



催化表面物理化学的模型体系研究

黄伟新*

中国科学技术大学化学物理系 微尺度物质科学国家实验室(筹), 合肥 230026

*通讯作者, E-mail: huangwx@ustc.edu.cn

收稿日期: 2011-11-13; 接受日期: 2011-12-29; 网络版发表日期: 2012-03-08

doi: 10.1360/032011-743



摘要 催化表面物理化学主要是研究多相催化反应体系催化剂的表面结构-催化性能关系和催化反应机理从而获得原子分子水平上的理解, 为催化剂的改进和设计提供指导. 真实催化剂的结构复杂性和不均一性使得无法明确关联其结构和催化性能, 因此构筑结构均一的模型催化剂体系是进行催化表面物理化学研究的常用方法. 本文介绍了本课题组在催化表面物理化学模型体系研究中的研究理念, 综述了近 5 年来取得的研究进展. 我们将模型催化剂的概念从传统的基于单晶/单晶薄膜的模型催化剂拓展到基于纳米晶的模型催化剂, 由简单到复杂, 在不同层次构筑模型催化剂, 开展催化表面物理化学研究. 这种研究理念有可能实现在原子分子水平理解真实催化反应条件下的催化剂结构-催化性能关系和催化反应机理.

关键词

催化表面物理化学
构-效关系
催化反应机理
模型体系
单晶
纳米晶

1 引言

能源与环境是社会可持续发展面临的巨大挑战. 催化科学技术是迎接能源与环境挑战的关键科学技术之一, 而赢得这场挑战的催化科学技术的核心科学问题是研发具有高度专一性(高活性和高选择性)的新催化反应体系. 新催化反应体系的有效探索密切依赖于我们对相关催化反应体系的基础理解. 高度专一性催化反应体系对催化剂结构有非常严格的要求, 因此有效探索高度专一性新催化反应体系的前提之一就是必须在原子和分子水平上理解相关催化反应体系的催化反应机理和催化剂结构-性能关系, 从而设计出满足高度专一性催化反应要求的催化剂结构. 同时我们必须有能力控制合成出具有设计结构的均一催化剂.

多相催化反应总是在催化剂表面发生的, 催化剂的表面组成和结构(电子结构和几何结构)是影响其催化性能的主要因素^[1]. 因此, 多相催化基础研究

催生了催化化学与表面化学的交叉, 即催化表面物理化学, 此领域主要研究多相催化反应体系催化剂的表面结构-催化性能关系和表面催化反应机理. 多相催化反应催化剂一般是固体纳米粒子, 图 1 示意了影响固体纳米粒子催化性能的基本因素. 固体纳米粒子组成是决定其电子结构和催化性能的主要因素. 多组分固体纳米粒子的相邻组分会产生协同催化作用, 因此多组分固体纳米粒子的界面结构会显著影响其催化性能. 固体纳米粒子的形貌决定了其暴露晶面, 从而决定了其表面几何结构(原子排布方式和配位数). 氧化物纳米粒子的晶面不仅决定其表面几何结构, 而且还决定其表面组成(表面暴露离子的种类). 因此固体纳米粒子的形貌和暴露晶面也是决定其催化性能的主要因素. 固体纳米粒子尺寸也显著影响其催化性能. 一方面, 固体纳米粒子尺寸影响其分散度; 另一方面, 当尺寸小到一定尺度的时候, 固体纳米粒子会表现出宏观量子尺寸效应^[2], 此时尺寸



图1 影响固体纳米粒子催化性能的基本因素

的变化会影响其电子结构，从而影响其催化性能。

真实多相催化反应体系非常复杂，其催化表面物理化学研究具有很大的挑战性。首先，传统方法制备的固体催化剂中催化剂纳米粒子结构复杂性和不均一性使得无法将实验测得的催化剂活性和催化剂结构明确关联，阻碍了催化剂构-效关系的建立；其次，开展催化表面物理化学研究需要表面灵敏的研究手段^[3]。更为重要的是，多相催化反应大多在一定的温度和压强下进行，催化剂纳米粒子表面组成和结构往往会发生重构来采取对应于在反应条件下的热力学平衡组成和结构^[4-8]。因此催化表面物理化学需要发展在催化反应条件下能够原位动态研究催化剂表面结构和催化反应机理的研究方法^[9]。

针对催化剂纳米粒子结构复杂性和不均一性这一困难，催化表面物理化学研究经常采取结构均一明确的表面作为模型催化剂，这样就能明确地将催化剂表面结构和其催化性能关联起来。利用模型催化剂，结合20世纪60年代起不断发展的超高真空表面科学研究技术，是催化表面物理化学最有效的研究方法^[10]。传统模型催化剂体系是单晶，以不同米勒指数金属单晶表面为模型催化剂能够有效建立金属催化剂暴露晶面(表面几何结构)与其催化性能之间的关系，同时也能获得不同晶面上催化反应机理。德国马普学会 Fritz-Haber 研究所的 Gerhard Ertl 教授建立了模型催化剂体系表面化学研究方法体系，并实现了对合成氨和CO氧化等重要催化反应体系在原子分子层次的理解，从而获得了2007年诺贝尔化学奖^[11]。但氧化物单晶模型催化剂研究不是很广泛，因为氧化物通常为半导体，不适合电子激发或者检测

电子的超高真空表面科学研究技术，为克服这个困难，金属基底表面控制生长的氧化物单晶薄膜被成功发展成为氧化物催化剂的模型体系^[12-14]，但如何控制制备暴露不同晶面的氧化物单晶薄膜是该模型催化剂体系需要解决的难题。同时，氧化物单晶薄膜负载的金属(氧化物)纳米粒子也被发展成为负载型金属(氧化物)纳米粒子的模型催化剂^[15-17]，但必须要能够控制金属(氧化物)纳米粒子的结构均一性，否则这类模型催化剂与真实催化剂比较没有明显的优势。另一方面，氧化物单晶薄膜负载的金属纳米粒子模型催化剂和金属单晶负载的氧化物纳米粒子倒载模型催化剂(inverse model catalyst)已经被报道能够有效证明氧化物负载金属催化剂体系中金属-氧化物界面为活性中心的界面催化反应机理^[18, 19]。

2 我们的研究理念

虽然单晶/单晶薄膜模型催化剂体系表面物理化学研究能够有效建立催化剂暴露晶面(表面组成和几何结构)与其催化性能之间的关系和获得不同晶面上催化反应机理，但该类模型催化剂体系与真实催化剂之间存在所谓的“材料鸿沟”。真实催化剂是暴露多种晶面的纳米粒子，而单晶/单晶薄膜模型催化剂是暴露单一晶面的二维表面。因此单晶/单晶薄膜模型催化剂不涉及尺寸的概念，而且也无法体现催化反应过程中催化剂纳米粒子相邻晶面之间的相互影响。在催化反应过程中，催化剂纳米粒子暴露的不同晶面会表现出不同的催化活性，从而表面吸附物种在具有不同催化活性的相邻晶面会形成浓度差，驱动表面吸附物种在相邻晶面之间的扩散和反应，影响所涉及晶面的催化反应动力学。因此催化剂纳米粒子催化反应动力学并不等于其所暴露各个晶面催化反应动力学的简单加和^[20-24]。单晶/单晶薄膜负载的纳米粒子模型催化剂能够在一定程度上克服“材料鸿沟”，但必须要能够控制纳米粒子的结构均一性才能有效关联催化剂的结构和性能。同时，传统模型催化剂的催化表面物理化学研究通常在真空和超高真空下进行，而真实催化反应的压力是常压甚至高压，这种不同研究条件产生的“压力鸿沟”经常导致传统模型催化剂催化表面物理化学研究结果不能够有效推广到真实催化反应体系。

