单原子催化剂在重金属的电分析研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/8904.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！

近日，中国科学院合肥物质科学研究院智能机械研究所研究员黄行九团队与中国科学技术大学教授曾杰合作，首次利用分散在氮掺杂的多孔碳上的Co单原子催化剂（Co SAC）实现了对As(III)超高灵敏和选择性电化学检测。同时结合同步辐射X射线吸收精细结构（XAFS）技术、密度泛函理论计算（DFT）和动力学模拟计算等手段，从电催化的角度详细探究了Co SAC和H_3AsO_3在电化学分析过程中的相互作用方式和工作机制。相关结果已被*Analytical Chemistry*接收发表（DOI: 10.1021/acs.analchem.0c00677）。

近年来，各种纳米材料如贵金属、合金、碳材料、金属氧化物及其复合物已广泛应用于As(III)的电化学分析中。然而，大多数研究主要依靠经验检验，仅仅关注检测的灵敏度、检测限、选择性等电化学现象，而忽略了相应的检测机制，因此，想要真正实现水中As(III)的高灵敏度和选择性检测仍然是一个巨大的挑战。实际上，电化学检测的本质是传感界面处的电催化反应过程，该反应会影响As(III)的富集/还原和相应的溶出/氧化信号，但目前仍缺少从电催化角度的科学认识。因此探究传感界面与目标分析物之间的相互作用，并阐明相应的电催化机理，对于开发有效的功能传感界面以实现As(III)的高灵敏度和选择性检测至关重要。

基于以上问题，研究人员首先成功地合成了Co SAC催化剂并将其用于As(III)的电化学检测，可实现11.44 μA ppb^{-1}的超高灵敏度和对As(III)出色的选择性。该灵敏度在目前报道的非贵金属催化剂中是最高的，甚至优于大多数贵金属纳米材料。结合XAFS和DFT计算结果，研究人员发现反应过程中H_3AsO_3分子被Co-N_2C_2活性位点催化活化并形成Co-O杂化键，从而导致H_3AsO_3还原过程中As-O解离步骤的能垒降低。此外，反应动力学模拟计算表明，第一电子转移过程是整个H_3AsO_3还原的限速步骤，其在Co SAC上比在Co 纳米颗粒材料（Co NPs）上快得多，从而促进As(0)的快速大量沉积，大大增强了As(III)的电化学响应信号。对于As(III)的选择性也归因于Co-O杂化键的形成，因为Co SAC与不含氧阴离子的普通二价重金属离子之间没有特定的相互作用位点。

这项工作首次利用单原子催化剂构筑传感界面用于重金属离子的电化学分析，拓展了单原子催化剂在电分析领域的应用。通过先进的XAFS表征，DFT计算和动力学数值模拟，可以有效地将原

子、电子结构与宏观电化学现象联系起来，表明了传感材料的电催化能力在对分析物的灵敏和选择性检测中起着至关重要的作用。对Co SAC工作机理的研究为设计环境应用中的功能传感界面提供了原子级的催化见解和重要的理论指导。同时，也为催化处理和去除水环境中的此类污染物提供了启发。

