
中国科学家引入异金属位点调控效应实现高效ORR催化活性

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/14413.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！

中国科学家引入异金属位点调控效应实现高效ORR催化活性。 氧气还原反应（ORR）是燃料电池和金属空气电池等能量存储技术中最重要的催化过程之一。其中以Fe-N₄为主的非贵金属催化材料由于其高效的ORR活性和低廉的成本，被认为是最有可能替代贵金属Pt基催化剂的理想材料。

日前，清华大学的王定胜副教授，以典型的Fe-N₄单原子位点为研究对象，在实现高效催化ORR反应的研究中取得重要进展。相关研究成果以Adjacent Atomic Pt Site Enables Single-Atom Iron with High Oxygen Reduction Reaction Performance为题，于2021年6月22日发表在Angewandte Chemie International Edition上。

通过调制效应来调节单原子M-N-C催化剂的电子态，以提高其氧还原反应（ORR）的电催化活性，已经得到了人们广泛的研究。然而，对孤立的双原子金属位点的调控效应的深入研究却鲜有报道。

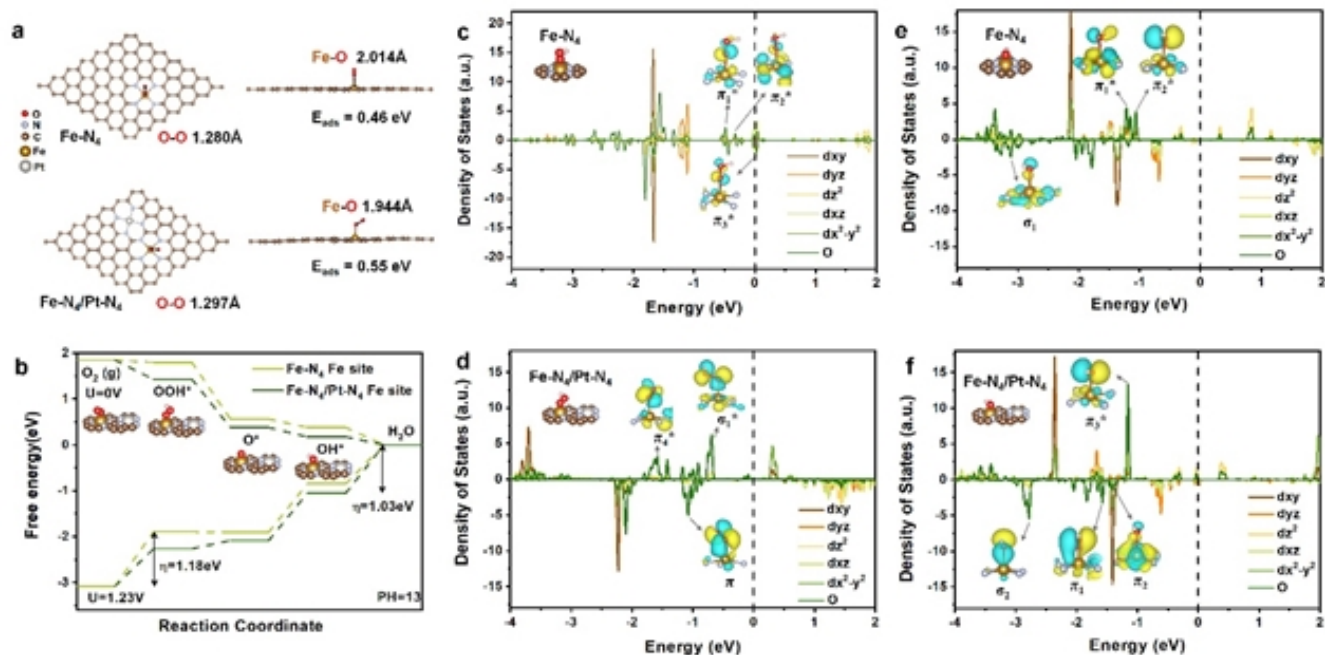


图1：理论计算为指导的Pt-N4位点对Fe-N4位点的O₂吸附 (a)，ORR反应路径的Gibbs自由能台阶图 (b) 和电子结构的调控 (c-f)。

王定胜告诉《中国科学报》，与商业化Pt/C 催化剂相比，对称的Fe-N4电子分布结构使其对氧中间体（例如，OOH*、O* 和 OH*）的吸附能不会达到最优。因此用廉价的Fe-N4催化剂替代Pt基贵金属催化剂，同时在实际应用中表现出优异的催化性能和长时间稳定性仍然面临巨大挑战。

在前期工作中，课题组研究人员曾利用各种不同载体，成功构建了不同负载量的Fe/Pt-N-C 单原子体系，并观测到Pt单原子的引入对Fe-N-C ORR催化活性提升。通过理论计算的指导，我们发现Pt-N4位点的引入可以大大促进O₂在Fe-N4位点的吸附和O-O键断裂。进一步的理论计算证明Pt-N4可以通过调控Fe-N4的电子结构，从而降低Fe-N4的ORR的过电位（图1所示）。