过去十几年来, 无机纳米材料可控合成方法的迅速发展实现了尺寸和形貌均一的催化材料纳米粒子如 Au、Pd、Pt 和过渡金属氧化物的控制合成^[25-28]. 结构均一纳米催化材料为催化表面物理化学研究提供了新模型催化剂体系, 而且结构均一纳米催化材料作为模型催化剂能够体现影响材料催化性能的全部基本因素, 也能够真实催化反应条件下开展催化表面物理化学研究. 因此, 以结构均一纳米催化材料作为模型催化剂能够克服催化表面物理化学模型体系研究中长期存在的“压力鸿沟”和“材料鸿沟”, 可以尽可能在接近真实催化剂的条件下开展催化表面物理化学研究. 目前结构均一纳米催化材料体系还不够多, 并且金属纳米材料合成过程经常需要引入表面活性剂, 表面活性剂对金属纳米材料表面结构的影响必须考虑^[29-31].

图 2 给出了我们开展催化表面物理化学模型体系研究的研究理念: 将模型催化剂的概念从传统的基于单晶/单晶薄膜的模型催化剂拓展到基于纳米晶的模型催化剂, 针对目标催化反应体系, 由简单到复杂, 在不同层次构筑模型催化剂, 开展催化表面物理化学研究, 并与理论计算合作, 在原子和分子层次理解催化剂的构-效关系和催化反应机理, 为高效催化材料的结构设计提供指导.

3 近期研究进展

基于图 2 的研究理念, 我们研究组自 2005 年起开展了负载型金纳米催化剂催化 CO 低温氧化反应体系、氧化物表面羟基反应性能和氧化亚铜纳米晶等体系的催化表面物理化学, 取得了较好进展.

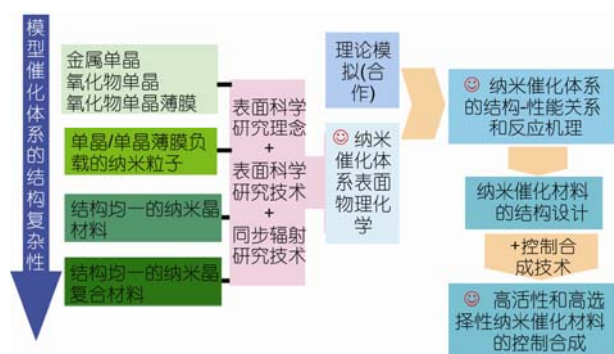


图 2 基于单晶和纳米晶模型体系的催化表面物理化学研究思路

3.1 负载型金纳米催化剂催化 CO 低温氧化反应体系

Haruta 教授于 1987 年首先报道了过渡金属氧化物负载的金纳米粒子能够在室温催化 CO 氧化反应, 并且发现金纳米粒子尺寸与催化剂催化活性密切相关^[32, 33]. 该发现彻底颠覆了“金是催化惰性的”的传统观点, 引发了负载型金纳米粒子催化体系的研究热潮, 以负载型金纳米粒子为催化剂的新催化反应体系不断被发现, 从 CO 低温氧化反应到醇选择氧化反应、丙烯环氧化反应、以及加氢反应等^[34]. 负载型金纳米粒子催化表面物理化学也成为研究热点. 已有的研究表明, 负载型金纳米粒子催化反应体系非常复杂, 对其催化活性具有显著影响的因素包括金纳米粒子尺寸/形貌、金纳米粒子-载体相互作用、载体组成/结构、以及反应气氛中的微量水, 即使对最简单的 CO 低温催化氧化反应机理也没有达到共识^[35]. 我们的研究目的是通过构筑不同层次的模型催化剂体系, 为全面理解负载型金纳米粒子催化表面物理化学提供系统的实验证据. 我们已采用的模型催化剂包括 Au 单晶、氧化物薄膜负载 Au 纳米粒子、Au 纳米晶以及 Au/SiO₂ 催化剂^[36-49]. 利用 Au/SiO₂ 催化剂为模型体系是我们研究的一个特色. SiO₂ 是惰性载体, 不参与催化反应, 以其作为载体能够很好地反映金纳米粒子的结构-本征催化活性关系, 同时通过将金纳米粒子和活性氧化物负载到 SiO₂ 表面, 也能够很好地研究金纳米粒子-活性氧化物之间的相互作用(图 3).

随着尺寸的降低, 金纳米粒子表面暴露金原子配位饱和程度降低, 表现出更强的吸附和催化活性, 同时配位不饱和金原子的密度在增加, 这被认为是尺寸对金纳米粒子催化活性影响的主要因素之一^[50]. 我们以同时暴露(111)平台(Au 原子配位数为 9)和(111)台阶(Au 原子配位数为 7)的 Au(997)单晶作为

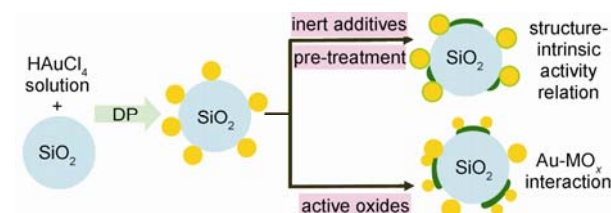


图 3 Au/SiO₂ 模型催化剂的研究思路

模型催化剂, 比较了配位环境相同但配位数不同的 Au 原子的吸附和反应性能. 结果表明, (111)台阶上的 Au 原子表现出比(111)平台上的 Au 原子高的吸附和活化小分子的能力, 直接证明了配位数的降低显著提高 Au 原子的吸附和反应性能^[36, 37]. 我们在 Au/SiO₂ 模型催化剂体系也提供了大尺寸金纳米粒子表面配位不饱和金原子的存在能够室温催化 CO 氧化反应的实验证据^[38]. 沉淀沉积法(DP)制备的 Au/SiO₂ 催化剂中仅存在大尺寸金纳米粒子, 在室温下不能催化 CO 低温氧化反应. 研究发现, 在制备过程中加入 NaNO₃ 助剂可以在金纳米粒子尺寸不发生变化的情况下诱导 Au/SiO₂ 催化剂表现出一定的室温催化 CO 氧化反应活性. 综合多种结构表征结果, 我们认为催化剂制备过程中 NO₃⁻ 离子能够和金纳米粒子相互作用, 诱导大尺寸金纳米粒子表面再构形成配位不饱和程度高的金原子, 从而表现出室温催化 CO 氧化反应活性. 该结果表明配位不饱和程度高的金原子不需要载体的参与, 能够单独催化 CO 低温氧化反应.

