大连化物所等通过双单原子亚纳米反应器实现高效电化学固氮

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/11007.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

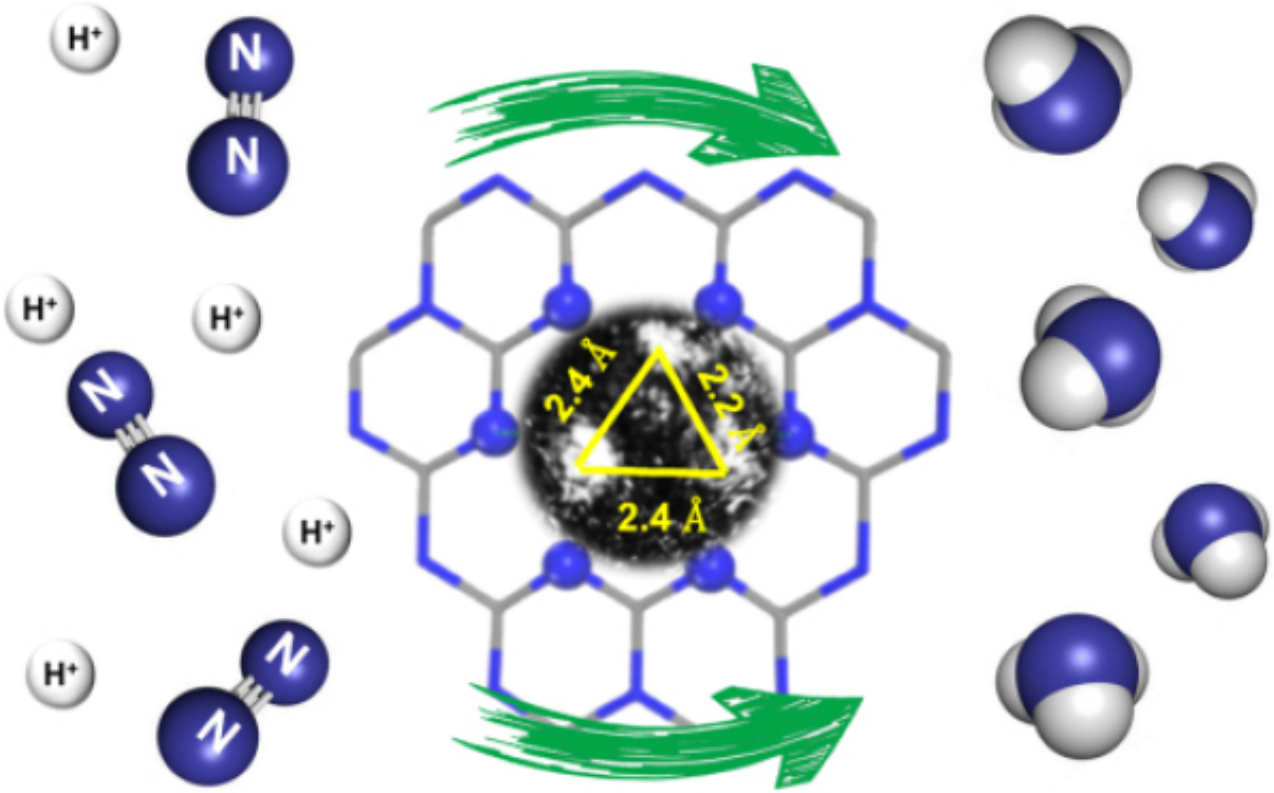
近日，中国科学院大连化学物理研究所微纳米反应器与反应工程学研究组研究员刘健团队，与天津大学教授梁骥团队、澳大利亚斯威本科技大学教授孙成华团队合作，通过亚纳米空间限域策略，开发Fe-Cu双单原子亚纳米反应器，用于电催化N_2还原反应，实现NH_3高效率合成，为电催化固氮提供新思路。

单原子催化剂能最大限度地利用活性物质，因此在电催化领域具有广阔的应用前景。目前，精准控制原子级活性位点以满足特定反应仍是单原子催化剂的瓶颈。该研究提出一种亚纳米空间限域策略，即利用石墨化氮化碳具有的独特微环境的规则表面空穴，精确限域Fe-Cu单原子并调控其几何构型，构建“亚纳米反应器”。研究发现，在高度限域的亚纳米反应器中，Fe-Cu催化活性中心与反应物具有更强的相互作用，且极狭窄的限域空间所具有的独特微环境形成显著的协同效应，对于以氮还原反应为代表的多步骤电催化过程较为有利。此外，结合第一性原理模拟，发现这种协同效应来源于独特的Fe-Cu配位，有效地改变N_2的吸收，改善电子转移，并为氮还原反应提供额外的氧化还原电子对。该研究为在亚纳米尺度上操纵催化剂活性中心提供新策略，也为亚纳米尺度上具有精确空间定位的新型催化剂的设计提供思路。

刘健团队致力于研究微/纳米反应器中的催化基础理论，实现活性组分在纳米反应器中的精准定位。研究团队构建的蛋黄-蛋壳型PdZnO@carbon，Co-CoOx@N-C，AuPt@HMZS亚微米反应器，其外壳可以保护催化核心纳米颗粒，抑制其团聚，核与壳之间的空隙空间为多相催化反应中反应物的富集提供独特的反应环境，从而提升催化剂的活性、选择性及稳定性（Adv. Funct. Mater., 2018, 28, 1801737; Adv. Sci.,2019, 1900807; *Natl. Sci. Rev.*, 2020, In Press）；将金属纳米颗粒区域选择性地定位在哑铃的一个隔室中，构建Janus型纳米反应器，显示出优异的界面活性，提高双相硝基芳烃加氢反应的反应效率（*Angew. Chem. Int. Ed.*, 2017, 56, 8459-8463）；将金属纳米颗粒选择定位在中空球内部和表面，系统研究纳米反应器在液相加氢反应中的空间限域效应（Angew. Chem. Int. Ed., 2020, In Press）；提出纳米反应器策略合成负载型超小双金属催化剂（Materials Today, 2020, In Press）；通过缺陷工程铁掺杂的策略，开发铁掺杂$W_{18}O_{49}$纳米反应器，在低电位下同时实现高的NH_3产率和高法拉第效率（Angew. Chem. Int. Ed., 2020, 59, 7356-7361）。

相关研究成果发表在*Advanced Materials*上。研究工作得到国家自然科学基金、中科院洁净能源创新研究院合作基金等的资助。

论文链接



大连化物所通过双单原子亚纳米反应器实现高效电化学固氮

研究团队单位：大连化学物理研究所

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发