

The electrocatalytic oxidation of ethanol studied on a molecular scale Lai, S.S.S.

Citation

Lai, S. S. S. (2010, June 16). *The electrocatalytic oxidation of ethanol studied on a molecular scale*. Retrieved from https://hdl.handle.net/1887/15725

Version: Corrected Publisher's Version

License: License agreement concerning inclusion of doctoral thesis in the

Institutional Repository of the University of Leiden

Downloaded from: https://hdl.handle.net/1887/15725

Note: To cite this publication please use the final published version (if applicable).

CHINESE SUMMARY

摘要*

近十年來一個公眾社會意識逐漸形成,即當前水準的化石燃料,如石油和 天然氣,將在不久的將來消耗殆盡。與此同時,越來越明顯的跡象表明大 範圍的使用化石燃料來滿足能源需要已經引起氣候的改變。因此,對不依 賴於化石燃料的可選擇性能源的需求也同時與日俱增。

在這種背景下,(低溫)燃料電池是眾多相關研究之一。在燃料電池中,燃料在(電)化學反應過程中被轉換。反應後,能量以電能的形式最終釋放出。這個轉化發生在具有催化活性的電極表面。也就是說,由於其特性,電極在不自我消耗的條件下能夠加快轉換的速率(即所釋放能量總量)。由於燃料可以以不同方式轉換,反應產物以及相應轉化效率隨之不同,所以催化劑(電極表面)對理想反應的促進同樣顯得非常重要。

使用乙醇(俗稱"酒精")作爲燃料具有許多操作性的優勢。例如,乙醇在室溫條件下爲液態,在銷售和儲存過程中比較可行。而且,乙醇能夠從可再生資源中大規模的獲得。因此,乙醇在低溫燃料電池中使用具有廣闊的前景。本論文描述了電極表面在乙醇氧化過程中作用的基礎性研究結果,以及在燃料電池中使用乙醇時所發生的反應途徑。另外,爲燃料電池提供電導性的溶液——電解液,對其在乙醇氧化反應中作用也進行了研究。

本論文的第一部分(第3至5章),主要介紹了酸性電解液中乙醇氧化反應中幾個相關方面的研究。通過使用表面結構較好確定的電極(第3和4章),已經得到反應主要受表面原子"臺階"影響的結論:增加表面階梯的數量將導致乙醇轉化的加強。並且,這些表面階梯在決定反應產物生成方面起

*以上中文摘要僅對所作論文研究提供總體回顧。更多細節參看英文摘要。

著重要的作用。在第5章,對由乙醇到所期望的產物—— 二氧化碳的反應路徑也做了比較詳盡的研究與介紹。相應反應路徑中所形 成的中間產物同時也得到了確定。

在第6章主要介紹了在鹼性電解液中乙醇氧化反應的研究。和酸性介質中 相識,原子階梯能夠增加電極表面乙醇的轉化速率。而且,表面階梯的存 在會導致表面緩慢"中毒",使其催化活性得以延長。最終,鹼性電解液中乙醇的轉化速率數倍快於其在酸性電解液中。

最後,第7章在電解液pH(術稱"酸度")影響乙醇氧化反應方面進行了 比較詳盡的研究和介紹。通過系統的變化調節酸度,在電解液足夠鹼性(意味著較低酸度,或較高pH值)的條件下,轉化速率被發現得到大幅提升 。根據這個結論,對相應反應物、乙醇以及鹼性電解液的變化也進行了推 導。