金纳米粒子的尺寸也影响其电子结构. 随着尺寸的降低, 金纳米粒子芯电子结合能向高结合能方向位移^[51], 已经有实验结果观察到金纳米粒子由金属向半导体转变的临界尺度与其催化 CO 低温氧化活性的关联^[52]. 金纳米粒子与氧化物载体之间相互作用对金纳米粒子电子结构也有较大影响^[53-55]. 我们通过溶液法制备了十二烷基苯磺酸根离子保护的不同尺寸的金溶胶, 观察到十二烷基苯磺酸根离子向金溶胶转移电荷. 对于小尺寸金溶胶, 转移电荷局域于吸附十二烷基苯磺酸根离子的金原子周围; 对于大尺寸金溶胶, 转移电荷离域于整个金溶胶^[39]. 该结果表明小尺寸金溶胶和大尺寸金溶胶具有不同的导电性, 小尺寸金溶胶表现出一定的半导体性质^[39]. 我们对比研究了化学计量比(873 K 退火)和部分还原(1173 K 退火)金红石相 TiO₂(110)-(1×1)表面上金团簇的生长及其电子结构(图 4)^[40]. 在化学计量比表面, 金团簇 4f_{7/2} 结合能受其尺寸影响, 随尺寸增加, 结合能单调降低. 但在部分还原表面, 金团簇结合能不仅受尺寸影响, 还受表面氧空位与金团簇之间电荷转移的影响, 随尺寸增加, 部分还原表面上金团簇 4f_{7/2} 结合能的变化趋势与化学计量比表面上的变化趋势完全不同. 我们提供了明确的 X 射线光电子能谱实验证据来证明金团簇成核于部分还原 TiO₂(110)-(1×1)

表面氧空位, 并且表面氧空位向金团簇转移电荷; 同时紫外光电子能谱实验结果也支持了 X 射线光电子能谱实验结果^[41]. 通过在 SiO₂ 表面先修饰少量的活性氧化物 ZnO 和 CeO₂, 再利用沉淀沉积法负载金, 我们发现金纳米粒子成核于 ZnO 和 CeO₂ 的表面氧空位, 并且金-表面氧空位之间存在强相互作用能够有效抑制金纳米粒子的长大, 活性氧化物表面负载金纳米粒子尺寸明显小于 SiO₂ 表面负载金纳米粒子. 因此表面修饰有活性氧化物的 Au/SiO₂ 催化剂表现出较好的催化 CO 低温氧化活性^[42, 43]. 当 SiO₂ 表面先修饰 Co(OH)₂ 时, 再利用沉淀沉积法负载金, 我们发现金前驱体与表面羟基相互作用发生成核长大, 并且优先于团簇羟基相互作用形成大尺寸金纳米粒子, 而后才与孤立羟基相互作用形成小尺寸金纳米粒子. 对于这个体系, 低金负载量催化剂没有催化 CO 低温氧化活性, 而高金负载量有^[44, 45].

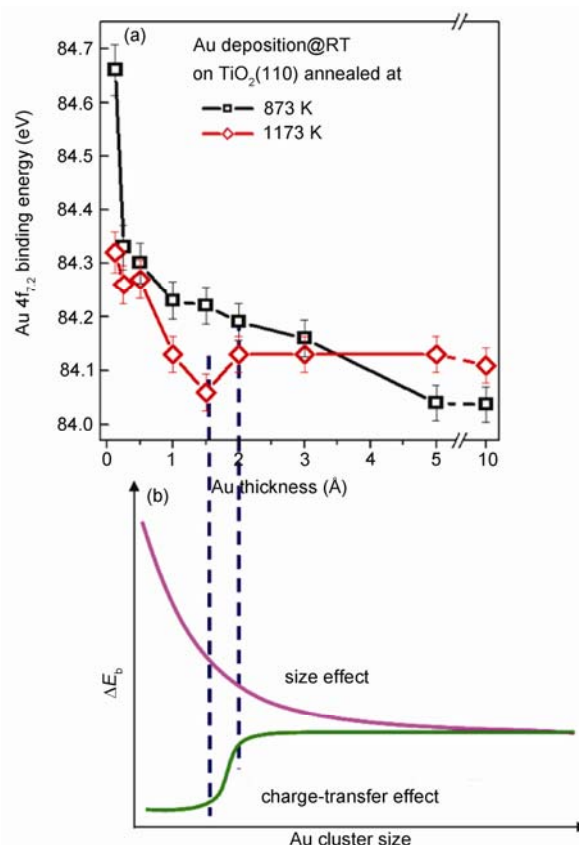


图4 化学计量比(873 K 退火)和部分还原(1173 K 退火)金红石相 TiO₂-(1×1)表面上不同厚度金团簇 4f_{7/2} 结合能(a)及金团簇 4f_{7/2} 结合能与其厚度的关系示意图(b)

Au/SiO₂ 模型催化剂体系的特点就是能够反映金纳米粒子的本征催化活性. 我们以 C₆₀ 为助剂成功地利用沉淀沉积法在 SiO₂ 表面制备出尺寸在 4~5 nm 左右的金纳米粒子, 该催化剂与 Au/SiO₂ 催化剂相比, 表现出优越的高温催化 CO 氧化活性(>100 °C), 但没有室温活性^[46]. 这表明金纳米粒子表现出本征催化室温 CO 氧化活性的临界尺寸要小于 4 nm. 同时我们发现在 Au/SiO₂ 催化剂中加入 NaOH 助剂能够诱导大尺寸金纳米粒子在室温活化分子氧从而催化 CO 氧化反应. 与理论计算结合, 我们给出了表面 OH 引发的 Au(111) 表面催化 CO 氧化的反应机理^[47]. 非常有趣的是, 在该催化反应机理中, 我们发现了热力学控制的金表面催化 CO 低温氧化反应的中毒机制.

目前我们通过构筑不同层次的模型催化剂在负载型金纳米催化剂体系表面物理化学已经研究取得一定进展, 今后将进一步完善体系, 以全面系统理解该催化反应体系的结构-性能关系并澄清其催化反应机理. 同时我们也将反应体系从 CO 低温氧化反应拓展到其他催化反应.

3.2 氧缺陷浓度控制的氧化物表面羟基反应性能

过渡金属氧化物在多相催化反应体系有着广泛的应用, 既可以作为载体, 也可以作为催化剂. 氧化物氧缺陷和表面羟基是影响氧化物催化表面物理化学的重要因素. 该体系模型催化表面物理化学研究的难点在于: (1) 如何构筑氧缺陷浓度可控的氧化物模型催化剂; (2) 如何在氧化物模型催化剂表面控制制备表面羟基. 我们以 Pt(111) 表面外延生长的 FeO(111) 单层薄膜、Fe₃O₄(111) 薄膜和 α -Fe₂O₃(0001) 薄膜为模型催化剂开展了有益的探索^[56-61].

