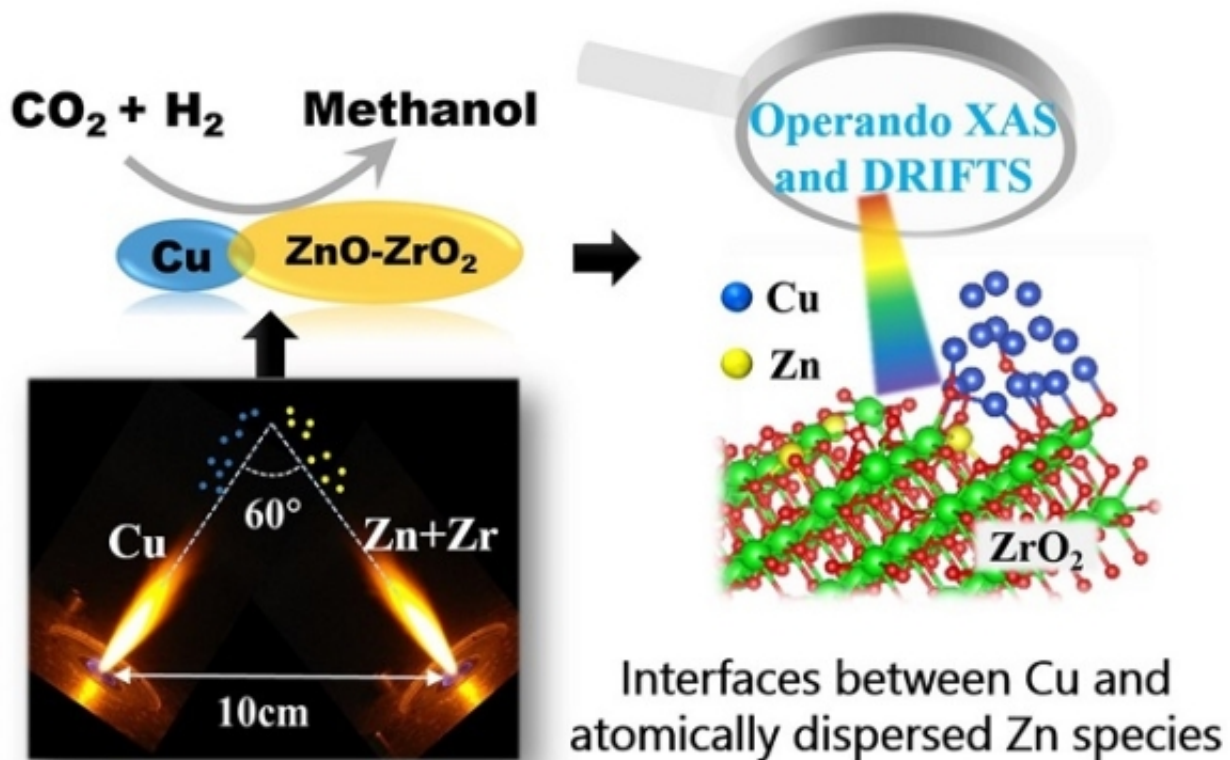


## 大连化物所等揭示锌物种在二氧化碳催化加氢中的作用



近日，中国科学院大连化学物理研究所研究员孙剑、副研究员俞佳枫团队与德国卡尔斯鲁厄理工学院教授Grunwaldt合作，利用双喷嘴火焰喷射裂解法（DFSP）对经典的铜-锌-锆三元催化材料结构进行精细调控，通过多种原位表征手段揭示了氧化锌在二氧化碳加氢制甲醇反应体系下的结构敏感性。此外，合作团队还利用锌锆组间的相互作用，制备了原子级分散的氧化锌，证明了其是提高铜基催化剂反应性能的关键。

Cu/ZnO是经济高效的二氧化碳加氢制甲醇的催化剂之一，ZnO在该体系中的作用机理是长期以来的研究热点。然而，ZnO结构容易在反应过程中发生动态变化，目前研究仅基于不同的反应气氛和催化体系建立ZnO结构的研究模型，但难以获得真实反应条件下Zn物种精细的局部配位结构及其关键催化作用的有效信息。因此，需要利用原位表征技术，在反应过程中实时监测Zn物种结构的动态演变过程，才能得到具有指导意义的构效关系。

孙剑团队在前期单喷嘴火焰喷射法（FSP）制备多种高效催化剂策略的基础上（Chem. Sci., 2017；Chem. Commun., 2021；Nat. Commun., 2021；J. Am. Chem. Soc., 2022），利用升级的双喷嘴技术对于铜-锌-锆三元催化剂各组元之间相互作用的程度进行了精细调控，在不改变铜和氧化锆结构性质的前提下得到了三种不同的锌物种；通过原位X射线吸收光谱技术对锌原子的局部配位结构和高压反应条件下锌物种的动态演变机理进行了深入探究；分别借助高压和常压红外漫反射技术考察了不同锌物种对反应中间体的吸附和转化的影响。研究发现，将锌锆前驱体和铜前驱体分开在不同的喷嘴中，可以明显增强锌和锆组元间的相互作用，在反应条件的诱导下，ZnO发生再分散，进而在氧化锆表面形成了原子级分散的锌物种。此类锌物种与铜之间形成了高活性界面，可抑制中间体分解为副产物一氧化碳，降低氢活化的能垒，明显超越常规铜/氧化锌界面和孤立的氧化锌位点的催化性能，有效提高了甲醇选择性和收率。该工作将为合理设计和精准调控多组分催化体系中的活性物种提供新思路。

相关成果以Probing the Nature of Zinc in Copper-Zinc-Zirconium Catalysts by Operando Spectroscopies for CO<sub>2</sub> Hydrogenation to Methanol为题于近日发表在《德国应用化学》（Angew. Chem. Int. Ed.）上。研究工作得到国家自然科学基金、辽宁省兴辽英才计划等项目的支持。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/190261.html>