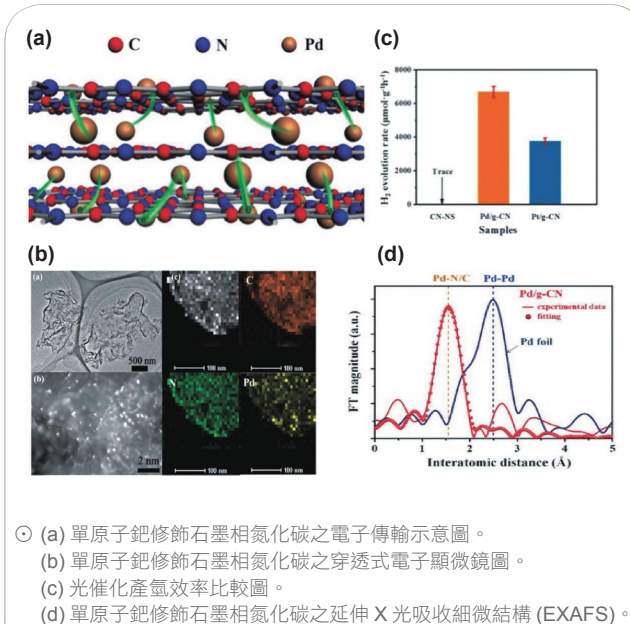


研究成果

單原子鈀修飾石墨相氮化碳於高效率光催化產氫之應用

台灣大學化學系陳浩銘教授的研究團隊與武漢理工大學余家國教授的研究團隊共同合作，通過浸漬熱擴散 - 光還原的方法同時在石墨相氮化碳 (graphitic carbon nitride) 層間嵌入及表面錨定單原子鈀。一方面利用層間橋聯的鈀原子建構電子快速傳遞垂直通道，促進光激發電子從體相往表面轉移；另一方面利用表面錨定的單原子鈀為活性位點，進一步捕捉電子並用於質子還原反應，此協同效應能有效減少石墨相氮化碳材料的助催化劑負載量並提高光催化產氫的穩定性。在光催化產氫的助催化劑中，鈀和鈀等貴金屬被證實具極高效率，然而，貴金屬昂貴的價格限制了其實際應用。因此，需要找出減少其負載量並保持其高效率的方法。單原子負載可使金屬催化劑的原子效率最大化，是一種十分有效的策略。近年來，單原子催化劑的研究逐步出現於氫化催化、電催化氧還原和光催化產氫等領域，因此，尋找合適的載體對穩定單個金屬原子具有重要的作用。由於石墨相氮化碳具有孤對電子和空腔結構，是理想的單原子金屬催化劑載體。對層狀材料來說，層間內建電場可以引導電子定向快速轉移。但石墨相氮化碳層間的凡得瓦力較弱，不利於層間的電子轉移，為提高光激發電荷轉移效率，需要在石墨相氮化碳層間和表面提供一驅動力來促進光激發電荷定向轉移，使其快速到達表面活性位點。此研究使用 TLS BL01C1 光束線。

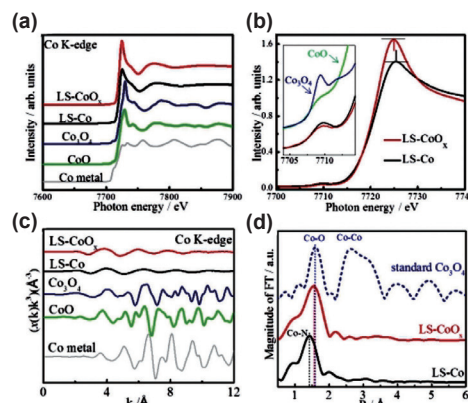


參考文獻：

S. Cao, H. Li, T. Tong, H.-C. Chen, A. Yu, J. Yu*, and H. M. Chen*, "Single-atom Engineering of Directional Charge Transfer Channels and Active Sites for Photocatalytic Hydrogen Evolution", *Adv. Funct. Mater.* **28**, 1802169 (2018).

高度分散無定型氧化鈷團簇析氧反應優化之 X 光吸收光譜研究

湖南大學化學生物傳感與計量學國家重點實驗室王雙印教授、西安交通大學動力工程多相流國家重點實驗室沈少華教授與淡江大學物理系董崇禮教授團隊共同合作研究，首次以空氣介質阻擋放電 (air dielectric barrier discharge, DBD) 電漿子的方法，合成高度分散無定型氧化鈷團簇，有利於析氧反應中氧化鈷的催化能力，並利用同步輻射技術來分析其優化機制。由於電催化反應發生在催化活性位點，想更進一步的了解鈷周圍的電子結構及配位數變化，由 X 光吸收光譜可以得到鈷的 K 吸收邊主要源於從鈷核層 1s 電子軌域躍遷到 4p 未佔據軌道。能量約在 7710eV 處出現的前置吸收峰值是電子由從 1s 躍遷至 3d 狀態。其中 1s-3d 並不是理想對稱的八面體偶極中允許的躍遷狀態。扭曲的 CoO_6 八面體結構中可能會產生與 4p 軌道所混成的鈷 3d 軌道，與八面體環境中的鈷相比，四面體環境中的鈷表現出更強的峰值。 Co_3O_4 表現出更加非中心對稱的局部結構，因此呈現出比 CoO 更強的峰前強度。在 LS- CoO_x 和 LS-Co 中只有約小於 3.0 Å 的鍵長強度；這表明鈷原子不是晶體結構。一般認為，LS-Co 約在 1.4 Å 的主峰為 Co^{III} -N 貢獻。值得注意的是，LS- CoO_x 的第一配位層峰寬比 LS-Co 的大，這意味著存在鈷氧化物而來自不同結構對稱性的不同 Co-O 鍵。結果表明氧化鈷團簇由具有 Co^{II} 和 Co^{III} 的無定形鈷基氧化物所組成。無定形鈷基氧化物可以促進電子和質子的傳輸；通過空氣 DBD 電漿處理形成的非晶 CoO_x 團簇可以改善電子傳導性，產生更多的電化學活性位點，進而優化 OER 的電催化活性。此研究使用 TLS BL17C1 光束線。



參考文獻：

D. Chen, C.-L. Dong*, Y. Zou*, D. Su*, Y.-C. Huang, L. Tao, S. Dou, S. Shen*, and S. Wang*, "In Situ Evolution of Highly Dispersed Amorphous CoO_x Clusters for Oxygen Evolution Reaction", *Nanoscale* **9**, 11969 (2017).