K 掺杂的氧化铁催化乙苯直接脱氢至苯乙烯是一个工业化反应. 以 Pt(111) 表面外延生长的各种铁氧化物模型催化剂的表面物理化学研究结果指出, 乙苯在 α -Fe₂O₃(0001) 表面脱氢生成苯乙烯和两个表面羟基, 但由于铁氧化物模型催化剂表面惰性不能在超高真空条件下解离 H₂ 生成表面羟基, 因此表面羟基的反应途径没有明确的实验结果^[62]. 从反应途径来讲, 表面羟基可以反应生成 H₂, 也可以反应生成 H₂O, 同时产生一个表面氧缺陷. 利用气相原子氢的吸附在超高真空条件下, 可在 α -Fe₂O₃(0001) 表面成功制备表面羟基, 表面羟基反应既可以生成水, 也可以生成 H₂^[56, 58]. 该结果直接表明化学计量比

α -Fe₂O₃(0001) 表面不可能是乙苯直接脱氢至苯乙烯的铁氧化物催化剂活性表面.

Pt(111) 表面外延生长的 FeO(111) 单层薄膜由一层 Fe(II) 离子和一层 O 离子(表面)组成, 由于不存在体相晶格氧的扩散, 表面氧缺陷形成之后能够稳定存在, 非常适合于研究氧化物表面氧缺陷对其表面物理化学性能影响. 我们发现 FeO(111) 表面氧缺陷浓度能够控制其表面羟基的反应性能(图 5)^[57, 60]. 表面温度为 130 K 时, 化学计量比表面上表面羟基能够与气相原子氢反应生成吸附 H₂O, 加热时表面羟基选择反应生成 H₂O, 形成氧缺陷; 在有氧缺陷表面, 生成 H₂O 的反应受到抑制, 特别是在 FeO_{0.75}(111) 表面, 表面羟基不与气相原子氢反应生成吸附 H₂O, 而且加热时表面羟基选择反应生成 H₂, 即 FeO_{0.75}(111) 表面具有一定的抗还原性. 理论计算结果也支持了此实验结果, 在 FeO(111) 表面热力学有利的反应是两个羟基反应生成 H₂O 和一个氧缺陷, 而在 FeO_{0.75}(111) 表面热力学有利的反应则为两个羟基反应生成 H₂. 因此 FeO(111) 单层薄膜表面氧缺陷浓度控制其表面羟基的反应性能. 如果把氧缺陷当成反应物种之一, 对于两个羟基反应生成 H₂O 和一个氧缺陷的反应, FeO(111) 单层薄膜表面氧缺陷浓度的增加实际上是增加了产物的浓度, 从而抑制正向化学反应. 具有一定抗还原性 FeO_{0.75}(111) 表面的存在表明, 表面部分还原的 α -Fe₂O₃(0001) 表面有可能是乙苯直接脱氢至苯乙烯的铁氧化物催化剂活性表面, 在这个表面羟基反应选择性生成 H₂.

通过控制 Fe 的覆盖度和氧化程度, 我们在 Pt(111) 表面成功制备了具有不同氧缺陷浓度的 FeO_x(111) 单层岛(FeO_x(111)/Pt(111) 倒载模型催化剂),

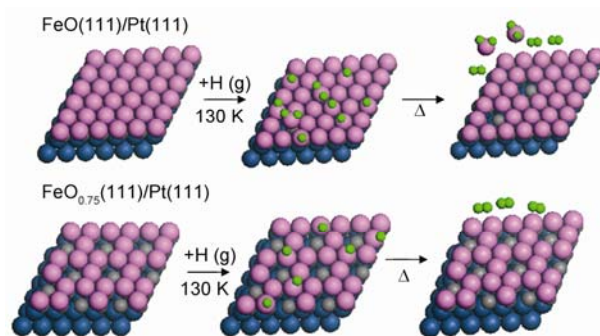


图 5 氧缺陷控制的 FeO_x(111) 单层薄膜表面羟基的反应性能

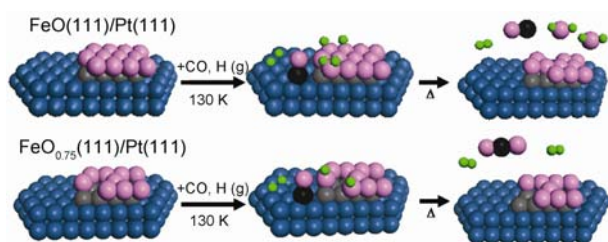


图6 氧缺陷控制的 $\text{FeO}_x(111)$ 单层纳米岛表面羟基的界面反应性能

从而提供了研究 Pt-FeO 界面为催化活性中心的模型催化剂(图 6). 过渡金属氧化物负载的 Pt 纳米粒子催化剂是催化低温水汽变换反应和富氢条件下 CO 优先氧化反应的催化剂, 其中可能的反应机理之一就是 Pt 表面吸附的 CO 与氧化物表面羟基在金属-氧化物发生界面反应生成 CO_2 ^[63-66], 但缺乏明确的实验证据. 在 $\text{FeO}_x(111)/\text{Pt}(111)$ 倒载模型催化剂, CO 仅吸附在 Pt(111)表面, 利用气相原子氢在 $\text{FeO}_x(111)$ 表面选择性制备羟基, 发现加热到室温以上有 CO_2 的生成, 为 Pt 表面吸附的 CO 与氧化物表面羟基反应生成 CO_2 的界面反应机理提供了坚实的实验证据^[59]. $\text{FeO}_x(111)$ 单层岛表面羟基的反应性能也受氧缺陷浓度控制^[61]. 在化学计量比 $\text{FeO}(111)$ 单层岛表面, 羟基仅反应生成 H_2O , 产生氧缺陷; 随氧缺陷浓度增加, 生成 H_2O 的反应通道受到抑制, 生成 H_2 和 CO_2 的反应通道被打开. 该实验结果表明, 低温水汽变换反应和富氢条件下, CO 优先氧化反应过渡金属氧化物负载的 Pt 纳米粒子催化剂的活性结构可能是 Pt-表面部分还原 FeO 之间的界面.

总之, 利用气相原子氢, 我们在超高真空条件下, 成功地在惰性氧化物模型催化剂表面制备出表面羟基, 并提出了表面氧缺陷浓度控制表面羟基反应性能的新概念. 目前我们正在将该概念拓展到其他过渡金属氧化物模型催化剂体系.

3.3 晶面依赖的 Cu_2O 纳米晶催化表面物理化学

铜氧化物(Cu_2O 和 CuO)在多相催化中具有较广泛的应用, 是水汽变化、丙烯部分氧化反应和 CO 加氢反应的催化剂的主要组成之一^[63-65], 但在催化反应过程中活性相(Cu、Cu(I)、Cu(II))尚不明确. 铜氧化物单晶和单晶薄膜的制备比较困难, 但最近无机纳米材料合成技术的发展可以控制制备出不同形貌

的均一面心立方 Cu_2O 纳米晶^[66, 67]. 图 7 给出了我们根据文献[66, 67]合成出来的不同形貌的均一面心立方 Cu_2O 纳米晶的扫描电镜图, 包括暴露{100}面的立方体、PVP 保护的暴露{111}面的八面体、油酸(OA)保护的暴露{111}面的八面体、OA 保护的暴露{110}面的十二面体、PVP 保护的暴露{111}和{100}面的削角八面体和 OA 保护的暴露{111}和{110}面的削边八面体. 图 8 给出了优化过的 $\text{Cu}_2\text{O}(100)$ 、(111)和(110)晶面的表面组成和结构. $\text{Cu}_2\text{O}(100)$ 晶面最外层暴露配位不饱和氧离子(红色), 第二层是配位饱和 Cu(I)离子(粉红色), 最近距离的 Cu(I)-O 的键长是 1.76 Å. $\text{Cu}_2\text{O}(111)$ 晶面最外层暴露配位不饱和氧离子; 第二层由配位饱和 Cu(I)离子和配位不饱和 Cu(I)离子(绿色)组成, 配位饱和 Cu(I)离子和配位不饱和 Cu(I)离子在 z 轴方向上相差 0.23 Å, 最近距离配位饱和 Cu(I)-O 的键长是 1.83 Å, 最近距离配位不饱和 Cu(I)-O 的键长是 1.91 Å. $\text{Cu}_2\text{O}(111)$ 晶面最外层暴露配位不饱和氧离子和配位饱和 Cu(I)离子; 第二层是配位饱和 Cu(I)离子, 最近距离的 Cu(I)-O 的键长是 1.82 Å. 我们以这些结构均一纳米晶为模型催化剂开展了晶面依赖的 Cu_2O 催化表面物理化学研究^[68-72].

