

学校编码: 10384
学号: 20520141151604

分类号 _____ 密级 _____
UDC _____

厦 门 大 学

硕 士 学 位 论 文

Au, Ag 对 Nd_2O_3 上过氧物种光诱导生成的影响

The Influence of Au, Ag on the Photo-induced Formation of
Peroxide Species over Nd_2O_3

吴倩

指导教师姓名: 翁维正教授

万惠霖教授

专 业 名 称: 物理化学

论文提交日期: 2017 年 5 月

论文答辩时间: 2017 年 5 月

学位授予日期: 年 月

答辩委员会主席: _____

评 阅 人: _____

2017 年 5 月

厦门大学博硕士学位论文摘要库

A thesis submitted to Xiamen University for M. S. Degree

**The Influence of Au, Ag on the Photo-induced Formation of
Peroxide Species over Nd_2O_3**

By Qian Wu

Supervisor: Prof. Weizheng Weng

Chemistry and Chemical Engineering College

Xiamen University

May, 2017

厦门大学博硕士学位论文摘要库

厦门大学学位论文原创性声明

本人呈交的学位论文是本人在导师指导下,独立完成的研究成果。本人在论文写作中参考其他个人或集体已经发表的研究成果,均在文中以适当方式明确标明,并符合法律规范和《厦门大学研究生学术活动规范(试行)》。

另外,该学位论文为()课题(组)的研究成果,获得()课题(组)经费或实验室的资助,在()实验室完成。(请在以上括号内填写课题或课题组负责人或实验室名称,未有此项声明内容的,可以不作特别声明。)

声明人(签名):

年 月 日

厦门大学博硕士学位论文摘要库

厦门大学学位论文著作权使用声明

本人同意厦门大学根据《中华人民共和国学位条例暂行实施办法》等规定保留和使用此学位论文，并向主管部门或其指定机构送交学位论文（包括纸质版和电子版），允许学位论文进入厦门大学图书馆及其数据库被查阅、借阅。本人同意厦门大学将学位论文加入全国博士、硕士学位论文共建单位数据库进行检索，将学位论文的标题和摘要汇编出版，采用影印、缩印或者其它方式合理复制学位论文。

本学位论文属于：

1.经厦门大学保密委员会审查核定的保密学位论文，
于 年 月 日解密，解密后适用上述授权。

2.不保密，适用上述授权。

（请在以上相应括号内打“√”或填上相应内容。保密学位论文应是已经厦门大学保密委员会审定过的学位论文，未经厦门大学保密委员会审定的学位论文均为公开学位论文。此声明栏不填写的，默认为公开学位论文，均适用上述授权。）

声明人（签名）：

年 月 日

厦门大学博硕士学位论文摘要库

目录

摘要.....	VIII
Abstract.....	X
第一章 前言	1
1.1 引言.....	1
1.2 活性氧物种.....	2
1.2.1 过氧化合物和超氧化合物.....	2
1.2.2 活性氧物种的类型.....	2
1.2.3 活性氧物种在催化中的应用.....	3
1.2.4 活性氧物种的表征.....	3
1.3 激光诱导稀土氧化物表面过氧物种生成的研究.....	6
1.3.1 稀土氧化物.....	6
1.3.2 稀土氧化物的合成.....	7
1.3.3 光诱导稀土氧化物表面过氧物种的生成.....	8
1.4 负载型 Au 催化剂的研究.....	11
1.4.1 负载型 Au 催化剂的制备.....	11
1.4.2 负载型 Au 催化剂在催化中的应用.....	13
1.5 负载 Ag 催化剂的研究.....	14
1.5.1 负载 Ag 催化剂的制备.....	15
1.5.2 负载 Ag 催化剂在催化中的应用.....	16
1.6 本文工作.....	17
参考文献.....	19
第二章 实验部分	28
2.1 主要实验原料和试剂.....	28
2.2 样品表征.....	28
2.2.1 透射电镜 (TEM).....	28
2.2.2 扫描电镜 (SEM).....	29

2.2.3	X 射线粉末衍射 (XRD)	29
2.2.4	紫外-可见光谱 (UV-Vis)	29
2.2.5	比表面积 (BET) 测试	29
2.2.6	CO ₂ 程序升温脱附 (CO ₂ -TPD)	29
2.2.7	O ₂ 程序升温脱附 (O ₂ -TPD)	30
2.2.8	显微拉曼光谱 (Raman)	30
2.2.9	原位 Raman 光谱实验	30
第三章 制备方法对 Nd₂O₃ 上过氧物种光诱导生成的影响		32
3.1	Nd ₂ O ₃ 的制备	32
3.2	不同方法制备的 Nd ₂ O ₃ 上过氧物种光诱导生成考察	33
3.3	Nd ₂ O ₃ 的结构表征	35
3.3.1	样品的比表面积测试以及物相和形貌表征	35
3.3.2	CO ₂ -和 O ₂ -TPD 表征	39
3.4	本章小结	41
	参考文献	43
第四章 Au 对 Nd₂O₃ 表面过氧物种光诱导生成的影响		46
4.1	Au/c-Nd ₂ O ₃ 的制备和结构表征	46
4.1.1	Au/c-Nd ₂ O ₃ 的制备	46
4.1.2	TEM 及 HAADF-STEM 表征	46
4.1.3	XRD 分析	51
4.1.4	UV-Vis 分析	52
4.2	325 nm 激光照射 Au/c-Nd ₂ O ₃ 表面过氧物种光诱导生成影响因数考察	54
4.2.1	Au 负载量的影响	54
4.2.2	焙烧温度的影响	55
4.2.3	激光功率的影响	59
4.3	514 nm 激光照射下 Au/c-Nd ₂ O ₃ 表面过氧物种光诱导生成考察	61
4.3.1	Au 负载量的影响	61
4.3.2	焙烧温度的影响	63

