

02 мая 2024 г.

Атомарно синергетический Zn-Cr катализатор для изо-стехиометрической совместной конверсии этана и CO₂ в этилен и CO

Разработка атомно синергетических бифункциональных катализаторов требует целенаправленного закрепления двух или более соседних активных атомов для эффективного содействия различным радикальным стадиям каталитической реакции. В данном исследовании мы успешно разработали на атомном уровне синергетические биядерные катализаторы ZnCr, которые демонстрируют превосходные каталитические характеристики по соотношению изохимической стехиометрии этана и CO₂. Селективность по этилену и утилизация диоксида углерода достигают 100% и 99,0% при конверсии этана 9,6% (температура реакции 500 оС), соответственно. Результаты спектроскопических исследований *in situ* и теоретических расчетов указывают на то, что синергизм на атомном уровне между кислотным участком цинка (Zn) и окислительно-восстановительным участком хрома (Cr) является ключом к достижению этого уникального каталитического свойства. Соседнее закрепление редокс-сайта Cr способствует образованию низковалентных Zn^{δ+}-сайтов, что эффективно снижает барьер разрыва β-C-H-связи в этане и приводит к образованию Zn-H^δ-гидроксидов. Повышенная щелочность поверхности способствует адсорбции и активации диоксида углерода и препятствует разрыву связи C-C в этане. Окислительно-восстановительный участок Cr восполняет кислород решетки, забирая кислород из углекислого газа, что ускоряет диссоциацию углекислого газа и способствует образованию и десорбции молекул воды. В результате достигается равновесие скоростей между дегидрированием этана и гидрированием диоксида углерода. Полученные нами результаты подчеркивают преимущества координированных на атомном уровне катализаторов с биядерными сайтами (ABCs) и предоставляют новые подходы и методы для рационального дизайна новых усовершенствованных катализаторов.

Ссылка на статью: <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/38291043/>