氧化物的氧化还原性能与其催化性能关系密切. 我们研究了 Cu_2O 立方体和 PVP 保护的 Cu_2O 八面体的还原性能^[68]. 不论是以 H_2 还是 CO 为还原剂, Cu_2O 八面体的还原性能远远优于 Cu_2O 立方体, 表明 $\text{Cu}_2\text{O}(111)$ 晶面的还原性能远远优于 $\text{Cu}_2\text{O}(100)$ 晶面. 理论计算结果表明, 暴露配位不饱和 Cu(I)离子的 $\text{Cu}_2\text{O}(111)$ 晶面对气相 H_2 和 CO 的吸附和活化能力远强于 $\text{Cu}_2\text{O}(100)$ 晶面. 由于气相 H_2 和 CO 的吸附和活化是还原反应的第一步, 因此更强的吸附和活化气相 H_2 和 CO 导致更好的还原性能. 进一步对比研究 PVP 和 OA 保护的 Cu_2O 八面体的还原性能^[71], 我们发现, 保护剂对还原反应的抑制作用不仅与保护剂种类有关, 还与还原剂种类有关. OA 的抑制作用要强于 PVP, 而 CO 为还原剂的还原反应受到的抑制作用要强于 H_2 , 这是因为 H_2 分子体积要远小于 CO. 同时我们还对比研究了暴露单一晶面和两种晶面的 Cu_2O 纳米晶还原行为^[71], 具有不同还原性能的相邻晶面之间存在耦合, 如削角八面体上{100}晶面的还原温度远低于纳米立方体. 这些结果第一次在粉末催化剂体系提供了催化剂纳米粒子催化反应动力学并不等于其所暴露各个晶面催化反应动力学的简单

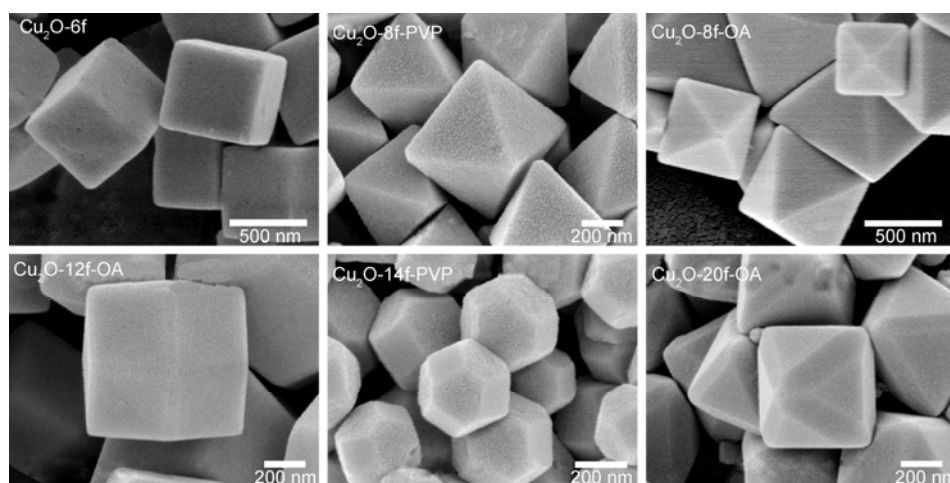


图 7 不同形貌的均一面心立方 Cu_2O 纳米晶的扫描电镜图

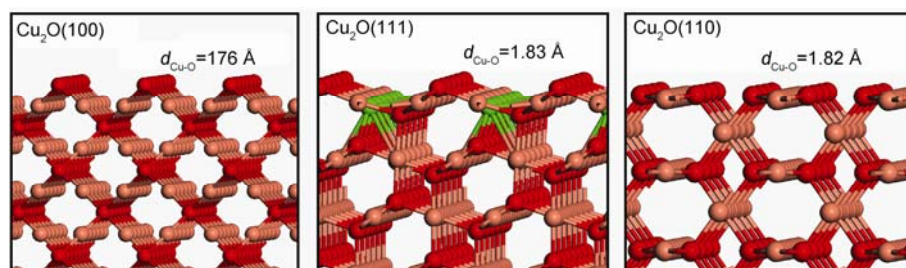


图 8 Cu_2O (100)、(111)和(110)面的表面组成和结构

加和^[20-24]的实验证据。

液-固界面反应也是固体表面反应性能的一种体现。我们对比研究了不同形貌 Cu_2O 纳米晶在酸性溶液中的氧化溶解反应行为($2\text{Cu}_2\text{O}(\text{s}) + \text{O}_2 + 8\text{H}^+ \rightarrow 4\text{Cu}^{2+} + 4\text{H}_2\text{O}$)^[69]和在氨水溶液中的配位氧化溶解反应/沉淀反应行为($2\text{Cu}_2\text{O}(\text{s}) + \text{O}_2 + 16\text{NH}_4^+ + 8\text{OH}^- \rightarrow 4[\text{Cu}(\text{NH}_3)_4]^{2+} + 12\text{H}_2\text{O}$; $[\text{Cu}(\text{NH}_3)_4]^{2+} + 2\text{OH}^- \rightarrow 2\text{Cu}(\text{OH})_2(\text{s}) + 4\text{NH}_3$)^[70]。结果表明,不同形貌的 Cu_2O 在两种反应中表现出相同的稳定性顺序: $\{100\} \gg \{111\} > \{110\}$ 。该稳定性顺序与 Cu_2O 不同晶面表面的 $\text{Cu}(\text{I})-\text{O}$ 键长顺序一致。对于在氨水溶液中的配位氧化溶解反应/沉淀反应,我们发现第二步沉淀反应生成 $\text{Cu}(\text{OH})_2$ 沉淀的成核位受到 Cu_2O 纳米晶表面组成和结构的影响。对于 Cu_2O 立方体,第二层的 $\text{Cu}(\text{I})$ 离子发生配位氧化溶解反应后,断裂 $\text{Cu}(\text{I})-\text{O}$ 键,释放出最外层 O^- 负离子同时发生水合生成 OH^- 离子,因此 $[\text{Cu}(\text{NH}_3)_4]^{2+}$ 和 OH^- 立即进行沉淀反应,生成的 $\text{Cu}(\text{OH})_2$ 沉淀成核于纳米晶表面;但对于 Cu_2O 立方体,第二层的配位不饱和 $\text{Cu}(\text{I})$ 离子发生

