

单原子催化反应机理研究获新进展

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/35722.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！

单原子催化反应机理研究获新进展。在国家自然科学基金等项目的大力资助下，中山大学材料科学与工程学院王成新/李岩教授团队在单原子催化反应机理研究方面斩获重要新成果。相关研究论文近日发表于国际期刊《ACS催化》（ACS Catalysis）。

论文第一作者、中山大学材料科学与工程学院2023级硕士生黄以恒介绍，单原子催化剂凭借其高达100%的原子利用率，已然成为能源催化领域极具革命性的材料之一。其中，石墨烯负载的金属-氮-碳型单原子催化剂，因其活性中心明确，且载体具备优异的导电性，在各类能源转换和存储器件中展现出极为广阔的应用前景。

然而，当前金属-氮-碳型单原子催化剂的研发仍面临诸多棘手挑战。由于构效关系尚不清晰，尽管不同研究团队均发现铁-氮-碳单原子催化剂能够高效催化氧还原反应，但被广泛认可的活性位点FeN₄（氮配位铁位点）却呈现出不同的催化性能，且背后的原因一直未明。引入官能团是提升金属-氮-碳型单原子催化剂催化性能的有效手段之一，但目前报道的相关理论模型纷繁复杂、差异巨大，缺乏统一标准。此外，活性位点密度较低也是一大难题，单纯依靠提高金属原子的负载量，极易导致金属原子发生团聚现象。

针对上述难题，研究团队在前期工作基础上，运用第一性原理计算方法，着重探究了石墨烯材料中不可避免存在的含氧缺陷所发挥的作用。团队首先通过验证实验结果，发现在富氢热解环境下合成的铁-氮-碳单原子催化剂，其氧还原反应活性和稳定性均得到显著增强，由此证实FeN₄位点附近必然存在含氧缺陷。

进一步研究发现，这些含氧缺陷邻近的类sp³（1个s轨道和3个p轨道杂化形成4个sp³轨道）杂化碳原子易于吸附氢原子，进而额外激活碳原子成为活性位点。这一发现为通过缺陷工程增加活性位点密度开辟了全新的道路。与此同时，团队还修正了前人对铁-氮-碳型单原子催化剂催化小分子还原反应机理的认知，并阐明了此前实验课题组所报道的FeN₄催化性能差异的根源——碳材料中不可避免的含氧缺陷。

不仅如此，团队还创新性地提出了针对金属-氮-碳型单原子催化剂活性位点的标准化建模策略。借助这一策略，团队成功揭示了氟化NiN₄、氯化ZnN₄在二氧化碳还原和氧还原反应中的活性位点及催化机制，有效解决了以往研究中官能团化的MN₄单原子催化剂活性位点建模不统一的问题。

该研究成功攻克了金属-氮-碳型单原子催化剂领域的三大关键难题，为深入理解其构效关系提供了全新的视角与思路，有望推动单原子催化领域进一步发展。（来源：中国科学报 朱汉斌）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1021/acscatal.5c03974>

作者：王成新等 来源：《ACS催化》

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