4.3.3 还原温度的影响	63
4.3.4 样品温度的影响	66
4.3.5 Au/c-Nd ₂ O ₃ 表面过氧物种的热稳定性考察	68
4.4 Au/c-Nd ₂ O ₃ 表面过氧物种光诱导生成必要条件的验证	69
4.4.1 光照	70
4.4.2 分子氧	73
4.5 本章小结	74
参考文献	75
第五章 Ag 对 Nd₂O₃ 表面过氧物种光诱导生成的影响	76
5.1 Ag/c-Nd ₂ O ₃ 的制备和结构表征	76
5.1.1 Ag/c-Nd ₂ O ₃ 的制备	76
5.1.2 Ag ₂ O/c-Nd ₂ O ₃ 的制备	76
5.1.3 TEM 及 HAADF-STEM 表征	76
5.1.4 XRD 分析	81
5.1.5 UV-Vis 分析	86
5.2 325 nm 激光照射下 Ag/c-Nd ₂ O ₃ 表面过氧物种光诱导影响因素考察	89
5.2.1 Ag 负载量的影响	89
5.2.2 激光功率的影响	91
5.2.3 焙烧温度的影响	93
5.2.4 还原温度的影响	93
5.3 514 nm 激光照射下 Ag/c-Nd ₂ O ₃ 表面过氧物种光诱导影响因素考察	97
5.3.1 焙烧温度的影响	97
5.3.2 还原温度的影响	97
5.4 本章小结	101
参考文献	102
硕士期间发表论文	104
致谢	105

Contents

Abstract in Chinese	VIII
Abstract in English	X
Chapter 1 Introduction	1
1.1 Introduction	1
1.2 Active oxygen species	2
1.2.1 Peroxide and superoxide.....	2
1.2.2 Style of active oxygen species.....	2
1.2.3 Application of active oxygen species in catalytic	3
1.2.4 Characterization of active oxygen species.....	3
1.3 Study of photo-induced formation of peroxide species over rare earth oxide	6
1.3.1 Rare earth oxide.....	6
1.3.2 The synthesis of rare earth oxide.....	7
1.3.3 Photo-induced formation of peroxide species over rare earth oxide	8
1.4 Supported Au catalyst	11
1.4.1 Preparation of supported Au catalyst.....	11
1.4.2 Application of supported Au catalyst in catalytic	13
1.5 Supported Ag catalyst	14
1.5.1 Preparation of supported Ag catalyst.....	15
1.5.2 Application of supported Ag catalyst in catalytic	16
1.6 Outline of the dissertation	17
References	19
Chapter 2 Experimental section	28
2.1 The main ingredients and reagents.....	28
2.2 Sample characterization	28
2.2.1 TEM.....	28
2.2.2 SEM.....	29

2.2.3	XRD.....	29
2.2.4	UV-Vis	29
2.2.5	BET	29
2.2.6	CO ₂ -TPD	29
2.2.7	O ₂ -TPD.....	30
2.2.8	Raman.....	30
2.2.9	<i>In situ</i> Raman.....	30
Chapter 3 Influence of preparation method on photo-induced formation of peroxide species over Nd₂O₃.....		32
3.1	Preparation of Nd ₂ O ₃	32
3.2	Study of photo-induced formation of peroxide species over the Nd ₂ O ₃ prepared by different methods.....	33
3.3	The structure characterization of Nd ₂ O ₃	35
3.3.1	BET test, phase and morphology characterization of sample.....	35
3.3.2	CO ₂ - and O ₂ -TPD.....	39
3.4	Conclusions	41
	References	43
Chapter 4 Influence of Au on photo-induced formation of peroxide species over Nd₂O₃		46
4.1	The preparation and structure characterization of Au/c-Nd ₂ O ₃	46
4.1.1	Preparation of Au/c-Nd ₂ O ₃	46
4.1.2	TEM and HAADF-STEM.....	46
4.1.3	XRD.....	51
4.1.4	UV-Vis	52
4.2	Formation of peroxide species over the Au/c-Nd ₂ O ₃ induced by 325 nm laser	54
4.2.1	Influence of Au loading.....	54
4.2.2	Influence of calcination temperature	55
4.2.3	Influence of laser power	59