配位氧化溶解反应后并没有导致任何 $\text{Cu}(\text{I})-\text{O}$ 键的断裂,生成的 $[\text{Cu}(\text{NH}_3)_4]^{2+}$ 可以扩散至溶液相进行沉淀反应。

以 CO 氧化为探针反应研究了晶面对 Cu_2O 纳米晶催化性能的影响^[72]。结果表明, Cu_2O 立方体和八面体在 CO 氧化反应过程中均发生原位表面重构形成 CuO 薄膜活性结构,但 Cu_2O 立方体表面 CuO 薄膜催化 CO 氧化反应的表观活化能远高于 Cu_2O 八面体表面 CuO 薄膜。这说明在相同条件下, Cu_2O 立方体和八面体再构形成的 CuO 薄膜具有不同的表面结构和 CO 催化氧化反应机理。理论计算结果和实验结果一致。催化剂初始表面结构与重构表面结构之间存在关联,可以通过控制初始表面结构来控制催化剂的重构表面结构和催化行为。多相催化反应过程中纳米结构催化剂表面重构是普遍接受的概念^[4-8],我们研究提出了“晶面控制的催化剂表面重构和催化性能”的新概念,为高效纳米催化剂的结构设计提供了新思路。

晶面依赖的氧化物催化剂的催化性能是较新的概念^[73]。我们以 Cu_2O 纳米晶为模型催化剂,较系统

地阐述了该概念. 相关工作还在开展之中.

4 总结与展望

多相催化表面物理化学研究是具有挑战性的基础研究工作, 但对高度专一性新催化反应体系的研究非常关键. 我们将模型催化剂的概念从传统的基

于单晶/单晶薄膜的模型催化剂拓展到基于纳米晶的模型催化剂, 由简单到复杂, 在不同层次构筑模型催化剂, 系统地开展催化表面物理化学研究. 基于该研究理念的催化表面物理化学模型体系研究有可能实现在原子分子水平理解真实催化反应条件下的催化剂结构-催化性能关系和催化反应机理, 为高效纳米催化材料的结构设计提供指导.

致谢 感谢国家自然科学基金(20503027, 20773113, 20973161, 21173204)、中国科学院、教育部创新团队(IRT0756)、中国科学技术大学和中国科学院-德国马普学会伙伴小组对本项目的资助.

参考文献

- 1 Sormojai GA. *Introduction to Surface Chemistry and Catalysis*. John Wiley & Sons, 1994
- 2 张立德, 牟季美. 纳米材料学. 沈阳: 辽宁科学技术出版社, 1994
- 3 Ertl G, Küppers J. *Low Energy Electrons And Surface Chemistry*. Wiley-VCH Verlag GmbH, 1986
- 4 Tao F, Dag S, Wang L, Liu Z, Butcher DR, Bluhm H, Salmeron M, Somorjai GA. Break-up of stepped platinum catalyst surfaces by high CO coverage. *Science*, 2010, 327: 850–853
- 5 Henry CR. Surface studies of supported model catalysts. *Surf Sci Rep*, 1998, 31: 231–325
- 6 Nolte P, Stierle A, Jin-Phillipp NY, Kasper N, Schulli TU, Dosch H. Shape changes of supported Rh nanoparticles during oxidation and reduction cycles. *Science*, 2008, 321: 1654–1658
- 7 Zhang J, Sasaki K, Sutter E, Adzic RR. Stabilization of platinum oxygen-reduction electrocatalysts using gold clusters. *Science*, 2007, 315: 220–222
- 8 Tao F, Grass ME, Zhang Y, Butcher DR, Renzas JR, Liu Z, Chung JY, Mun BS, Salmeron M, Somorjai GA. Reaction-driven restructuring of Rh-Pd and Pt-Pd core-shell nanoparticles. *Science*, 2008, 322: 932–934
- 9 Tao F, Salmeron M. In-situ studies of chemistry and structure of materials in reactive environments. *Science*, 2011, 331: 171–174
- 10 Sinfelt JH. Role of surface science in catalysis. *Surf Sci*, 2004, 500: 923–946
- 11 Ertl G. Reactions of surfaces: From atoms to complexity. *Angew Chem Int Ed*, 2008, 19: 3524–3535
- 12 Freund HJ, Goodman DW. Ultrathin oxide films. In: *Handbook of Heterogeneous Catalysis*. Ertl G, Knözinger H, Schüth F, Eds. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. 2008, 2nd ed. vol. 3: 1309–1338
- 13 Chen MS, Goodman DW. Ultrathin, ordered oxide films on metal surfaces. *J Phys: Condensed Matter*, 2008, 20: 264013
- 14 Freund HJ, Pacchioni G. Oxide ultra-thin films on metals: New materials for the design of supported metal catalysts. *Chem Soc Rev*, 2008, 37: 2224–2242
- 15 Freund HJ. Clusters and islands on oxides: From catalysis via electronics and magnetism to optics. *Surf Sci*, 2004, 500: 271–299
- 16 Chen MS, Goodman DW. Catalytically active gold on ordered titania supports. *Chem Soc Rev*, 2008, 37: 1860–1870
- 17 Freund HJ. Model studies in heterogeneous catalysis. *Chem Euro J*, 2010, 16: 9384–9397
- 18 Rodriguez RA, Ma S, Liu P, Hrbek J, Evans J, Pérez M. Activity of CeO_x and TiO_x nanoparticles grown on Au(111) in the water-gas shift reaction. *Science*, 2007, 318: 1757–1760
- 19 Fu Q, Li WX, Yao YX, Liu HY, Su HY, Ma D, Gu XK, Chen LM, Wang Z, Zhang H, Wang B, Bao XH. Interface-confined ferrous centers for catalytic oxidation. *Science*, 2010, 328: 1141–1144
- 20 Gorodetskii V, Lauterbach J, Rotermund HH, Block JH, Ertl G. Coupling between adjacent crystal planes in heterogeneous catalysis by propagating reaction–diffusion waves. *Nature*, 1994, 370: 276–279
- 21 Sander M, Imbihl R, Ertl G. Kinetic oscillations in catalytic CO oxidation on a cylindrical Pt single crystal surface. *J Chem Phys*, 1992, 97: 5193–5204
- 22 Huang WX, Zhai RS, Bao XH. Coupling between adjacent crystal planes during CO+O_{ad} reaction on a defective Pd (100) surface. *Langmuir*, 2001, 17: 3629–3634
- 23 Huang WX, Bao XH, Rotermund HH, Ertl G. CO adsorption on the O-saturated Ag/Pt (110) composite surface: Direct observation of the

