

洪勋——未来三年研究计划

一、未来三年研究计划的总体目标：

贵金属材料在催化、光学器件、电子器件、信息存储等领域有着广泛的应用。贵金属材料的光学、电学及催化性能依赖与其尺寸、形状和结构。特别的，贵金属材料在单原子或者几个原子层尺寸所展现的独特催化性能引起人们的广泛关注。未来三年，我们将围绕双金属材料原子精度控制合成和性能展开研究。拟开展的工作是在申请人最近的研究成果基础上(*J. Am. Chem. Soc.* 2015, 137, 14566, *J. Am. Chem. Soc.* 2016, 138, 13850)，基于表界面物理和化学原理，探索双金属材料单原子及单原子层精准合成方法，实现对双金属材料表界面原子及缺陷分布的有效控制。利用先进的球差电镜，结合三维成像技术和分析电子显微学方法高精度表征和分析所制备的原子精度控制合成的双金属材料。探索原子精度控制合成的双金属材料在催化、电催化等领域的应用，开发高效稳定并且降低贵金属用量的双金属催化剂并深入理解单原子(层)结构和性能之间的构效关系。在“探索及发展双金属原子精度可控合成方法学”、“研究双金属表面、界面、缺陷及元素原子级的分布及机理”、“探索新型具有单原子(层)表面的双金属材料在催化、电催化领域的应用”等方面开展研究工作，逐步实现各项研究目标。

二、具体研究内容：

1) 探索及发展双金属原子精度可控合成方法学。

过去二十多年来纳米合成技术的发展为原子精度控制合成提供

了基础。我们期望利用界面诱导沉积和原子级限域反应，制备出表面具有原子级分散金属的双金属材料。设计特定晶面的金属衬底表面，以之作为单原子或单原子层生长的界面。研究不同晶面表面沉积金属原子时的配位数与晶面指数（对应不同的表面原子密度和排列）的关系，并与表面原子(层)沉积的过电势(沉积难易程度)对应，结合不同的化学还原剂或电化学还原电位，实现双金属材料原子精度可控。进一步研究原子级不平整度的表面对单原子（层）材料的调控合成，利用超薄负载基底表面 1-3 个原子层的不平整度提供的原子级别限域反应场所实现单原子层到单原子的精准合成。此外，利用异种金属原子替代反应或表界面改性发展双金属材料通用合成方法。通过调节表面原子的配位环境，调节表面金属原子及电子结构。

2) 研究双金属表面、界面、缺陷及元素原子级的分布及机理。

近年来快速发展的电镜技术为研究双金属表面及界面原子级别的结构提供了可能。中国科学技术大学的电镜中心拥有国内最先进的球差电子显微镜，能够提供原子级别分辨的图像，而且其附带的电子能量损失谱能够在空间上给出原子级别的元素分布，可以对双金属材料表面、界面原子及各种缺陷、堆垛、偏聚等进行直接观测。我们推测单(层)原子覆盖的双金属纳米材料在表面及界面可能会观测到一些新颖的结构以及通常情况下体材料中不存在的相。此外，依托于中国科学技术大学同步辐射国家实验室能够提供XAFS等技术支持，实现对双金属精细结构的表征。详细分析双金属表面的几何和电子结构，

包括其配位情况、键长、键角等一系列精细结构。我们可以利用这样先进的技术去表征所得到的双金属精细结构，并结合实验结果，从原子层面去理解这种结构形成的规律及机理。此外，积极尝试可能的原位表征技术，如利用可与原位微观反应装置联用的高分辨透射电镜实现原位表征等。

3) 探索新型具有单原子(层)表面的双金属材料在催化、电催化领域的应用。

选取能源领域重要的催化及电催化反应，尝试从双金属表面单原子或单层金属原子的精细结构和金属间界面等因素针对活性、选择性、稳定性等重要数据进行评价。通过对Pd基双金属材料原子结构排列及原子配位的精确构筑，调控钯基双金属催化剂的催化性能，制备兼具高活性、高选择性优良钯基加氢催化剂。此外，对含Pt单原子（层）的双金属材料氧还原性能(ORR)进行测试，探索高效的降低Pt用量的电催化剂。选择具有表面单原子Pd或者单原子Cu的双金属催化剂等，测试其在CO₂电化学还原反应中的活性和选择性。探索Ru或者过渡金属单原子（层）覆盖的双金属材料在氧气析出反应中(OER)的活性。结合理论计算和实验结果，尝试解释单原子(层)及界面结构在反应过程中所起到的作用。

三、关键科学和技术问题

1) 原子级分散材料生长的物理化学规律和原理。

2) 单原子、单原子层及金属间界面结构的表征。

3) 催化剂构效关系的建立。

四、预期研究成果

本项目将发展2-3种双金属材料原子精度控制合成新方法，理解双金属材料原子精度结构的调控规律，合成多种新颖的表面含单(层)原子的双金属材料。阐明这类单原子(层)独特结构在催化及电催化反应中的作用，理解特殊表面结构和性能之间的关系。三年内，争取在双金属材料原子精度可控合成的研究上取得一系列进展，得到国内外同行的认可。培养研究生3-6名，发表有影响力的学术论文4-6篇，申请发明专利2-3项。