
研究揭示电子自旋态对高温析氧反应活性的调控机制

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/35584.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！

研究揭示电子自旋态对高温析氧反应活性的调控机制。近日，中国科学院大连化学物理研究所宋月锋副研究员等联合复旦大学教授汪国雄团队，在固体氧化物电解池（SOEC）阳极高温析氧反应（OER）性能调控研究中取得新进展。合作团队通过A位碱土金属掺杂，系统揭示了PrFeO₃钙钛矿体系中电子自旋态对高温OER性能的调控机制。相关成果发表在《美国化学会志》上。

SOEC具有电流密度高、法拉第效率高、过电势低等优势，被认为是实现二氧化碳减排和能源高效转换的关键技术之一，钙钛矿氧化物是常见的SOEC阳极材料。大量研究表明，在碱性电解水OER过程中，钙钛矿的电催化OER性能与eg轨道电子数呈火山型关系，在eg电子数接近1时活性最高。然而，目前对高温OER催化剂电子结构的精确调控机制尚不明确，尤其是eg电子占据数与高温OER活性的内在关联尚不清晰。

在本工作中，研究团队构建了一系列碱土金属掺杂的Pr_{1-x}Ae_xFeO₃材料。电化学测试结果表明，随着碱土金属离子半径的增大，材料的高温OER性能逐步提升。研究团队利用电导弛豫、¹⁷O同位素交换、准原位TOF-SIMS、原位XPS等多种物理化学表征手段，并结合理论计算，发现掺杂较大半径的碱土金属可增强Fe 3d - O 2p轨道杂化、降低电荷转移能，从而促进氧物种迁移与表面溢流过程，加速阳极反应动力学，提升高温OER性能。随后，团队开展进一步的磁学测试，揭示了电子自旋态的关键作用：随着钡元素的引入，PrFeO₃中的铁离子部分由高自旋三价铁转变为低自旋四价铁，导致eg电子数减少，从而有效促进了高温OER过程。

该研究明确了A位掺杂通过调控B位过渡金属自旋态以增强高温OER性能的机制，为理解电子结构与高温电催化活性之间的关系提供了新视角，也为基于电子结构工程的SOEC高性能阳极材料设计提供了重要依据。（来源：中国科学报 孙丹宁）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1021/jacs.5c10937>

作者：宋月锋等 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](http://www.iikx.com)转发