



实验室新闻

实验室动态

公告通知

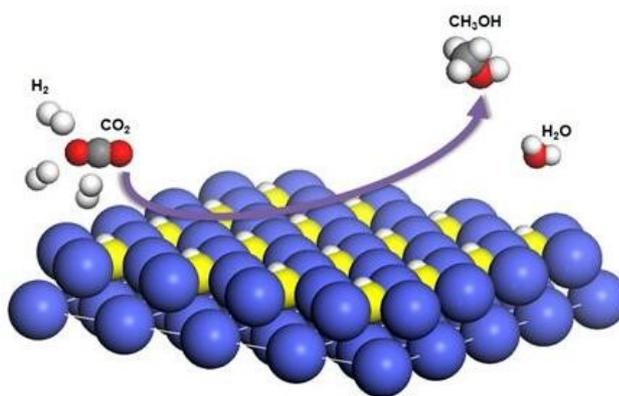
实验室动态

首页 > 实验室新闻 > 实验室动态

钴基催化剂在二氧化碳加氢反应中的活性物相研究取得重大进展

发布日期: 2017-10-11

近日, 我室曾杰教授课题组研究了钴 (Co) 基催化剂在CO₂加氢反应中的活性物相。他们将N原子引入到Co催化剂中构筑出Co₄N催化剂, 并通过原位机理研究发现, Co₄NH_x是该催化过程中真正的活性物相。该成果以“*Incorporating nitrogen atoms into cobalt nanosheets as a strategy to boost catalytic activity toward CO₂ hydrogenation*”为题, 10月9日在线发表在《自然-能源》杂志上 (Nature Energy 2017, DOI: 10.1038/s41560-017-0015-x)。



Co₄N催化剂CO₂加氢反应示意图

随着现代科学进步和工业化进程的迅猛发展, 人类对能源的需求日益增加。而大量使用化石燃料, 不仅将面临能源消耗殆尽的一天, 而且也对环境造成了严重的危害。因此, 开发可再生能源、提高能源利用效率迫在眉睫。CO₂加氢反应一方面可以利用CO₂合成化工原料, 缓解CO₂的排放压力, 实现碳能源的循环利用; 另一方面可以与新能源电解制氢、氯碱工业衔接, 实现氢资源的储存。CO₂加氢反应是碳一化学中的重要反应, 对它的研究可以帮助我们更好地认识CO₂在催化剂上的活化与转化, 对理解非均相催化剂上表面碳物种的形成以及碳链增长有着重要意义, 还能指导其他含碳物质的转化。

CO₂加氢转化工艺中存在能耗过大的问题。由于CO₂的化学惰性, 此反应需要在高温高压条件下实现。在过去的几十年里, 人们开发出一系列不同的策略以期提高非贵金属催化剂对CO₂加氢反应的活性。迄今为止, 对非贵金属催化剂在CO₂加氢反应中的活性物相研究仍然非常初步。

研究人员将N原子引入到Co催化剂中形成Co₄N催化剂。在CO₂加氢催化中, Co₄N催化剂在32 atm和150 °C的条件下, 转换频率 (TOF) 为同等条件下Co催化剂的64倍。此外, Co₄N催化剂的表观活化能是43.3 kJ mol⁻¹, 只有Co催化剂 (91.4 kJ mol⁻¹) 的一半左右。进一步的原位机理研究表明, 在H₂氛围下, Co₄N催化剂上的N原子会吸附结合H原子从而形成Co₄NH_x这样一种特殊的物相。Co₄NH_x中的氨基H原子直接加到CO₂分子上形成HCOO*物种作为中间产物。此外, 反应过程中吸附的H₂O分子也通过氢键相互作用促进氨基H的活化和解离, 从而加速加氢过程。该工作通过引入N原子, 为优化非贵金属催化剂对CO₂加氢反应的活性提供了一种简单有效的方式, 更进一步加深了对钴基催化剂在CO₂加氢反应中活性物相的理解, 为今后寻找更为廉价、高效的CO₂加氢催化剂提供了新思路。

该项研究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项目的资助。

下一篇: 二氧化碳电还原产合成气的催化剂研制取得重要进展

上一篇: 电解水产氢催化剂的研制取得重大进展