4.3	Formation of peroxide species over the Au/c-Nd ₂ O ₃ induced by 514 nm laser	61
4.3.1	Influence of Au loading	61
4.3.2	Influence of calcination temperature	63
4.3.3	Influence of reduction temperature	63
4.3.4	Influence of sample temperature	66
4.3.5	The thermal stability of peroxide species over Au/c-Nd ₂ O ₃	68
4.4	The requirements of the formation of peroxide species over Au/c-Nd ₂ O ₃	69
4.4.1	Illumination	70
4.4.2	Molecule oxygen	73
4.5	Conclusions	74
	References	75
Chapter 5 Influence of Ag on photo-induced formation of peroxide species over Nd₂O₃		76
5.1	The preparation and structure characterization of Ag/c-Nd ₂ O ₃	76
5.1.1	Preparation of Ag/c-Nd ₂ O ₃	76
5.1.2	Preparation of Ag ₂ O/c-Nd ₂ O ₃	76
5.1.3	TEM and HAADF-STEM	76
5.1.4	XRD	81
5.1.5	UV-Vis	86
5.2	325 nm laser induced formation of the peroxide species over Ag/c-Nd ₂ O ₃	89
5.2.1	Influence of Ag loading	89
5.2.2	Influence of laser power	91
5.2.3	Influence of calcination temperature	93
5.2.4	Influence of reduction temperature	93
5.3	514 nm laser induced formation of the peroxide species over Ag/c-Nd ₂ O ₃	97
5.3.1	Influence of calcination temperature	97
5.3.2	Influence of reduction temperature	97
5.4	Conclusions	101

References	102
Publication	104
Acknowledge.....	105

厦门大学博硕士论文摘要库

摘要

本文的目标是研究制备方法以及添加 Au 或 Ag 对立方 Nd_2O_3 ($\text{c-Nd}_2\text{O}_3$) 表面晶格氧(O^{2-})与分子氧(O_2)在光诱导下反应生成过氧物种(O_2^{2-})的影响及其本质。在第一部分工作中采用水解、水热和燃烧法制备了三种 Nd_2O_3 样品。以 325 nm 激光为激发源,在室温和空气下对上述样品上过氧物种的光诱导生成情况进行了比较考察,并采用多种实验技术对影响上述样品表面过氧物种生成的关键因素进行了表征。在第二、三部分工作中采用浸渍法将 Au 或 Ag 负载在燃烧法制备的 $\text{c-Nd}_2\text{O}_3$ 上,在此基础上详细考察了 Au 和 Ag 对 $\text{c-Nd}_2\text{O}_3$ 表面过氧物种的光诱导生成的促进作用以及贵金属的负载量、激光功率、样品温度、焙烧温度以及还原温度等因素对 $\text{c-Nd}_2\text{O}_3$ 表面过氧物种光诱导生成的影响,并结合 XRD、TEM、UV-Vis 等表征结果,对贵金属促进作用本质进行了初步探究。主要结论如下:

(1) 水解、水热和燃烧法制备的 Nd_2O_3 的主要物相均为立方 Nd_2O_3 。燃烧法制备的样品纯度最高,水解和水热法制备的样品均含有少量六方 Nd_2O_3 。在室温和空气中经 325 nm 激光照射后,水解、水热和燃烧法制备的 Nd_2O_3 样品上均可检测到过氧物种的生成,但燃烧法制备的样品上过氧物种的生成速率显著快于其他两种样品。 O_2 -和 CO_2 -TPD 的表征结果表明,与水解和水热法制备的立方 Nd_2O_3 相比,燃烧法制备的样品表面含有更多低配位的晶格氧物种,晶格氧的碱性也更强,因而更有利于在光诱导下与分子氧反应生成过氧物种。

(2) 在波长为 325 nm 和 514 nm 的激光诱导下,添加 Au 或 Ag 后都能有效促进立方 Nd_2O_3 表面过氧物种的光诱导生成,且 Au 或 Ag 的负载量在 0.25% 左右的样品最有利于过氧的生成。TEM 和 UV-Vis 表征结果表明,焙烧温度的升高会导致 Au 或 Ag 纳米粒子的粒径增大。氢气中还原后的 Au/ $\text{c-Nd}_2\text{O}_3$ 或 Ag/ $\text{c-Nd}_2\text{O}_3$ 样品上贵金属的粒径略小于同温下空气中焙烧的样品。经空气 200 °C 焙烧或氢气 200 °C 还原的 Au/ $\text{c-Nd}_2\text{O}_3$ 或 Ag/ $\text{c-Nd}_2\text{O}_3$ 样品最有利于过氧的生成。随着焙烧温度或还原温度的升高,样品表面光诱导生成的过氧物种的 Raman 谱带强度逐渐降低,其原因可归结于升高焙烧或还原温度导致 Au 或 Ag 纳米颗粒的粒径增

Degree papers are in the "[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)". Full texts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to etd@xmu.edu.cn for delivery details.

厦门大学博硕士论文摘要库