- diffusion of adsorbed CO from strongly bound Pt sites to weakly bound Ag sites. *J Phys Chem B*, 2002, 106: 5645–5647
- 24 Huang WX, Bao XH. On the propagation rate of the chemical waves observed during the course of CO oxidation on a Ag/Pt (110) composite surface. *J Phys Chem B*, 2004, 108: 8390–8396
 - 25 Xia YN, Xiong YJ, Lim B, Skrabalak SE. Shape-controlled synthesis of metal nanocrystals: Simple chemistry meets complex physics? *Angew Chem Int Ed*, 2009, 48: 60–103
 - 26 Burda C, Chen XB, Narayanan R, El-Sayed MA. Chemistry and properties of nanocrystals of different shapes. *Chem Rev*, 2005, 105: 1025–1102
 - 27 Lee K, Kim M, Kim H. Catalytic nanoparticles being facet-controlled. *J Mater Chem*, 2010, 20: 3791–3798
 - 28 Somorjai GA, Frei H, Park JY. Advancing the frontiers in nanocatalysis, biointerfaces, and renewable energy conversion by innovations of surface techniques. *J Am Chem Soc*, 2009, 131: 16589–16605
 - 29 Tsunoyama H, Ichikuni N, Sakurai H, Tsukuda T. Effect of electronic structures of Au clusters stabilized by poly(*N*-vinyl-2-pyrrolidone) on aerobic oxidation catalysis. *J Am Chem Soc*, 2009, 131: 7086–7093
 - 30 Marshall ST, O'Brien M, Oetter B, Corpuz A, Richards RM, Schwartz DK, Medlin JW. Controlled selectivity for palladium catalysts using self-assembled monolayers. *Nat Mater*, 2010, 9: 853–858
 - 31 Quintanilla A, Butselaar-Orthlieb VCL, Kwakernaak C, Sloof WG, Kreutzer MT, Kapteijn F. Weakly bound capping agents on gold nanoparticles in catalysis: Surface poison? *J Catal*, 2010, 271, 104–114
 - 32 Haruta M, Yamada N, Kobayashi T, Iijima S. Gold catalysts prepared by coprecipitation for low-temperature oxidation of hydrogen and of carbon monoxide. *J Catal*, 1989, 115: 301–309
 - 33 Haruta M, Tsubota S, Kobayashi T, Kageyama H, Genet MJ, Delmon B. Low-temperature oxidation of CO over gold supported on TiO₂, Alpha-Fe₂O₃, and Co₃O₄. *J Catal*, 1993, 144: 175–192
 - 34 Hashmi ASK, Hutchings GJ. Gold catalysis. *Angew Chem Int Ed*, 2006, 45: 7896–7936
 - 35 Haruta M. Role of perimeter interfaces in catalysis by gold nanoparticles. *Farad Discuss*, 2011, 152: 11–32
 - 36 Zhang YL, Wu ZF, Chen BH, Xu LS, Pan HB, Ma YS, Jiang ZQ, Zhu JF, Huang WX. Generating oxygen adatoms on Au(997) by thermal decomposition of NO₂. *Chinese Sci Bull*, 2010, 55: 3889–3893
 - 37 Wu ZF, Ma YS, Zhang YL, Xu LS, Chen BH, Yuan Q, Huang WX. Adsorption and surface reaction of NO₂ on a stepped Au(997) surface: Enhanced reactivity of low-coordinated Au atoms. *J Phys Chem C*, 2012, 116: 3608–3617
 - 38 Qian K, Sun HX, Huang WX, Fang J, Lv SS, He B, Jiang ZQ, Wei SQ. Restructuring-induced activity of SiO₂-supported large Au nanoparticles in low-temperature CO oxidation. *Chem Euro J*, 2008, 14: 10595–10602
 - 39 Wang S, Qian K, Bi XZ, Huang WX. The influence of speciation of aqueous HAuCl₄ on the synthesis, structure, and property of Au colloids. *J Phys Chem C*, 2009, 113: 6505–6510
 - 40 Jiang ZQ, Zhang WH, Jin L, Yang X, Xu FQ, Zhu JF, Huang WX. Direct XPS evidence for charge transfer from a reduced TiO₂(110) surface to Au clusters. *J Phys Chem C*, 2007, 111: 12434–12439
 - 41 Yu X, Xu LS, Zhang WH, Jiang ZQ, Zhu JF, Huang WX. Synchrotron-radiation photoemission study of growth and stability of Au clusters on rutile TiO₂(110)-(1×1). *Chin J Chem Phys*, 2009, 22: 339–345
 - 42 Qian K, Huang WX, Fang J, Lv SS, He B, Jiang ZQ, Wei SQ. Low-temperature CO oxidation over Au/ZnO/SiO₂ catalysts: some mechanism insights. *J Catal*, 2008, 255: 269–278
 - 43 Qian K, Lv SS, Xiao XY, Sun HX, Lu JQ, Luo MF, Huang WX. Influences of CeO₂ microstructures on the structure and activity of Au/CeO₂/SiO₂ catalysts in CO oxidation. *J Mol Catal A*, 2009, 306: 40–47
 - 44 Qian K, Huang WX, Jiang ZQ, Sun HX. Anchoring highly active gold nanoparticles on SiO₂ by CoO_x additive. *J Catal*, 2007, 248: 137–141
 - 45 Qian K, Fang J, Huang WX, He B, Jiang ZQ, Ma YS, Wei SQ. Understanding the deposition-precipitation process for the preparation of supported Au catalysts. *J Mol Catal A*, 2010, 320: 97–105
 - 46 Qian K, Luo LF, Chen CB, Yang SF, Huang WX. Finely dispersed Au nanoparticles on SiO₂ achieved by the C₆₀ additive and their catalytic activity. *Chem Cat Chem*, 2011, 3: 161–166
 - 47 Qian K, Zhang WH, Sun HX, Fang J, He B, Ma YS, Jiang ZQ, Wei SQ, Yang JL, Huang WX. Hydroxyls-induced oxygen activation on “inert” Au nanoparticles for low temperature CO oxidation. *J Catal*, 2011, 277: 95–103
 - 48 Qian K, Jiang ZQ, Huang WX. Effect of oxygen treatment on the catalytic activity of Au/SiO₂ catalysts. *J Mol Catal A*, 2007, 264: 26–32
 - 49 Qian K, Huang WX. Au-Pd alloying-promoted thermal decomposition of PdO supported on SiO₂ and its effect on the catalytic performance in CO oxidation. *Catal Today*, 2011, 164: 320–324
 - 50 Falsig H, Hovallbæk B, Kristensen IS, Jiang T, Bligaard T, Christensen CH, Nørskov JK. Trends in the catalytic CO oxidation activity of