文章链接

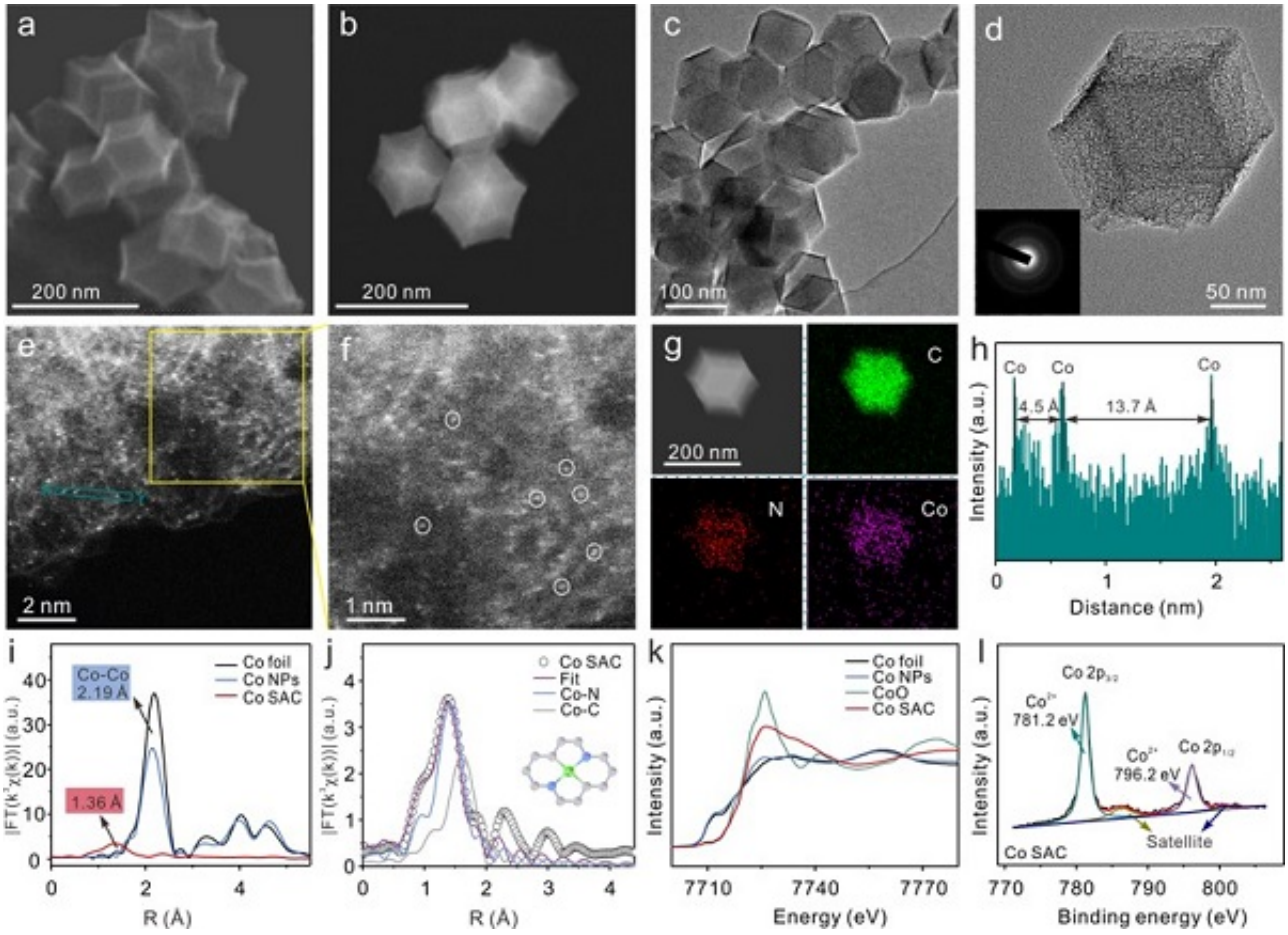


图1. Co SAC材料形貌和结构表征

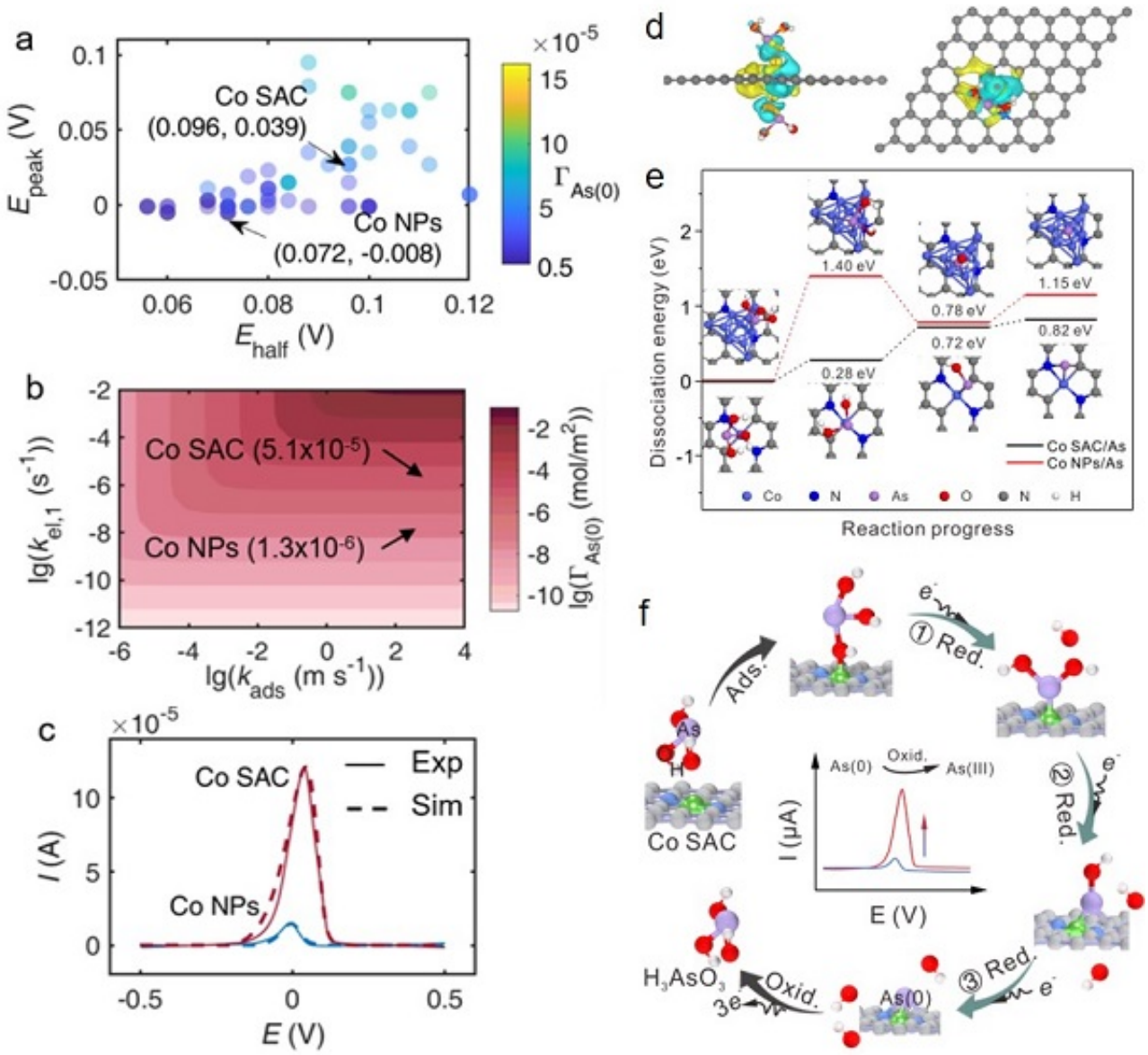


图2. a)-c)动力学数值拟合; d), e) DFT计算; f)增强电化学检测机理图

研究团队单位：合肥物质科学研究院

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