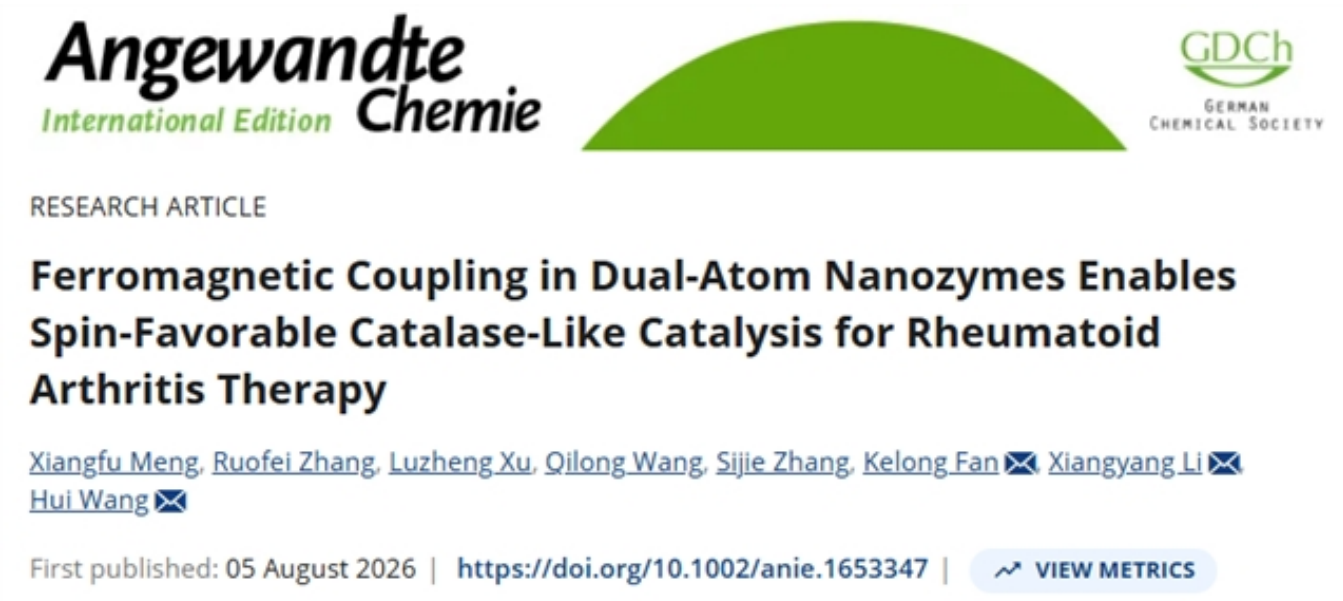
# 中国科学院合肥物质院王辉，中国科学院生物物理所范克龙，合肥国家实验室李向阳Angew：铁磁耦合双原子纳米酶实现自旋优化的类过氧化氢酶催化及类风湿关节炎治疗

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/42227.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！*

**中国科学院合肥物质院王辉，中国科学院生物物理所范克龙，合肥国家实验室李向阳Angew：铁磁耦合双原子纳米酶实现自旋优化的类过氧化氢酶催化及类风湿关节炎治疗**。论文信息




近日，中国科学院合肥物质科学研究院强磁场科学中心王辉研究员团队与中国科学院生物物理研究所范克龙研究员团队合作，围绕铁单原子纳米酶类过氧化氢酶（CAT-like）活性受限，以及相邻金属位点间磁耦合效应和催化机制尚不明确等问题，构筑了具有高效类过氧化氢酶活性的铁双原子纳米酶py-Fe-DA。团队利用电子顺磁共振（EPR）、超导量子干涉仪（SQUID）等磁性表征手段，并结合密度泛函理论计算，揭示了氮配位环境诱导的铁磁耦合可为H2O2分解打开自旋有利通道。

相关研究成果以Ferromagnetic Coupling in Dual-Atom Nanozymes Enables Spin-Favorable Catalase-Like Catalysis for Rheumatoid Arthritis Therapy为题，发表在Angewandte Chemie International Edition上。

