

中国科大利用尖端效应实现高效二氧化碳催化加氢

近日，中国科学技术大学教授曾杰课题组通过构筑Pt₃Co八足体合金纳米晶并利用其尖端效应实现高效CO₂催化加氢。该研究成果发表在8月8日的《德国应用化学》杂志上（Angew. Chem. Int. Ed. 2016, 55, 9548-9552），并被选为封面和热点文章。论文的共同第一作者是巴基斯坦留学生Munir Ullah Khan、博士生王梁炳和博士生刘钊。

作为一种极其稳定的分子，CO₂分子往往难以被活化，因此，如何有效活化CO₂是提升其加氢反应催化活性的关键所在。一般而言，催化剂表面的电子结构是影响催化剂性能的主要因素。理论研究表明，电子倾向于富集在形状尖锐的区域，例如顶点和边缘，即尖端效应。此外，合金中电负性的差异也会导致电子转移，从而改变催化剂的电子结构。这为研究人员调控金属纳米晶的电子结构提供了思路。

基于此，研究人员设计并构筑出Pt₃Co八足体合金纳米晶，其在CO₂加氢催化反应中表现出卓越的催化活性。相较于Pt₃Co立方体、Pt八足体、Pt立方体纳米晶，Pt₃Co八足体合金纳米晶催化CO₂加氢生成甲醇的转化频率分别是它们的2.2、6.1和6.6倍。第一性原理研究表明，Pt₃Co八足体合金纳米晶尖锐的顶端结构由于尖端效应，导致尖端处电子富集。此外，在Pt₃Co合金中，由于Pt的电负性高于Co，Co原子上的电子会向Pt原子转移，使得尖端处的Pt原子得以富集电子，该现象在X光电子能谱测试中得以证实。随后，研究人员基于原位红外反射吸收光谱观测到CO₂在Pt₃Co金属纳米晶催化作用下活化成CO₂⁻自由基，证实了电子在尖端处Pt原子上的富集有利于CO₂活化。该项研究为通过调控纳米金属纳米晶表面电子状态提升催化性能提供了新的研究思路。

该项研究得到了科技部青年“973”计划、国家自然科学基金等项目的资助。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/97975.html>