电子结构与空间构型同步调控的双原子催化中心研究获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/7438.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M-N-C材料被认为是最有前景的非贵金属ORR催化剂，其活性中心被鉴定为模拟生物卟啉中心的金属-氮配位结构，之前的研究工作表明，具有各种金属中心的M-N-C催化剂遵循Sabatier原理，其中“恰好”的M-O结合强度有助于催化性能的最大化。目前最优的Fe-N-C催化剂位于M-N-
C火山型曲线
右端，结合能过强，距顶点
尚有距离。Fe(III)/Fe(II)氧化还原电位（E_{redox}
）可作为有效的M-O结合能判定指标，提高E_{redox}即减弱Fe-
O结合能，推动Fe基催化剂性能向火山曲线顶端移动。

基于此，中国科学院长春应用化学研究所研究员邢巍、葛君杰联合武汉大学教授陈胜利与上海光源研究员姜政设计了$FeCoN_5$
双原子位点，水在该中心上自发解离生成新
的$FeCoN_5OH$稳定位点，可调控Fe的d-
轨道能级，提升Fe的E_{redox}
。结合DFT理论计算与原位X射线近边吸收光谱（XANES）证实该新型活性位点上的Fe(III)/Fe(II)氧化还原电势得到提高，从而大幅提升ORR性能，促进Fe基催化向火山曲线顶端移动。实验证实$FeCoN_5$-OH位点活性极高，其表现出约FeN_4
位点本征活性的20倍，在酸性电解质中具有空前的ORR活性（E_{onset} = 1.02 V，$E_{1/2}$ = 0.86 V），这归因于量身定制的电子和空间几何结构。可以预期，OH-配体策略与簇状金属中心结构相结合，可以开发具有更高ORR活性的更有效的催化剂，从而使取代Pt基催化剂真正可行。该发现为原子级调制活性位点的电子结构开辟了新的思路，对全面深入理解ORR电催化剂的双原子活性中心提出了新的见解。该文章发表于《美国化学会志》（*J. Am. Chem. Soc.*，2019, 141, 17763-17770)。

文章链接

非贵金属催化剂ORR火山曲线漫步：电子结构与空间构型同步调控的双原子催化中心

研究团队单位：长春应用化学研究所

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