从单原子到双原子：引入相邻位点的磁协同变量

类过氧化氢酶（CAT-like）纳米酶能够催化H2O2歧化生成H2O和O2，在维持氧化还原稳态、缓解活性氧相关组织损伤方面展现出重要应用潜力。单原子纳米酶具有原子利用率高、活性位点结构相对明确等优势，但由于金属中心彼此孤立，其电子结构和自旋状态的协同调控空间仍然有限，催化性能的进一步提升面临挑战。双原子位点在保留原子级分散特征的同时，引入了相邻金属中心之间的相互作用，为调节局域电子结构、自旋状态及反应中间体的活化行为提供了新的维度。

基于此，本研究聚焦一个关键科学问题：相邻铁位点之间的磁耦合能否成为调控CAT-like活性的关键因素？如果能够通过改变局域配位环境调节双铁位点的磁耦合方式，就有望在不改变金属组成的前提下，重构活性中心的电子与自旋状态，优化H2O2活化及O2生成过程，从而实现更高效的类过氧化氢酶催化。

级联构筑策略带来2.4倍活性提升

研究团队采用空位诱导与静电吸附相结合的级联构筑策略，制备了相邻铁双原子活性位点，并通过调节热解温度获得两种具有不同氮配位环境的代表性材料：以吡咯氮配位为主的pr-Fe-DA和以吡啶氮配位为主的py-Fe-DA。结构表征显示，两种材料均保持双原子位点特征，但局域配位环境的差异显著改变了铁中心的电子和磁学性质。

催化性能测试表明，py-Fe-DA可高效催化H2O2分解并释放O2，其CAT-like比活性达到100.13 U · mg-1，是pr-Fe-DA（41.67 U · mg-1）的约2.4倍。由此可见，决定活性的并非仅是是否形成双原子位点，双原子周围的氮配位类型同样至关重要。

从反铁磁到铁磁：打开自旋有利反应通道

EPR、SQUID等磁性测量和理论计算共同表明，当主导配位环境由吡咯氮转变为吡啶氮时，相邻铁位点之间的磁耦合由反铁磁转向铁磁。py-Fe-DA中的平行自旋排列有利于吸附态H2O2中两个氧原子的自旋匹配，从而促进O-H键断裂和O2生成。

密度泛函理论计算进一步显示，铁磁耦合使限速步骤的吉布斯自由能变化由0.84 eV降至0.08 eV，显著改善了反应热力学过程。研究由此建立了氮配位环境铁中心自旋状态—磁耦合方式—CAT-like反应路径之间的关联，为解释py-Fe-DA的高活性提供了清晰的机制链条。

