
大连化物所单原子催化应用于类芬顿反应研究取得新进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/2531.html>

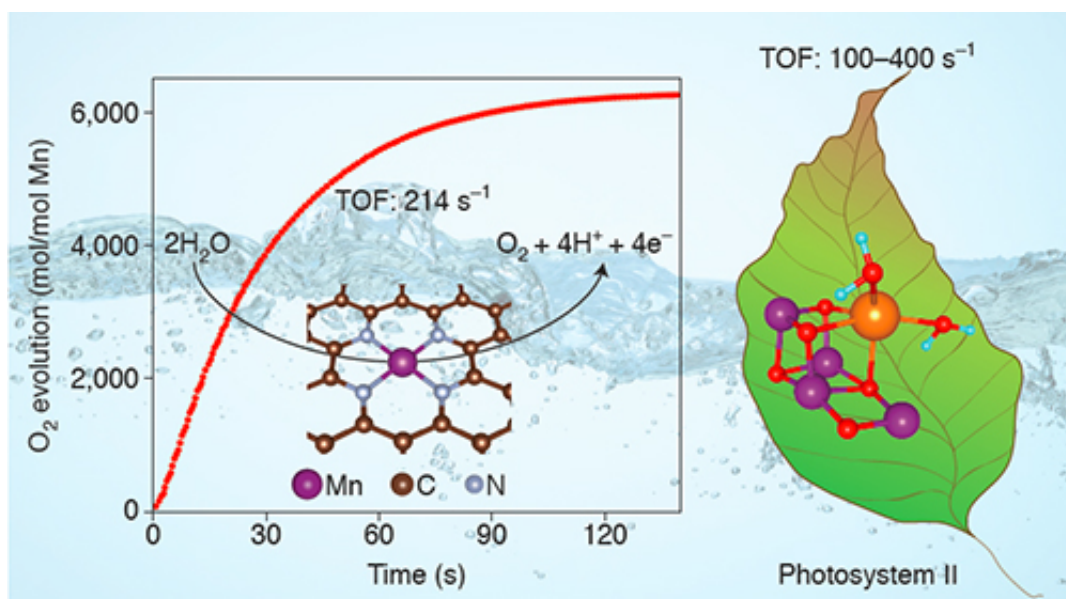
本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

大连化物所单原子催化应用于类芬顿反应研究取得新进展。近日，中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室、太阳能研究部中科院院士李灿和博士管景奇等人发现由氮化石墨烯做基体稳定的单核锰活性中心化学水氧化活性转化频率高达 200s^{-1} 以上，可与自然光合作用体系PSII多核锰(CaMn_4O_5)反应中心的水氧化活性相媲美，并提出单核锰反应中心上水氧化反应机理，相关研究结果以全文的形式发表在《自然-催化》(Nature Catalysis)上。

水氧化是水分解的速控步骤，也是自然光合作用和人工光合成的原初反应。开发高效稳定的水氧化催化剂是实现人工光合成(包括光催化、光电催化和电催化)的关键。经过科学家长期努力，人们了解到自然光合作用的水氧化反应(发生在光合体系II, PSII)上，其活性中心是多核锰(CaMn_4O_5)，它显示超高的活性(转化频率高达 $100\text{-}400\text{s}^{-1}$)，在非常低的过电位下就可以高效氧化水。因此，人们长期以来努力模拟自然光合作用的多核锰催化剂结构，认为水氧化的活性中心至少要2个以上的金属离子位点才能实现高效催化水氧化。大量文献表明，许多金属有机配合物分子催化剂的确显示，双金属活性中心的耦合能有效降低水氧化反应活化能，但均相分子催化剂一般稳定性低，在水氧化过程自身容易被氧化破坏，不容易应用于实际的人工光合成体系中。

李灿研究团队一直致力于发展能够将太阳能人工光合成体系稳定的多相水氧化催化剂，先后尝试纳米 MnO_x (JPC, J.Catal.), IrO_x (ACS Catal.)和 CoO_x (Chem.Sci., JACS)催化剂并取得一定进展。研究发现，当 CoO_x 、 IrO_2 纳米尺度减小到 $1\text{-}2\text{nm}$ 时，水氧化活性(转化频率)可达到接近 10s^{-1} ，是目前报道的多相催化剂水氧化活性较高的水平之一。在此基础上进一步减小尺寸，直至单核 $\text{Mn}(\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{4+})$ 时，科研人员发现水氧化活性突跃上升到 200s^{-1} ，是目前报道的多相催化剂水氧化最高的活性，也达到PSII水氧化多核锰催化剂的水平。表征和理论计算结果表明单核锰催化剂上显示与多核锰上不同的水氧化反应机理。这一研究进展不仅为发展太阳能人工光合成高效水氧化催化剂开拓了新的方向，也将引发人们在科学上对多核锰水氧化催化剂及其机理进行重新认识。

以上工作得到国家自然科学基金、科技部“973”项目和UOP合作项目的资助。



大连化物所发现单核锰催化剂的水氧化活性可媲美自然光合作用催化剂

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](http://www.iikx.com)转发