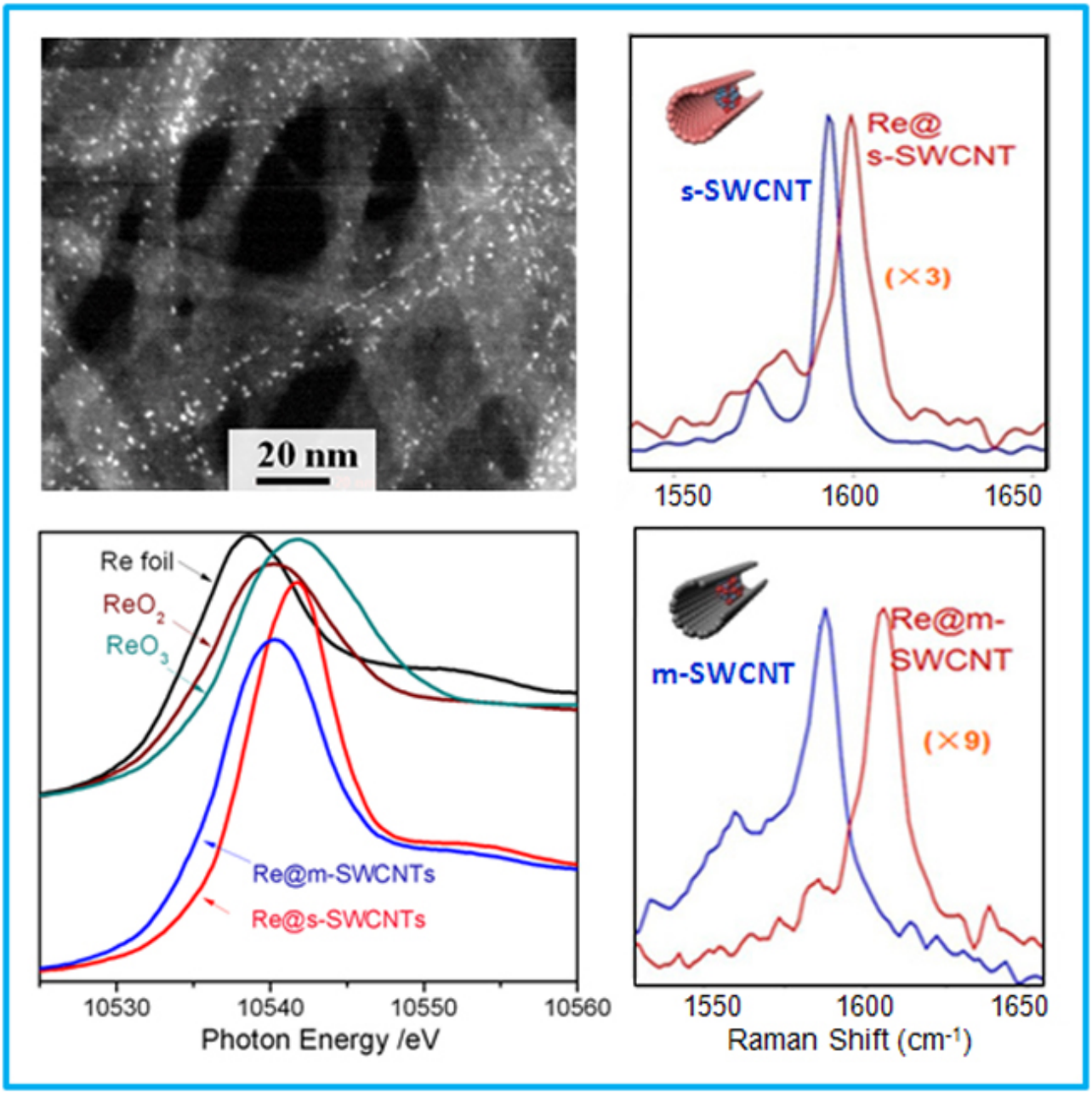
# 大连化物所碳纳米管限域催化研究工作取得新进展




近日，中科院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室张帆、潘秀莲和包信和等在碳纳米管的限域催化研究方面取得新进展，相关结果发表在《美国国家科学院院刊》上。

碳纳米管可认为是由石墨烯片卷曲形成的一维管状材料，因曲率导致原本对称分配的π电子云发生畸变，由管内向管外偏移，在管内外形成电势差。该研究团队经过多年的研究，证实了这种纳米级空间和电子结构可形成独特的限域环境，导致组装在其内部的金属纳米粒子和气体分子的特性发生变化，从而可能改变分子吸附活化模式甚至反应路径，提出了“碳纳米管的催化协同限域效应”的概念（Acc. Chem. Res. 2011, 44, 553），并在多个催化反应中验证了这一理论(Angew. Chem. Int. Ed. 2013, 52, 317; Energy Environ. Sci. 2011, 4, 4500; J. Am. Chem. Soc. 2008, 130, 9414; Nat. Mater. 2007, 6, 507.等)。

根据上述概念预测，当碳管管径和层数减小，碳管的限域效应将随之加强；与此同时，碳管因受卷曲方式不同所表现出的金属性或有一定带隙的半导体性，也将对反应有调变作用。然而，多年来小管径中限域催化剂的制备技术以及有效的表征手段一直是个瓶颈。

最近，该研究组成功地实现了在管径小至1.5纳米左右的单壁碳管内高效组装限域催化剂，并利用原位X-射线吸收光谱和拉曼光谱，分别跟踪反应过程中金属和碳管的电子结构变化，特别是通过单根碳管的实验，验证了上述预测：即碳管自身的电子结构直接决定着其对催化反应性能的调变作用。尽管金属性和半导体性碳管限域体系的形貌特征非常相似，但由于金属团簇与管壁之间的电子相互作用导致限域金属的化学态迥然不同。这一研究结果不仅提供了限域体系主客体电子相互作用的直接实验证据，而且为一系列氧化还原反应设计高活性的金属团簇催化剂提供了新思路，也为可逆调变碳管电子结构而不破坏其管壁提供了一条新途径。

以上研究得到了国家自然科学基金委、科技部等相关项目的资助。

原文地址：http://www.china-nengyuan.com/tech/51634.html