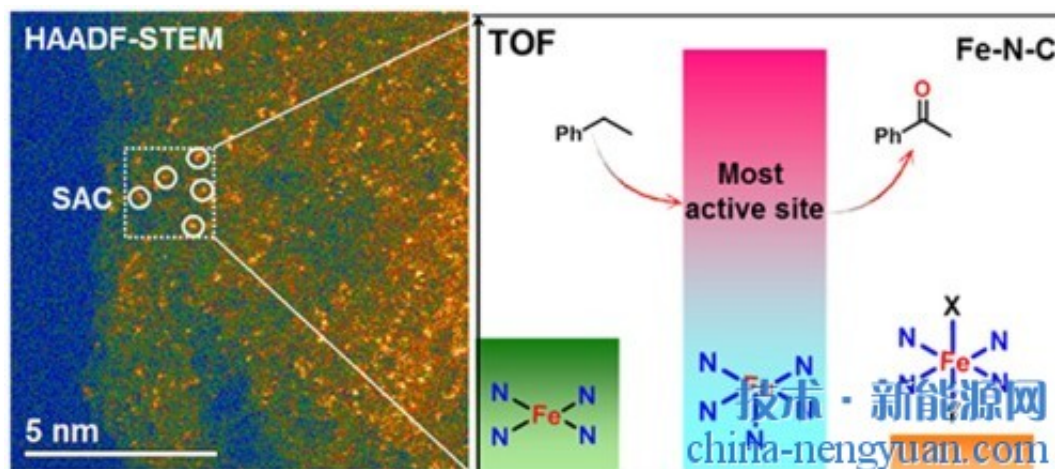


大连化物所单原子催化剂研究取得新进展



近日，中国科学院大连化学物理研究所航天催化与新材料研究中心的中科院院士张涛和研究员王爱琴团队在单原子催化剂研究领域取得新进展，制备出单原子分散的Fe-N-C催化剂，并将其应用于C-H键选择性氧化反应中，获得了优异的活性和选择性。特别是利用包括X射线吸收光谱和穆斯堡尔谱在内的多种表征技术，首次证明了中自旋Fe-N5结构具有最高的催化活性。相关结果以全文形式发表于《美国化学会志》(J. Am. Chem. Soc., DOI: 10.1021/jacs.7b05130)。

M-N-C催化剂(M代表Fe、Co、Ni等)被广泛应用于电化学反应(如ORR、HER、CO₂RR)和有机化学反应中，因其优异的催化性能有望成为一种替代Pt族金属的非贵金属催化剂。但由于M-N-C催化剂的组成较为复杂，对其活性中心的认识存在诸多争议。而单原子分散的催化剂由于避免了M₀、M₂O_x、M₂C_x等纳米颗粒的干扰，为活性位的精细结构解析提供了独特优势。此前，该研究团队已经合成出单原子分散的Co-N-C催化剂，并确定其结构为CoN₄C₈-1-2O₂(Chem. Sci., 2016, 7, 5758-5764)。在此基础上，该团队又成功制备出单原子分散的Fe-N-C催化剂，该催化剂在乙苯C-H键选择性氧化反应中的催化活性和选择性可媲美均相催化剂，且具有优异的底物普适性和反应稳定性。更为重要的是，通过XAFS、Mössbauer、EPR和毒化试验首次证明Fe-N-C催化剂中三价铁离子存在多种配位结构(FeN_x, x = 4, 5, 6)，其中中自旋的Fe-N5结构具有最高催化活性，而该结构在数量上却仅占18%，说明Fe-N-C催化剂的活性具有很大的提升空间，这对于后续指导人们设计更为高效的Fe-N-C催化剂提供了新的思路。

上述研究工作得到国家自然科学基金委、科技部、中科院战略性先导科技专项和教育部能源材料化学协同创新中心的资助。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/112401.html>