- nanoparticles. *Angew Chem Int Ed*, 2008, 47: 4835–4839
- 51 Chusuei C, Lai X, Luo K, Guo Q, Goodman DW. Modeling heterogeneous catalysts: metal clusters on planar oxide supports. *Top Catal*, 2001, 14: 71–83
- 52 Valden M, Lai X, Goodman DW. Onset of catalytic activity of gold clusters on titania with the appearance of nonmetallic properties. *Science*, 1998, 281: 1647–1650
- 53 Vijay A, Mills G, Metiu H. Adsorption of gold on stoichiometric and reduced rutile $\text{TiO}_2(110)$ surfaces. *J Chem Phys*, 2003, 118: 6536–6551
- 54 Yulikov M, Sterrer M, Heyde M, Rust HP, Risse Th, Freund HJ, Pacchioni G, Scagnelli A. Binding of single gold atoms on thin $\text{MgO}(100)$ films. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 146804
- 55 Matthey D, Wang JG., Wendt S, Matthiesen J, Schaub R, Lægsgaard E, Hammer B, Besenbacher F. Enhanced bonding of gold nanoparticles on oxidized $\text{TiO}_2(110)$. *Science*, 2007, 315: 1692–1697
- 56 Huang WX, Ranke W, Schlögl R. Molecular-level understanding of the catalytic cycle of dehydrogenation of ethylbenzene to styrene over iron oxide-based catalysts. *J Phys Chem B*, 2005, 109: 9202–9204
- 57 Huang WX, Ranke W. Autocatalytic partial reduction of $\text{FeO}(111)$ and $\text{Fe}_3\text{O}_4(111)$ films by atomic hydrogen. *Surf Sci*, 2006, 600: 793–802
- 58 Huang WX, Ranke W, Schlögl R. Reduction of an $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3(0001)$ film using atomic hydrogen. *J Phys Chem C*, 2007, 111: 2198–2204
- 59 Xu LS, Ma YS, Zhang YL, Jiang ZQ, Huang WX. Direct evidence for the interfacial oxidation of CO with hydroxyls catalyzed by Pt/oxide nanocatalysts. *J Am Chem Soc*, 2009, 131: 16366–16367
- 60 Xu LS, Zhang WH, Zhang YL, Wu ZF, Chen BH, Jiang ZQ, Ma YS, Yang JL, Huang WX. Oxygen-vacancy controlled reactivity of hydroxyls on an $\text{FeO}(111)$ monolayer film. *J Phys Chem C*, 2011, 115: 6815–6824
- 61 Xu LS, Wu ZF, Zhang YL, Chen BH, Jiang ZQ, Ma YS, Huang WX. Hydroxyls-involved interfacial oxidation of CO catalyzed by $\text{FeO}_x(111)$ monolayer islands supported on $\text{Pt}(111)$ and the unique role of oxygen vacancy. *J Phys Chem C*, 2011, 115: 14290–14299
- 62 Weiss W, Ranke W. Surface chemistry and catalysis over well-defined epitaxial iron-oxide layers. *Prog Surf Sci*, 2002, 70: 1–152
- 63 Ratnasamy C, Wagner JP. Water gas shift catalysis. *Catal Rev*, 2009, 51: 325–440
- 64 Lu JQ, Luo MF, Lei H, Bao XH, Li C. Epoxidation of propylene on NaCl-modified $\text{VCe}_{1-x}\text{Cu}_x$ oxide catalysts with direct molecular oxygen as the oxidant. *J Catal*, 2002, 211: 552–555
- 65 Baltes C, Vukojević S, Schüth F. Correlations between synthesis, precursor, and catalyst structure and activity of a large set of $\text{CuO}/\text{ZnO}/\text{Al}_2\text{O}_3$ catalysts for methanol synthesis. *J Catal*, 2008, 258: 334–344
- 66 Zhang DF, Zhang H, Guo L, Zheng K, Han XD, Zhang Z. Delicate control of crystallographic facet-oriented Cu_2O nanocrystals and the correlated adsorption ability. *J Mater Chem*, 2009, 19: 5220–5225
- 67 Liang XD, Gao L, Yang SW, Sun J. Facile synthesis and shape evolution of single-crystal cuprous oxide. *Adv Mater*, 2009, 21: 2068–2071
- 68 Bao HZ, Zhang WH, Shang DL, Hua Q, Ma YS, Jiang ZQ, Yang JL, Huang WX. Shape-dependent reducibility of cuprous oxide nanocrystals. *J Phys Chem C*, 2010, 114: 6676–6680
- 69 Hua Q, Shang DL, Zhang WH, Chen K, Chang SJ, Ma YS, Jiang ZQ, Yang JL, Huang WX. Morphological evolution of Cu_2O nanocrystals in a weak acid solution: Stability of different crystal planes. *Langmuir*, 2011, 27: 665–671
- 70 Hua Q, Chen K, Chang SJ, Ma YS, Huang WX. Crystal plane-dependent compositional and structural evolution of uniform Cu_2O nanocrystals in aqueous ammonia solutions. *J Phys Chem C*, 2011, 115: 20618–20627
- 71 Hua Q, Chen K, Chang SJ, Bao HZ, Ma YS, Jiang ZQ, Huang WX. Reduction of Cu_2O nanocrystals: reactant-dependent influence of capping ligands and coupling between adjacent crystal planes. *RSC Adv*, 2011, 1: 1200–1203
- 72 Bao HZ, Zhang WH, Hua Q, Jiang ZQ, Yang JL, Huang WX. Crystal plane-controlled surface restructuring and catalytic performance of oxide nanocrystals. *Angew Chem Int Ed*, 2011, 50: 12294–12298
- 73 van Bokhoven JA. Understanding structure–performance relationships in oxidic catalysts: controlling shape and tuning performance. *Chem Cat Chem*, 2009, 1: 363–364

Surface physical chemistry of model systems for heterogeneous catalysis

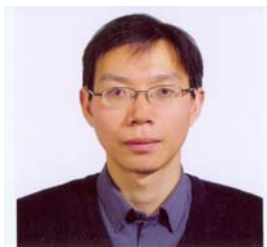
HUANG WeiXin*

Hefei National Laboratory for Physical Sciences at the Microscale and Department of Chemical Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

*Corresponding author (email: huangwx@ustc.edu.cn)

Abstract: Surface physical chemistry studies of catalysts aim to understand the surface structure-activity relation and the reaction mechanism of heterogeneous catalytic reaction at the molecular level for the improvement and design of efficient catalysts. It is difficult to unambiguously correlate the catalytic activity with the structure for powder catalyst because of its structural complexity and un-uniformity. Therefore, model catalysts with uniform and well-defined structures have been always employed for the surface physical chemistry studies of catalysts. In this paper, I review the research concept and the recent progress that has been achieved in surface physical chemistry studies of model systems for heterogeneous catalysis in my research group. We have innovated model catalysts from the traditional single crystals/single crystal thin films to nanocrystals with uniform and well-defined structures for the surface physical chemistry studies for targeted heterogeneous catalytic system. Our research concept might achieve the fundamental understanding of the surface structure-activity relation and the reaction mechanism of the practical heterogeneous catalytic reaction at the molecular level.

Keywords: surface physical chemistry, structure-activity relation, catalytic reaction mechanism, model systems, single crystals, nano-crystals



黄伟新, 1974 年 6 月出生, 博士, 中国科学技术大学微尺度物质科学国家实验室(筹)和化学物理系教授、博士生导师. 1996 年于中国科学技术大学获得化学学士学位, 2001 年于中国科学院大连化学物理研究所获得物理化学博士学位. 主要从事固体表面物理化学和多相催化基础研究. 德国亚历山大·洪堡基金获得者, 入选中国科学院百人计划; 获第 13 届国际催化大会青年研究者奖、中国真空学会青年科技创新奖和中国化学会青年化学奖. 任“先进催化材料结构-性能关系: 实验与理论”教育部创新团队学术带头人、德国马普学会-中国科学院“多相催化模型体系的结构-性能关系”伙伴小组组长和中国化学会催化专业委员会委员.