

---

# 科学家实现碳化钨负载的高活性单原子OER催化剂

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/14051.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！*

科学家实现碳化钨负载的高活性单原子OER催化剂。

日前，四川大学高分子学院程冲研究员课题组、柏林工业大学Arne Thomas教授课题组、与马普固体研究所Dr. Yi Wang（王毅）团队采用金属碳化物作为过渡金属Fe、Ni原子载体，在单原子氧气析出反应（OER）催化剂研究中取得了突破性研究进展，该研究首次实现了非强配位OER金属单原子催化中心的构建。研究成果以Oxygen-evolving catalytic atoms on metal carbides为题，于北京时间2021年5月30日晚23时发表在Nature Materials上。

将具有催化活性的金属化合物分散到原子水平制备单原子催化剂，可最大限度地提高原子利用率和活性位点间协同效应。近年来研究发现单原子催化剂在各种催化反应，尤其是电催化还原反应中表现出优异的活性。然而却很少在OER中展现出优异的催化活性。目前大多数单原子结构是通过由氧、氮、硫等杂原子强配位负载在载体材料上实现的，而强配位环境极大地影响了金属单原子中心的电子环境，从而影响它们的析氧催化活性。然而开发非氧、氮、硫等杂原子强配位金属单原子结构及其载体材料极具挑战，也是实现高效单原子OER催化剂的关键。

氧、氮、硫等杂原子强配位键合作用，在阻止原子团聚以实现原子级分散催化结构中具有重要作用，近年来研究人员通过此方法实现了大量的单原子催化剂的构建，为不同领域提供了一系列催化性能优异的材料。然而现有体系中，单原子金属中心因其杂原子强配位作用影响了其电子环境和原子的可运动性，从而限制了它们的部分催化活性，特别是在需要高过电位的OER反应中，该限制尤为明显。

该论文的第一作者为柏林工业大学功能材料团队，李爽博士（DFG project leader），她告诉《中国科学报》，单原子OER催化剂的催化性能，不仅依赖于单原子与载体间的相互作用方式，过强的相互作用会导致原子活性降低，而过弱的作用力又很难稳定单原子；催化反应往往依赖于双金属单原子中心的协同作用，乃至催化中心与载体材料之间的相互作用。构筑具有高活性的单原子OER催化剂，不仅要找到适合的载体来实现相对较弱的配位环境，还需要考虑不同金属单原子之间的协同作用，是一项极具挑战的课题。

在前期工作中，课题组研究人员曾利用富氮多级孔道碳材料作为载体，实现了Fe、Co双金属单原子的高效负载及双金属中心的协同催化作用，成功地提升了单原子OER催化剂的活性。但由于受到多孔碳载体材料中氮杂原子的强配位作用限制，相关催化剂的过电位、催化效率等仍不理想。

在最新的这项研究中，我们首先从结构上设计并制备了新的金属有机杂化前驱体材料，以期得到不同于传统多孔碳单原子载体的新型材料。在杂化前驱体材料的构建中，一方面我们选用了含有

儿茶酚及氨基的有机小分子，其可加强前驱体对金属离子的络合作用；另一方面我们引入了钨氧簇，以实现在碳化过程中原位制备碳化钨作为单原子催化中心的弱配位载体。李爽博士介绍到。

具体而言，研究人员巧妙地选择具有强络合能力的含氮、含氧有机分子作为多种金属盐的键合单元与Fe、Ni、WO<sub>4</sub><sup>2-</sup>离子组装，获得了结构均匀的金属有机配位杂化前驱体材料。通过调控热处理条件，获得了基于碳化钨纳米晶体负载的Fe、Ni、FeNi单原子OER催化剂。

一系列精细结构表征实验证实，研究人员成功构建了非强配位金属单原子活性中心。利用球差校正高分辨透射电镜技术，研究人员精确观测到了碳化钨晶体表面FeNi单原子结构，并通过单个原子位点的EDX精确分析了原子位置，同时还观测到了碳化钨晶体表面的FeNi原子具有高移动能力。高分辨X射线光电子能谱及X射线吸收谱表明，FeNi原子是通过与碳化钨基底的W、C原子相互作用而保持稳定的，这种与W、C原子的相互作用也使得FeNi活性中心处于低价态保持了部分金属特性。

