一种利用精确纳米组装结构调控水下产气速率的普适方法

俞书宏

中国科学技术大学化学系, 合肥 230026

A General Strategy for Accelerating Fuel Gas Evolution on Nanoparticle Assemblies

Shuhong Yu

Department of Chemistry, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, P. R. China.

Emails: shyu@ustc.edu.cn.

Published online: January 13, 2020.

条带结构用于水下产气和条带电极电催化产氢的优势。

由于能源气体如氢气(H_2)¹, 一氧化碳(CO)²和氧气(O_2)³在可持续和高效能源系统中的潜在应用, 目前正引起全世界的关注。目前大多数工作都致力于设计和研发高效的催化剂以达水下高效电催化产气的效果, 例如设计特殊晶体构型的金属及金属氧化物⁴, 碳材料负载少量的贵金属等等⁵。大多数制备的催化剂是以滴涂的方式在电极表面生成薄膜, 在优化后的电压条件下进行电解。除了考虑异相催化剂的反应活性, 在水下生成的气体产物会黏附在催化剂膜的表面⁶, 影响反应物与催化剂的传质过程, 同时生成的大尺寸气泡会继续黏附在催化剂表面⁷, 生成许多非活性位点, 减小了催化剂的反应面积。催化剂的稳定性是工业生产顺利进行的条件。黏附生长的气泡直至浮力大于黏附力时才能脱离催化剂表面, 此时会对催化剂膜产生较大的拉力, 经长时间电解后, 催化剂由于气泡的持续作用力会从电极表面脱落, 最终会

影响催化效果。因此从该变催化剂膜的角度出发, 设计催化体系既能加快反应速率又能保持催化剂长久物理稳定性是解决问题的关键。

近日, 中国科学院化学研究所王铁研究员等人在前期模板辅助的打印策略组装工作的基础上(*Advanced Materials*)⁸, 将胶束型的纳米颗粒成功组装成条带状的微结构, 与传统的滴涂薄膜相比实现了更快的产气速率和更高的物理稳定性, 相关工作发表在*Journal of the American Chemical Society*上⁹。作者通过小角X射线衍射证实了微结构呈现长程有序的超晶格结构。通过改变模板的参数, 可以调控条带间的间隙宽度。

作者首先将铂(Pt)纳米颗粒组装成条带结构(Pt SP)用于电催化产氢, 证实了窄间隙的Pt SP₅在酸性条件下的产氢速率是直接滴涂的Pt NPs薄膜的5.16倍。作者利用高速摄像机探究了反应过程中气泡生长行为, 发现气泡在窄间隙的Pt SP₅上是以

类似“Cassie”状态生长并且快速脱离，而当条带间隙增大后，气泡以“Wenzel”状态陷入间隙中，并且越长越大直至浮力大于黏附力时才脱离催化剂表面。结合动态拉伸仪和理论分析，证实气泡在Pt SP₅表面的黏附力仅有~2 μN，且Pt SP₅具有更好的应力分散效果¹⁰，因此与滴涂的Pt NPs薄膜相比，Pt SP₅这种条带电极展现了更好的物理稳定性。此外，模板辅助打印技术的优势使组成纳米颗粒或分子的组成、大小和形状具有很大的灵活性，因此具有通用性，有望用于析氧反应(OER)和二氧化碳电化学还原生产CO。

References

- (1) Gao, Q.; Wu, R.; Liu, Y.; Zheng, Y. R.; Li, Y.; Shang, L. M.; Ju, Y. M.; Gu, C.; Zheng, X. S.; Liu, J. W.; *et al. Research* **2019**, 11, 2019. doi: 10.34133/2019/8078549
- (2) Zhuang, T. T.; Liang, Z. Q.; Seifitokaldani, A.; Li, Y.; De Luna, P.; Burdyny, T.; Che, F.; Meng, F.; Min, Y.; Quintero-Bermudez, R.; *et al. Nat. Catal.* **2018**, 1 (6), 421. doi: 10.1038/s41929-018-0084-7
- (3) Duan, Y.; Yu, Z. Y.; Hu, S. J.; Zheng, X. S.; Zhang, C. T.; Ding, H. H.; Hu, B. C.; Fu, Q. Q.; Yu, Z. L.; Zheng, X.; *et al. Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, 58 (44), 15772. doi: 10.1002/anie.201909939
- (4) Zeng, M.; Li, Y. G. *J. Mater. Chem. A.* **2015**, 3, 14942. doi: 10.1039/C5TA02974K
- (5) Song, Q.; Qiao, X.; Liu, L.; Xue, Z.; Huang, C.; Wang, T. *Chem. Commun.* **2019**, 55 (7), 965. doi: 10.1039/C8CC09624
- (6) Sides, P. J.; Tobias, C. W. *J. Electrochem. Soc.* **1985**, 132, 583. doi: 10.1149/1.2113910
- (7) Lu, Z. Y.; Zhu, W.; Yu, X. Y.; Zhang, H. C.; Li, Y. J.; Sun, X. M.; Wang, X. W.; Wang, H.; Wang, J. M.; Luo, J.; *et al. Adv. Mater.* **2014**, 26, 2683. doi: 10.1002/adma.201304759
- (8) Feng, J.; Song, Q.; Zhang, B.; Wu, Y.; Wang, T.; Jiang, L. *Adv. Mater.* **2017**, 29 (46), 1703143. doi: 10.1002/adma.201703143
- (9) Song, Q.; Xue, Z.; Liu, C.; Qiao, X.; Liu, L.; Huang, C.; Liu, K.; Li, X.; Lu, Z.; Wang, T. *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, doi: 10.1021/jacs.9b10388
- (10) Buehler, M. J.; Yao, H. M.; Gao, H. J.; Ji, B. H. *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* **2006**, 14, 799. doi: 10.1088/0965-0393/14/5/001