

双原子电催化剂理性设计与构筑研究获进展

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/36550.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！

双原子电催化剂理性设计与构筑研究获进展。近日，中国科学院大连化学物理研究所研究员章福祥、肖建平团队，在双原子电催化剂（DACs）理性设计与构筑方面取得进展。团队基于具有优异导电性和水稳定性的金属有机框架材料（cMOF），通过对铜-镍双原子活性中心的精准调控，实现了在工业级电流密度下，接近100%选择性地高效合成氨，揭示了硝酸根电还原合成氨过程中的协同接力催化机制。

双原子催化剂凭借双金属活性位点间的协同作用，可有效突破单原子催化剂在多电子反应中的性能瓶颈。然而，DACs在结构均一化、位点精确控制，以及电子结构调节方面仍存在挑战。针对这一难题，研究团队以结构明确、水稳定且导电性能优异的MOF为模型平台，提出并验证了在导电MOF中，实现双原子位点精确构筑与调控的理性设计策略，为发展高效、可扩展的电催化体系提供了新思路。

团队合成了一系列 $\text{Cu}_x\text{Ni}_y\text{-DBCO}$ 导电MOF，通过系统调节铜/镍比例，实现了对硝酸根电还原制氨（ NO_3RR ）活性和选择性的精准优化。研究发现， $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NO}_2^-$ （R1）和 $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NH}_3$ （R2）两个关键反应步骤的相对速率，决定了整体合成氨性能。其中，位点明确、结构均一的 $\text{Cu}_{98.5}\text{Ni}_{1.5}\text{-DBCO}$ 催化剂实现了100%氨选择性、98.5%法拉第效率，以及 $200.7 \text{ mg h}^{-1} \text{ mgcat}^{-1}$ 的高产氨速率。

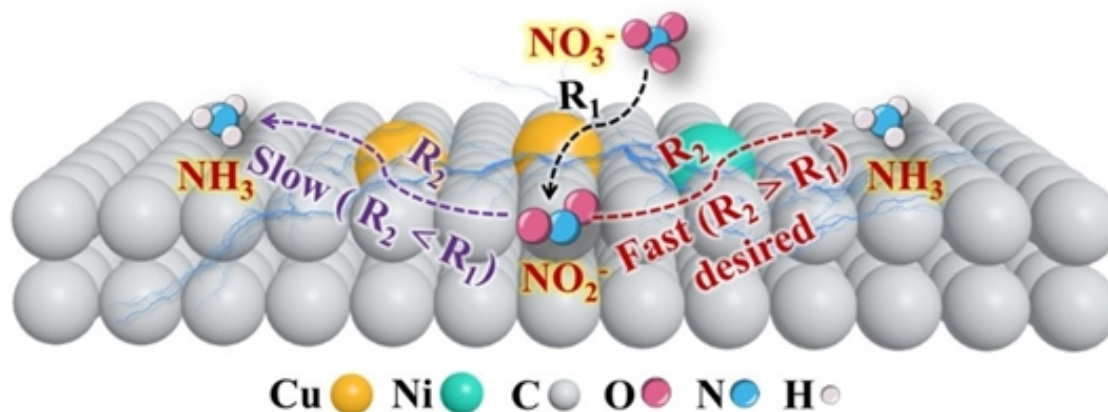
原位光谱表征与密度泛函理论计算揭示，铜位点优先还原硝酸根生成亚硝酸根中间体（ NO_2^- ），镍位点可将残余的 NO_2^- 转化为 NH_3 ，两者形成协同接力催化路径，实现高效且选择性突出的 $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NH}_3$ 转化过程。基于该高性能催化剂，研究团队进一步构筑了可充电 $\text{Zn}-\text{NO}_3^-$ 电池，实现了 35.6 mW cm^{-2} 的领先功率密度与优异的同时产氨性能，展示了导电MOF在可再生能源转化与储能领域的应用潜力。

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，助催化剂的开发是实现高效光化学转化的重要一环。近年来，团队致力于设计合成具有单原子分散的电催化新材料，围绕水氧化、水还原、氧还原、甲烷转化、合成氨及二氧化碳还原等典型反应，开发了系列高性能新材料，有望作为助催化剂构筑高效的太阳能光化学转化体系。

相关研究成果发表在《美国化学会志》上。研究工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金等的支持。（来源：中国科学院大连化学物理研究所）

相关论文信息：<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jacs.5c11655>

Rationally designed $\text{Cu}_{98.5}\text{Ni}_{1.5}$ -DBCO catalyst :
100% NH_3 selectivity and yield of $200.7 \text{ mg h}^{-1} \text{ mg}_{\text{cat}}^{-1}$



Conductive MOFs-based catalyst with defined Cu,Ni-diatomic structure

研究实现双原子催化位点的理性设计与高选择性电催化合成氨

特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性；如其他媒体、网站或个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“来源”，并自负版权等法律责任；作者如果不希望被转载或者联系转载稿费等事宜，请与我们接洽。

作者：章福祥等 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](https://www.iikx.com)转发