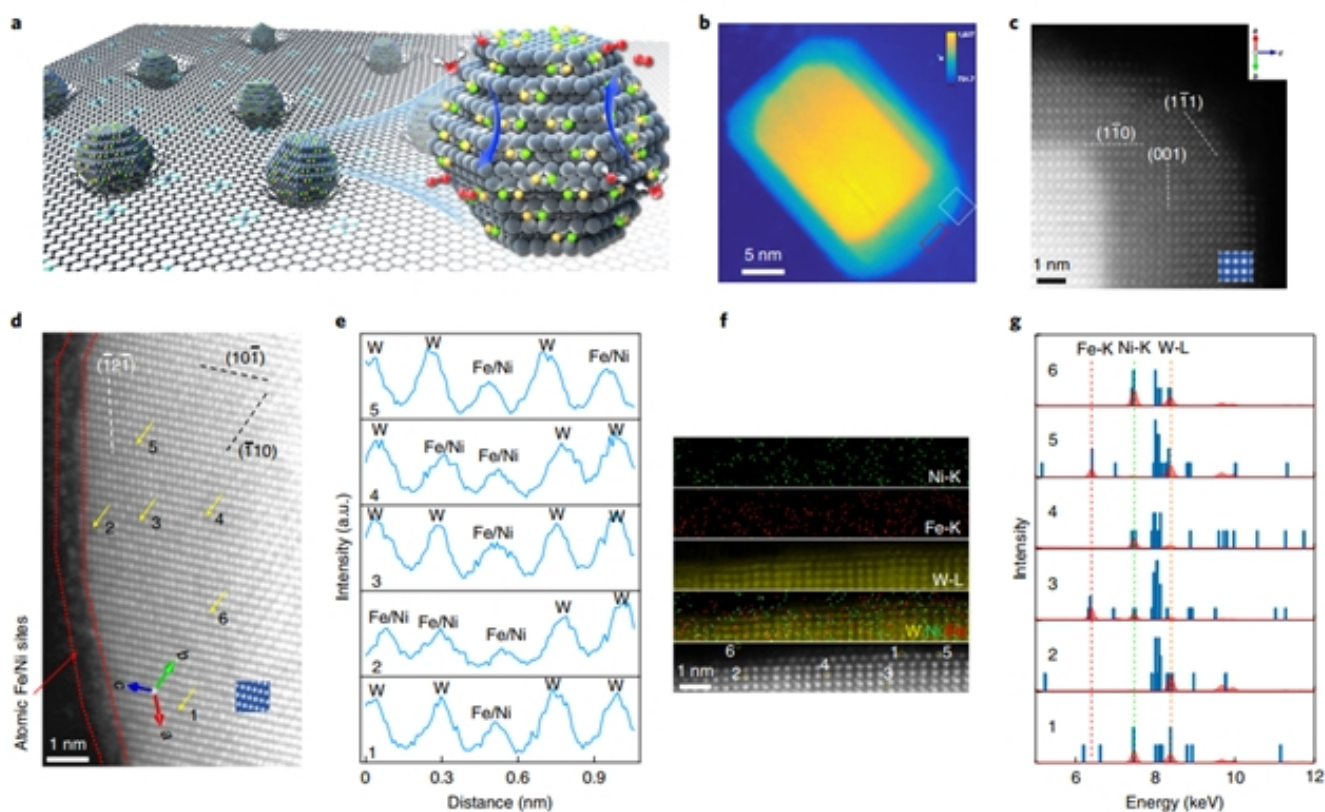


图1 a. 材料结构示意图；b. 球差高分辨电镜下的碳化物晶体颗粒；c. 碳化钨晶体中的原子排布和晶面取向；d, e. 碳化物表面的FeNi单原子；f. 原子级元素分布；g. 1-6号位原子对应的原子级EDX图谱（研究团队供图）

