上海高研院在质子交换膜电解合成双氧水研究方面获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/27767.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！

上海高研院在质子交换膜电解合成双氧水研究方面获进展。

基于质子交换膜（PEM）反应器的过氧化氢（H_2O_2）电合成，是一种很有前景的工业生产H_2O_2的方法。分子催化剂被认为是研究电催化二电子氧还原（$2e^-$ ORR）的新方案；特别是，碳载体上的氧官能团（OFGs）已被证明对分子中心的原子局部微环境具有重要影响，可以调节电子结构并改变$2e^-$ ORR性能，被称为OFG策略。然而，OFG策略侧重于OFGs的“初始”调控对活性位点电子结构“最终”变化的影响，却未研究特定OFG与活性中心相互作用的“过程”。这阻碍了活性中心的理性设计，使*OOH吸附能的优化停留在试错层面，制约了高性能分子催化剂的开发。此外，电合成H_2O_2的电流密度和质量浓度普遍偏低，无法满足实际应用。因此，亟待开发工业级电解槽。

近日，中国科学院上海高等研究院绿色氢能与高效储能研究团队在工业级电流密度下PEM电解合成H_2O_2方面取得进展。相关研究成果以*Oxygen Functional Groups Regulate Cobalt-Porphyrin Molecular Electrocatalyst for Acidic H_2O_2 Electrosynthesis at Industrial-Level Current*为题，发表在《德国应用化学》上。

该团队提出了特定的OFG调节策略，使用了与π-π堆叠策略耦合的受控热分解，设计了一系列还原氧化石墨烯负载的钴卟啉分子催化剂（CoTPP@RGO）。X射线光电子能谱显示，在特定的温度范围内，RGO上单个OFG的变化可以被控制。研究利用X射线吸附光谱、原位拉曼光谱和开尔文探针力显微镜发现，羧基和环氧基通过长程作用与Co中心相互作用，而羟基通过短程作用直接与Co中心配位，导致Co中心的不同电荷分布。密度泛函理论验证了关键中间体在特定OFG调节的活性中心上的吸附能不同，揭示了长程相互作用方式利于CoN_4活性位点，从而优化$2e^-$ ORR选择性。在流动池中，催化剂在200 mA cm^{-2}电流密度下实现了约21 mol h^{-1} g_{cat}^{-1}的稳定H_2O_2生产速率，甚至在500 mA cm^{-2}电流密度下达到了约50 mol h^{-1} g_{cat}^{-1}的速率。研究发现，以该催化剂为阴极的PEM电解槽，可以在约2.1 V的低电池电压和400 mA cm^{-2}的电流密度下连续稳定生产高达7wt%的纯H_2O_2水溶液超过200小时。上述成果为催化剂活性中心电子结构的理性设计提供了新策略。

研究工作得到国家重点研发计划等的支持。

分子催化剂在PEM电解合成双氧水器件中的应用

研究团队单位：上海高等研究院

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