

# 非水系氢气氧化反应领域研究获进展

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/38143.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！**

非水系氢气氧化反应领域研究获进展。中国科学院长春应用化学研究所在非水系氢气氧化反应领域中取得重要突破。张新波研究团队成功开发出一种镍单原子表面调控的铂基催化剂，该催化剂在四氢呋喃(THF)电解液中表现出近100%的法拉第效率和超1000h的长期稳定性（商用铂电极， $<0.2\text{h}$ ），实现了高效且持续的氢气氧化反应(HOR)。此单原子掺杂调控贵金属表面的策略为设计高效且抗毒化的催化剂打开了新思路。相关研究成果以"Surface Modulated Platinum Electrocatalyst via Single Atom Nickel Promoter for Durable Non-aqueous Hydrogen Oxidation"为题，发表于国际权威化学期刊《Angewandte Chemie International Edition》。

锂介导氮气还原被认为是极具发展潜力的绿色合成氨技术之一。在传统体系中，有机溶剂氧化作为反应中的质子源，但该过程导致体系不稳定，严重阻碍了合成氨反应的连续进行。近期，使用HOR替代原有溶剂氧化反应，可持续供给质子，为连续合成氨带来了新机遇。然而，HOR在有机电解液体系中面临着本征反应动力学缓慢、催化剂易受溶剂和碳基中间体毒化失活等挑战。

针对上述挑战，研究团队设计并合成了镍单原子表面调控的铂基催化剂(PtNi1)，利用Ni单原子对Pt催化剂进行电子结构调控，优化氢中间体的吸附-脱附行为，加速HOR本征动力学。构筑对THF强吸附的Ni单原子中心，优先吸附竞争性有机分子，避免毒化Pt位点。得益于氢气氧化动力学的提升和对溶剂氧化副反应的抑制，系统选择性与稳定性大幅提升。

PtNi1电催化剂不仅实现了高效的HOR过程（图1a），且表现出了远优于商业Pt电极（图1b）的抗毒化性能，在THF电解液中实现了近100%的HOR法拉第效率（图1c）和超1000小时的稳定性（图1d）。团队提出镍单原子主要通过配体效应优化Pt位点的电子结构（图2a），以促进 $\text{H}^*$ 脱附步骤（图2b），有效降低了决速步的能垒（图2c）；同时作为协同位点，改变THF吸附构型（图2d），提高了THF氧化分解能垒，从而抑制Pt位点上发生溶剂氧化反应（图2e）。将该阳极过程与锂介导氮气还原反应耦合，可在流动反应器中连续进行合成氨反应，并在 $40\text{mA cm}^{-2}$ 电流密度下实现56.6%的氨法拉第效率和 $7.77\text{nmol s}^{-1}\text{ cm}^{-2}$ 的产率，其能耗较传统牺牲溶剂法降低约42%。得益于上述的性能优势，该催化电极可直接应用于分布式绿氨制备、氢-氨耦合储能、非水系燃料电池等能源存储与转化技术。该催化剂设计为有机电解液体系中的抗毒化提供了新的解决方案。

