高效单原子催化剂设计有了新策略

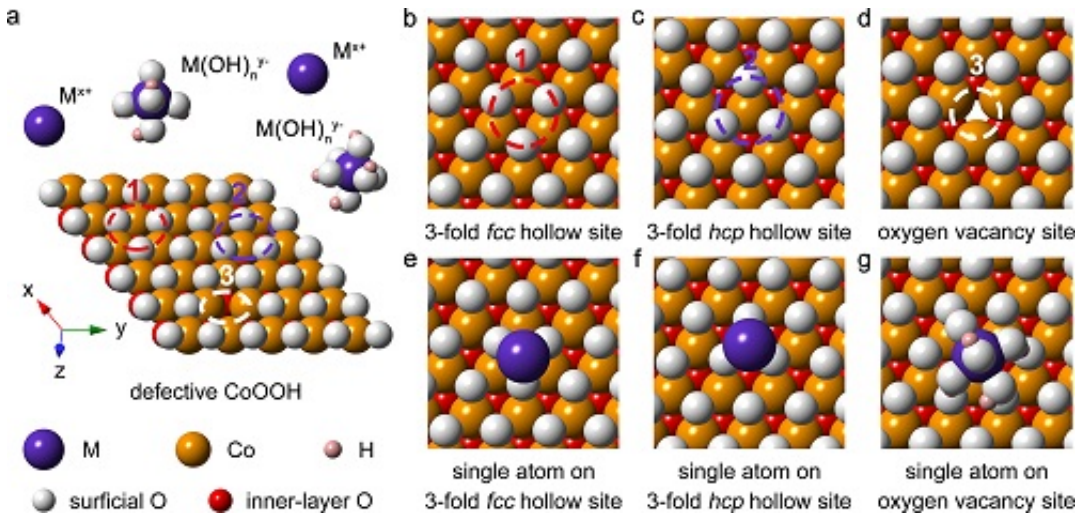
作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/19926.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！

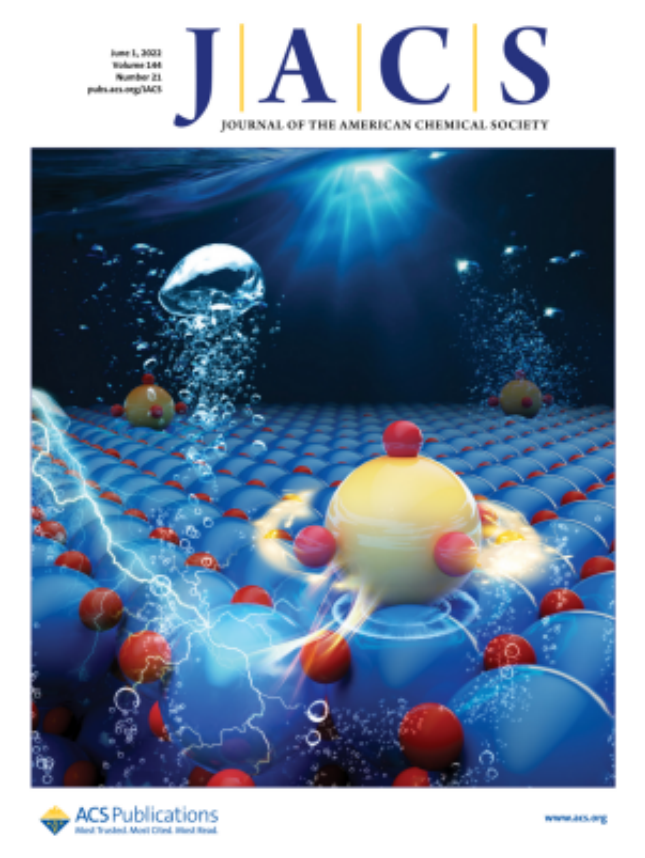
高效单原子催化剂设计有了新策略。

中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心教授曾杰团队，通过精准的单原子锚定位点设计，制备出一种可以高效催化电化学阳极反应的单原子催化剂。相关成果分别发表于《自然-通讯》《美国化学会志》，并被选为《美国化学会志》的封面论文。



单原子锚定位点的选择性调控示意图 中国科大供图

电化学阳极反应是一类重要的催化反应，可以为二氧化碳电还原、水分解制氢等重要的还原反应提供质子和电子，从而完成整个电催化过程。发展高活性的电化学阳极反应催化剂，提高电催化系统的能量转化效率，是整个电催化领域亟需解决的问题。



单原子-载体界面结构模型（《美国化学会志》封面） 中国科大供图

单原子催化剂是一类新型的电化学阳极反应催化剂，其催化性能与锚定位点处的微环境密切相关。但现有的单原子制备技术尚无法把单原子均匀、精准地锚定在载体表面的某一种特定位点处。因此，亟需发展能够精细调控单原子在载体表面锚定位点的合成方法，进而实现对单原子电子结构和配位环境的有效调控。

基于以上挑战，研究人员采用电化学沉积技术，选择性地将铱单原子锚定在羟基氧化钴载体表面氧原子的三重中空位点处和氧空位处。测试表明，锚定在氧空位处的铱单原子展现出更优异的电化学阳极反应性能。机理研究发现，对于锚定在氧原子的三重中空位点处的铱单原子催化剂，铱-钴之间的强电荷相互作用增强了钴位点对反应中间体的吸附。而对于锚定在氧空位处的铱单原子催化剂，铱-钴之间电荷效应不明显。但是，铱单原子特殊的配位结构会与电化学阳极反应中间体之间形成氢键相互作用，最终通过构型效应稳定了中间体，降低了反应能垒。

此外，研究人员通过将配位环境相同的铱单原子分别锚定在羟基氧化钴载体的晶格处和表面氧空

位处，构造出了两种不同的单原子-
载体界面结构，并以此来探究原子级界面对电化学阳极反应的调控机制。

研究结果发现，处于晶格位点的铱-氧八面体与近邻共边的钴-氧八面体之间会产生电荷转移，导致钴位点对电化学阳极反应中间体的吸附增强。而锚定在羟基氧化钴表面的铱-氧八面体则通过共点的氧与钴-氧八面体连接，该结构在催化剂表面形成了独特的一个铱-氢氧-钴界面，并通过空间相互作用调控了关键反应中间体在其表面的吸附构型，从而大幅提升了该催化剂的电化学阳极反应性能。

此研究从原子尺度揭示了单原子锚定位点对其电催化性能的调控机制，也为设计高效的电化学阳极析氧反应催化剂提供了新思路。

审稿人认为，该工作提出的单原子锚定位点设计思路新颖，证据充分，为在原子尺度理性设计单原子催化剂提供了新的策略。（来源：中国科学报王敏）

相关论文信息：

https://doi.org/10.1038/s41467-022-30148-3

https://doi.org/10.1021/jacs.2c00533

作者：曾杰等 来源：《美国化学会志》

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