本研究揭示了利用金属有机配位杂化前驱体材料，可以实现稳定负载单原子催化结构在碳化钨晶体表面，由于碳化钨的独特结构，原子分散的FeNi催化位点与表面的W和C原子结合力较弱，具有高移动能力，从而实现了非强配位金属单原子OER催化剂的构建。该催化剂在10 mA cm<sup>-2</sup>下的过电位为237 mV，当催化剂负载量增加时，过电位可进一步降至211

mV，更值得关注的是其实现了超高的质量活性（33.5 A mg<sup>-1</sup> FeNi，在 300 mV过电位下）和催化转化率（4.96 s<sup>-1</sup>，在 300 mV过电位下）。该催化剂还具有超高的催化稳定性，连续工作1000 h无明显活性衰减。反应后的样品结构表征表明，在OER催化过程中，材料表面会逐渐形成稳定的原子级FeNi氧化层，一方面保护了载体碳化钨，另一方面维持了高OER活性。

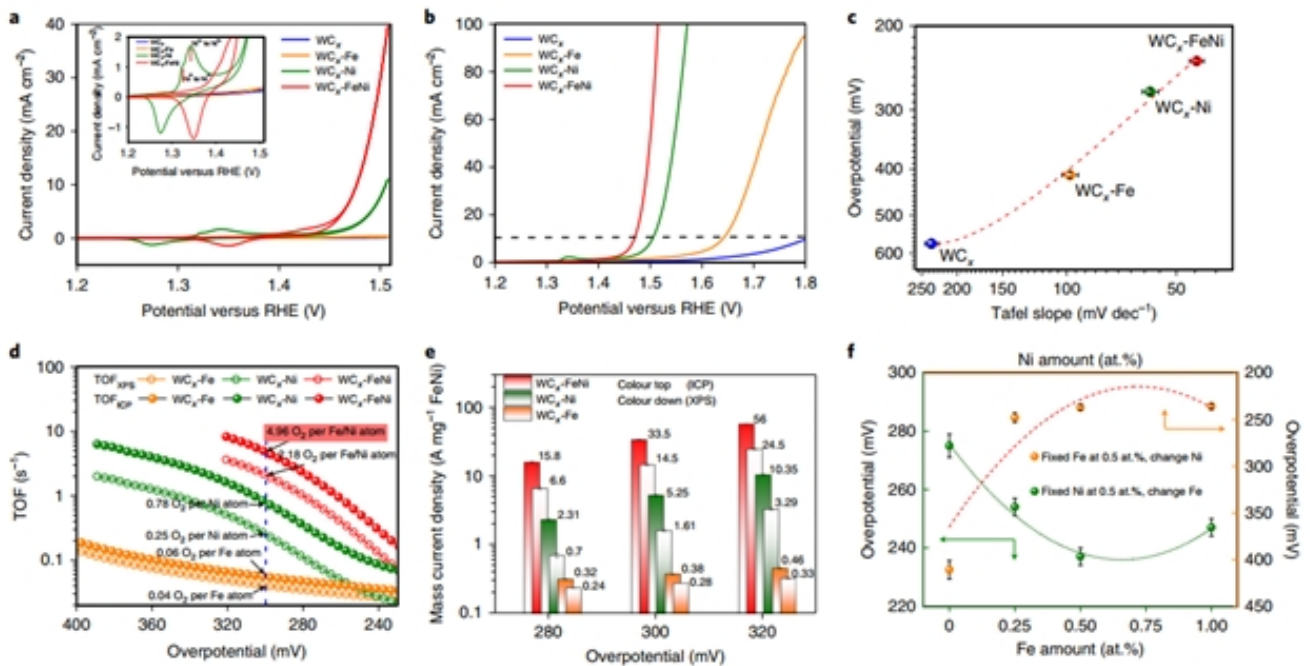


图2 材料的电化学OER性能结果（研究团队供图）

最后，研究人员认为，该工作提出的利用金属有机配位杂化前驱体制备金属碳化物作为载体材料不仅为非强配位金属单原子催化中心的构建提供了开创性的研究思路，同时也为进一步开发高效单原子催化剂开辟了一条很有前途的全新道路。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41563-021-01006-2>

作者：程冲等 来源：《自然-材料学》

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](https://www.iikx.com)转发