该研究工作得到了国家重点研发计划和国家自然科学基金委项目的资助。（来源：中国科学院长春应用化学研究所）

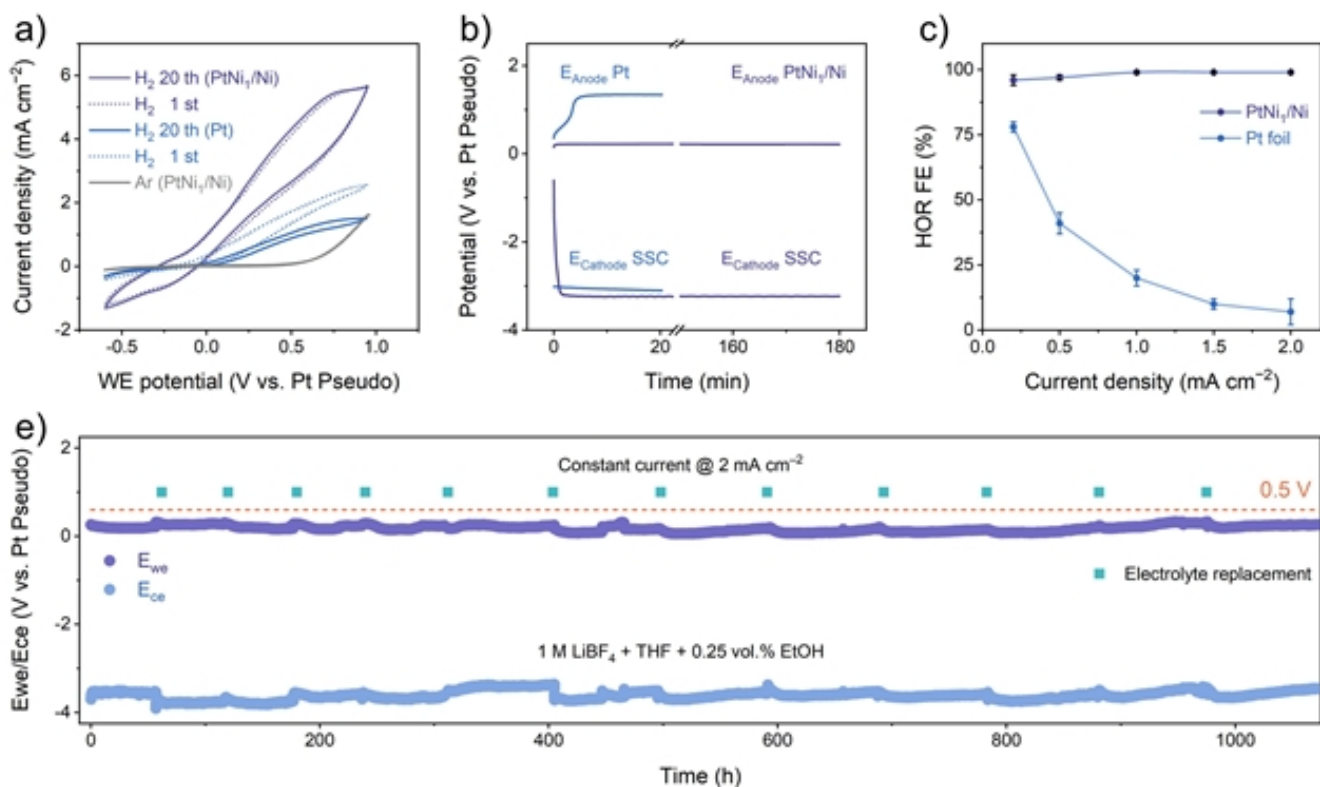


图1. 电催化氢氧化反应性能

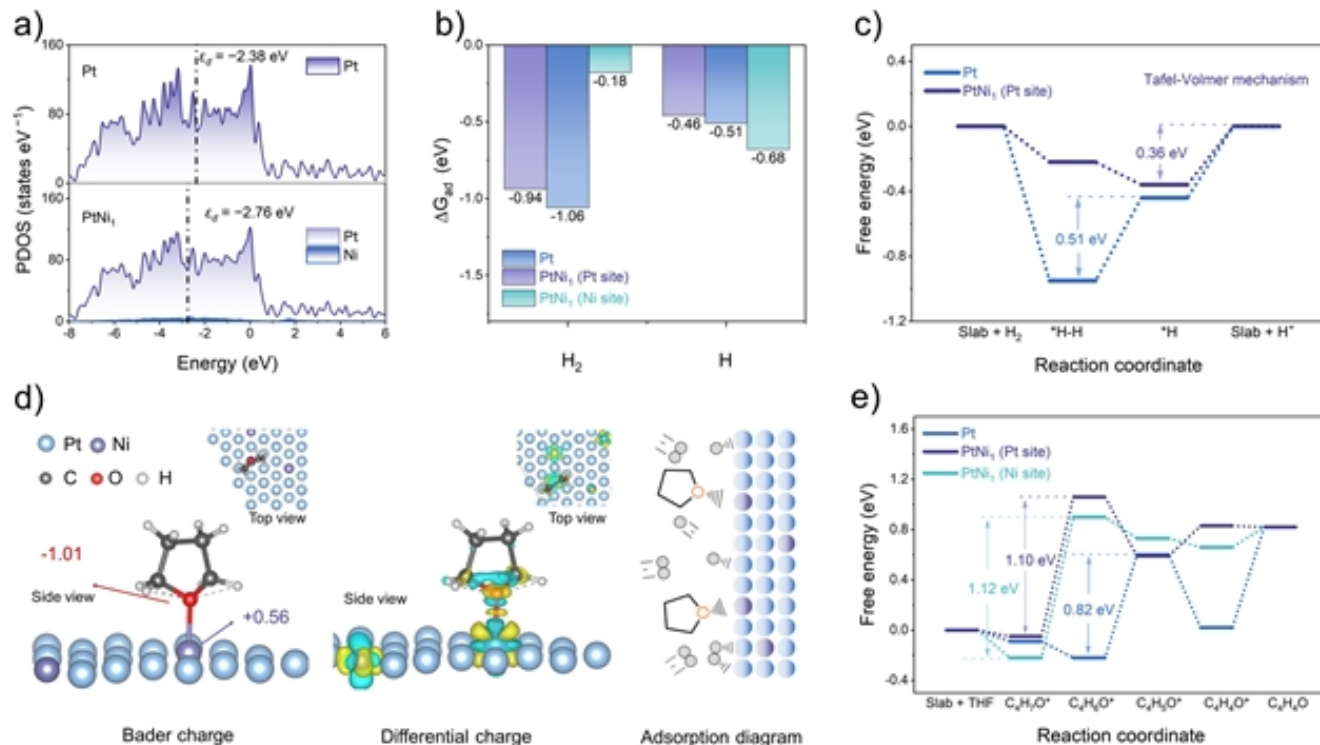


图2. 抗毒化机理研究

相关论文信息：<https://doi.org/10.1002/anie.202522380>

---

作者：张新波等 来源：《德国应用化学》

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