

第二配位层微观结构对催化性能具有显著影响

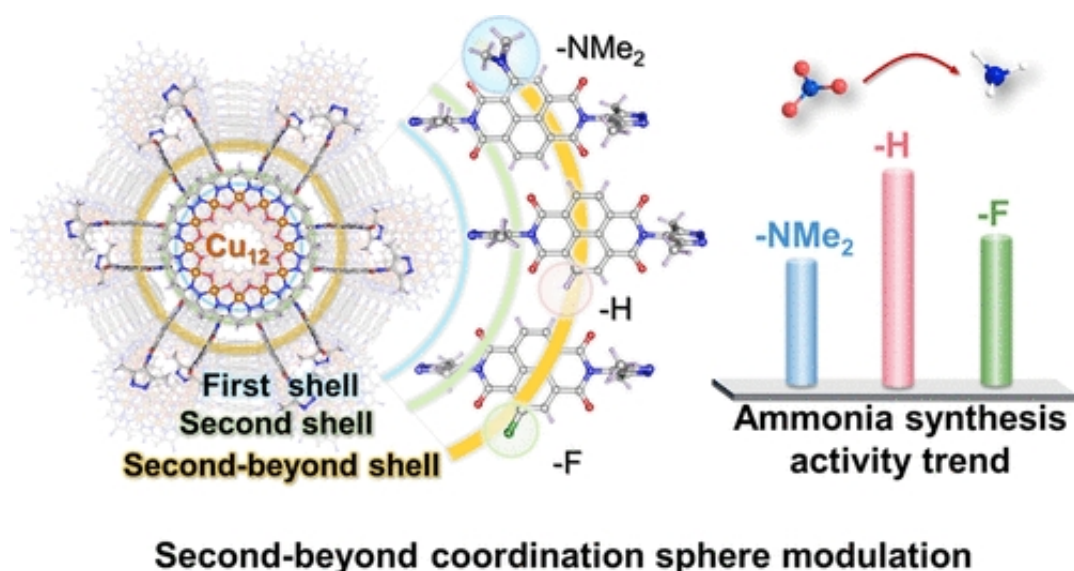
作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/31546.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！

近日，中国科学院大连化学物理研究所研究员章福祥团队设计合成了系列具有单原子Cu分散的金属有机框架电催化剂，并用于硝酸根选择性还原合成氨反应中，团队通过实验证明，调变Cu单原子活性位周边第二配位层之外的微结构，可显著影响其电子结构和电催化硝酸盐还原合成氨性能。相关成果发表在《美国化学会杂志》上。

单原子催化剂作为一种新兴的负载型金属催化剂，凭借其可调的局部配位环境、近100%的原子利用率、兼具多相催化和均相催化特点等优点，在多相催化领域引起了广泛关注。迄今为止，虽然已有大量报道证实单原子周边配位环境对催化性能具有显著影响，但是大多局限在第一配位层结构影响讨论，鲜有第二配位层调变影响报道，尤其是第二配位层之外的微观结构调变是否会显著影响催化位点的电子结构和催化性能尚不清楚。



第二配位层调变示意图。大连化物所供图

太阳能光催化技术是实现太阳能至化学能转化的重要方式之一，而助催化剂的开发是实现高效光化学转化的重要一环。本工作中，研究团队合成了一系列Cu₁₂-NDI-X (X = NMe₂、H、F) 金属有机框架材料，该材料由结构明确的CuO₂N₂节点组成，通过调节位于Cu节点的第二配位层之外的配体取代基团，探讨了配位结构对电化学硝酸盐还原合成氨的影响机制。团队首先通过电化学性能测试，从实验上确认了Cu活性位点的第二配位层之外的化学微环境对NO₃RR性能具有显著影响。原位表征和理论计算结果表明，与-NMe₂和-F基团相比，NDI配体中的-H取代基通过长程效应使Cu位点的d带中心上移，可有效加快NO₃⁻的吸附以及关键中间体的质子化动力学，阐明了其催化活性提升的内在机制。

本工作证明了第二配位层微观结构对催化性能具有显著影响，有望为开发高性能的单原子催化剂提供新思路。

相关论文信息：<https://doi.org/10.1021/jacs.4c14498>

作者：孙丹宁 来源：中国科学报

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