最终，我们选择含N丰富的ZIF-8s MOF包裹Fe和Pt前驱体的方法去实现Fe-N4/Pt-N4@NC体系的设计。一方面该方法通过煅烧后能得到均匀的M-N4单原子结构；另一方面这种结构的载体，含N丰富，且具有丰富的孔洞结构，有利于电荷传质过程，从而大大提升整体的ORR催化活性。王定胜介绍。

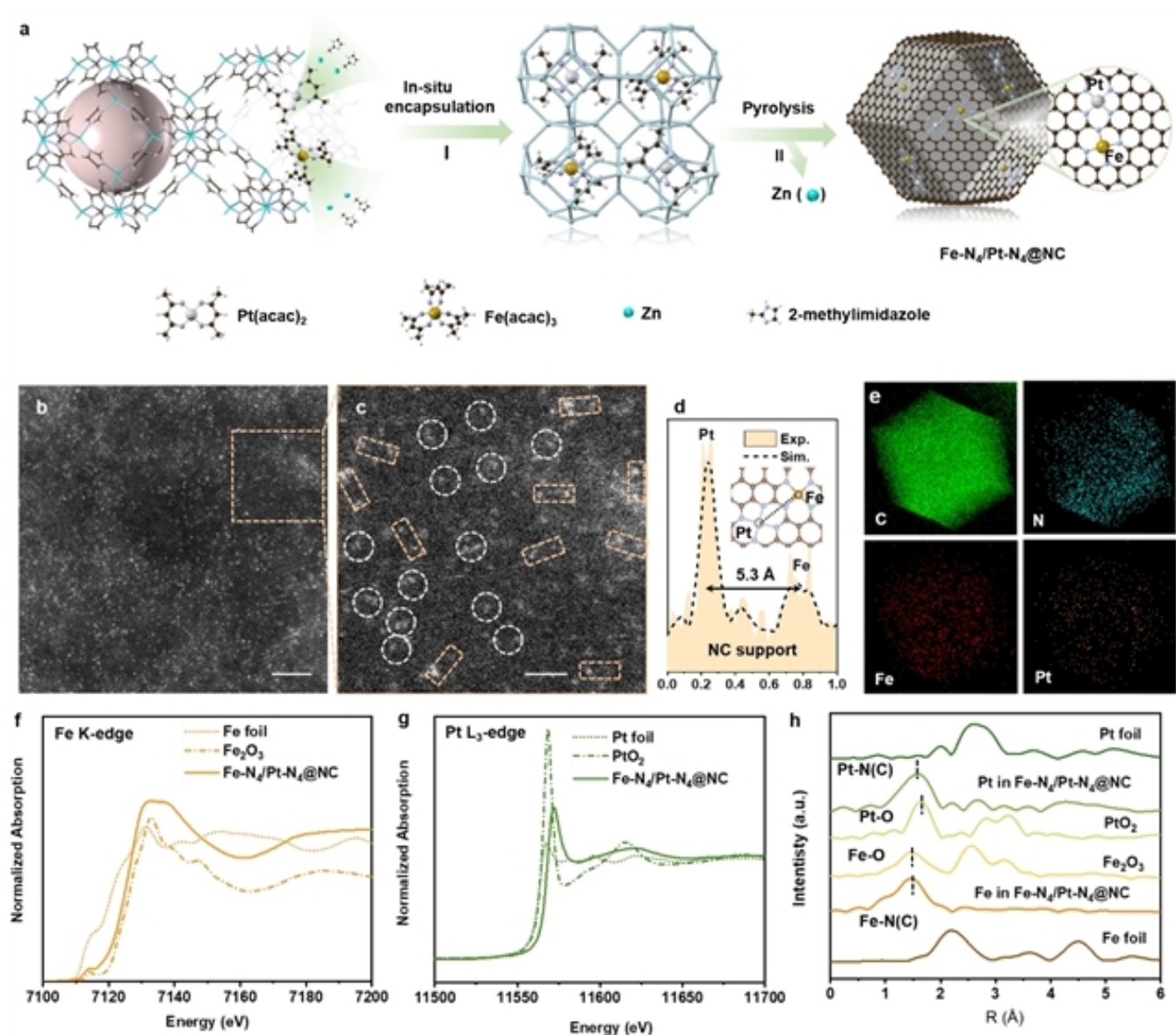


图2：a, Fe-N₄/Pt-N₄@NC的合成路线；b-e, Fe/Pt单原子的球差和元素分析表征；f-h, Fe/Pt单原子的XANES的光谱表征。

先进的球差技术和X-射线光谱技术，进一步证明Fe单原子和Pt单原子均匀分散在氮掺杂的碳基上并具有M-N₄的结构。

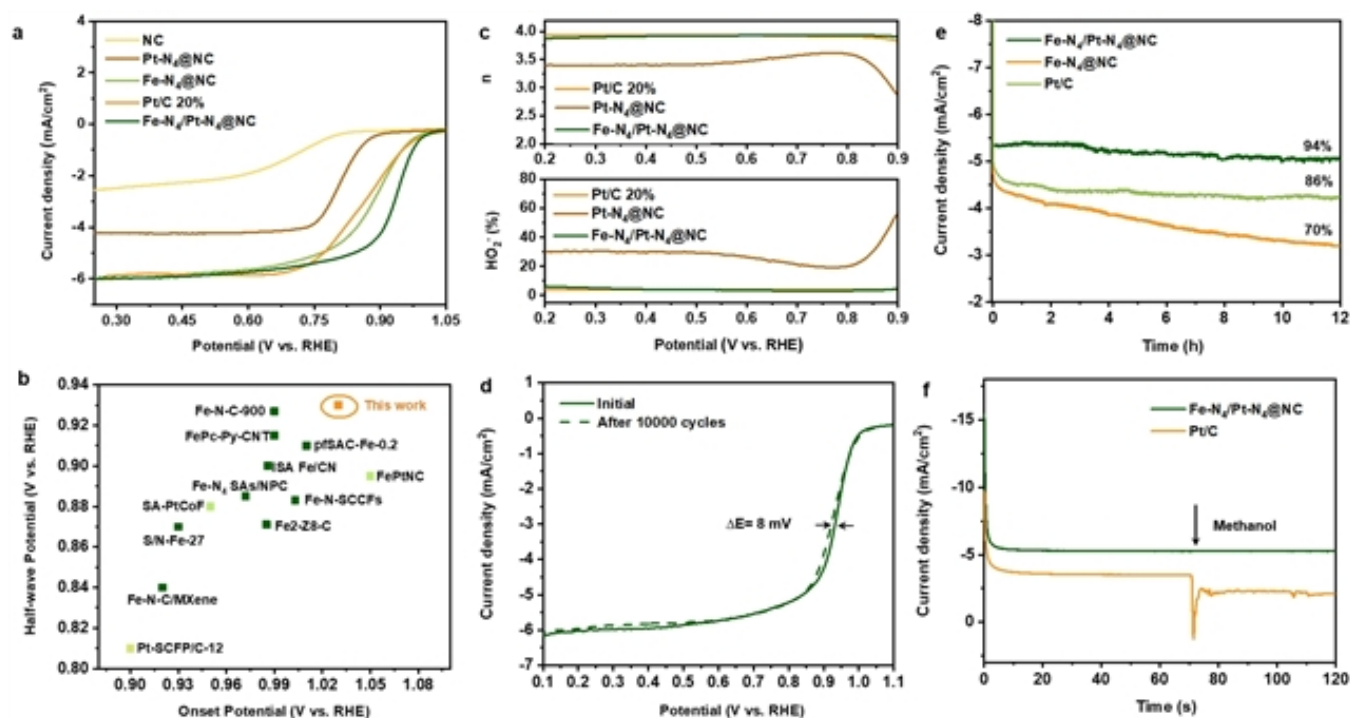


图3：Fe-N₄/Pt-N₄@NC体系的ORR活性表征。a, Fe-N₄/Pt-N₄@NC材料与不同对照样品的ORR LSV曲线图；b, Fe-N₄/Pt-N₄@NC材料与文献报道的起始电位和半波电位对照图；c, n与HO₂⁻曲线图；d, Fe-N₄/Pt-N₄@NC材料的循环稳定性；e, Fe-N₄/Pt-N₄@NC材料与Fe-N₄@NC和Pt/C体系的稳定性测试；f, Fe-N₄/Pt-N₄@NC材料与Pt/C体系的甲醇耐受性测试。

研究人员证明Fe-N₄/Pt-N₄双金属结构表现出优异的ORR催化活性。半波电位达到0.93 V，并表现出高稳定性和甲醇耐受性（图3）。同时，组装的锌空电池也表现出优于Pt/C的高能量密度和循环稳定性。

最终研究人员进一步证明，引入Pt-N₄的调控效应对Co-N₄和Mn-N₄位点表现出较弱的ORR促进作用。该工作在原子水平上刷新了对相邻双金属位点的认识，并为高效电催化剂的设计提供了合理的理论指导。

清华大学化学系王定胜教授为本文的唯一通讯作者，清华大学化学系的博士后韩阿丽为本文的第一作者，中国科学技术大学博士研究生王翥君为本文的共同第一作者。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1002/anie.202105186>

作者：王定胜等 来源：《德国应用化学》

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

本文版权归作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](http://iikx.com)转发