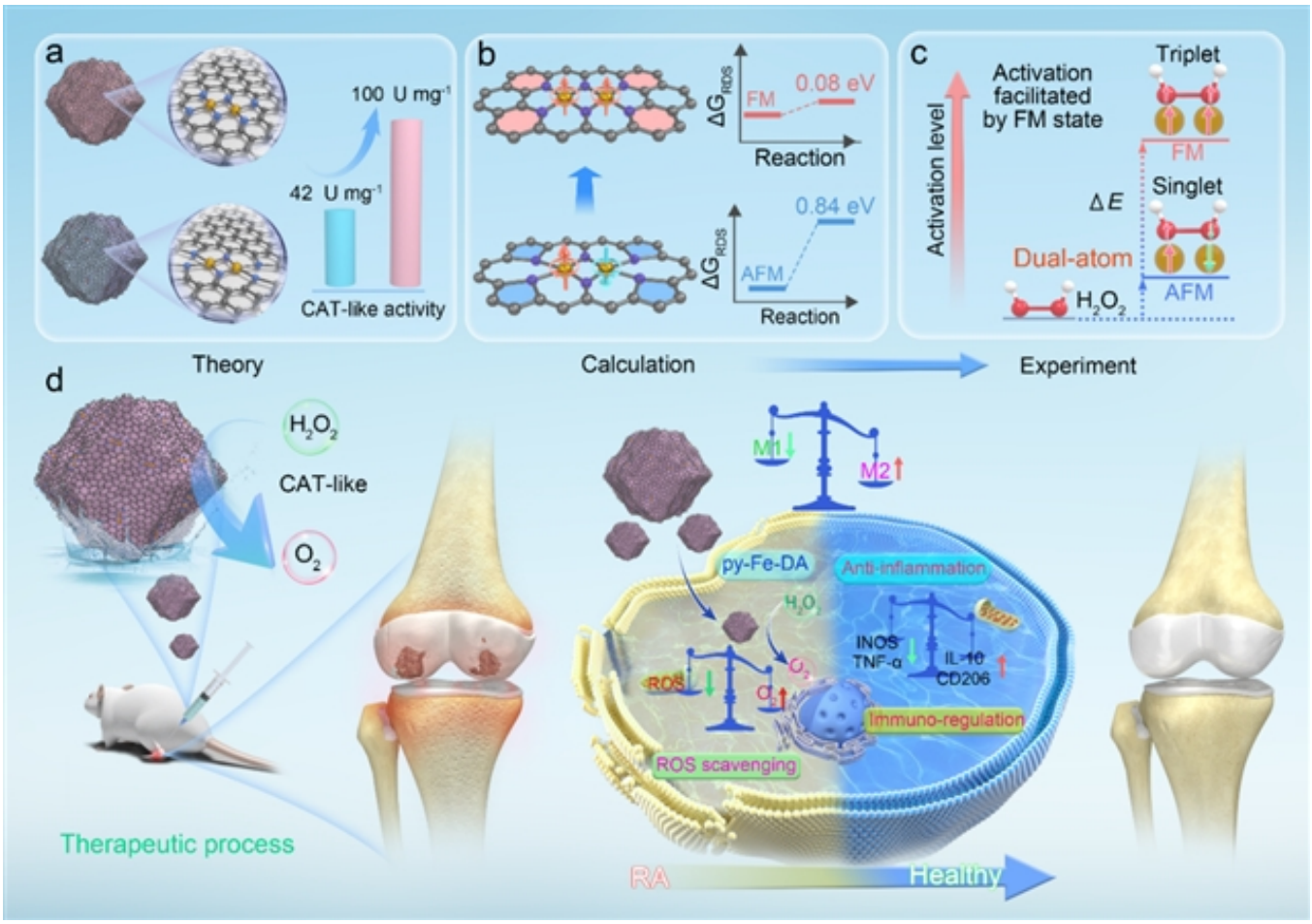



图1 py-Fe-DA的自旋调控类过氧化氢酶催化及类风湿关节炎治疗示意图。

从清除活性氧到缓解关节炎症

类风湿关节炎病灶中的活性氧过量与持续炎症相互促进。基于py-Fe-DA突出的CAT-like活性，研究团队在胶原诱导性关节炎小鼠模型中评估了其治疗作用。实验结果显示，py-Fe-DA能够有效缓解氧化应激和炎症反应，并改善关节炎相关症状，说明磁耦合调控不仅带来体外催化性能提升，也能够转化为疾病模型中的生物学效应。

总结与展望

该研究将磁耦合引入CAT-like活性的关键描述符体系，把双原子纳米酶的设计从几何结构和局域配位调控进一步推进到自旋与磁相互作用层面。通过协同调节配位环境和磁耦合方式，研究团队为构筑高性能抗氧化纳米酶提供了新的理论依据，也为类风湿关节炎等氧化应激相关疾病的纳米催化治疗提供了新的研究思路。

期刊介绍




Angewandte Chemie是全球化学领域最具影响力的顶级期刊之一，由德国化学会（German

Chemical Society, GDCh）出版，创刊于1887年，最新影响因子为16.9。

来源：Angewandte Chemie

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转发