

## 上海高研院在质子交换膜电解合成双氧水研究方面获进展

基于质子交换膜（PEM）反应器的过氧化氢（ $\text{H}_2\text{O}_2$ ）电合成，是一种很有前景的工业生产 $\text{H}_2\text{O}_2$ 的方法。分子催化剂被认为是研究电催化二电子氧还原（ $2\text{e}^-$ -ORR）的新方案；特别是，碳载体上的氧官能团（OFGs）已被证明对分子中心的原子局部微环境具有重要影响，可以调节电子结构并改变 $2\text{e}^-$ -ORR性能，被称为OFG策略。然而，OFG策略侧重于OFGs的“初始”调控对活性位点电子结构“最终”变化的影响，却未研究特定OFG与活性中心相互作用的“过程”。这阻碍了活性中心的理性设计，使 $^*\text{OOH}$ 吸附能的优化停留在试错层面，制约了高性能分子催化剂的开发。此外，电合成 $\text{H}_2\text{O}_2$ 的电流密度和质量浓度普遍偏低，无法满足实际应用。因此，亟待开发工业级电解槽。

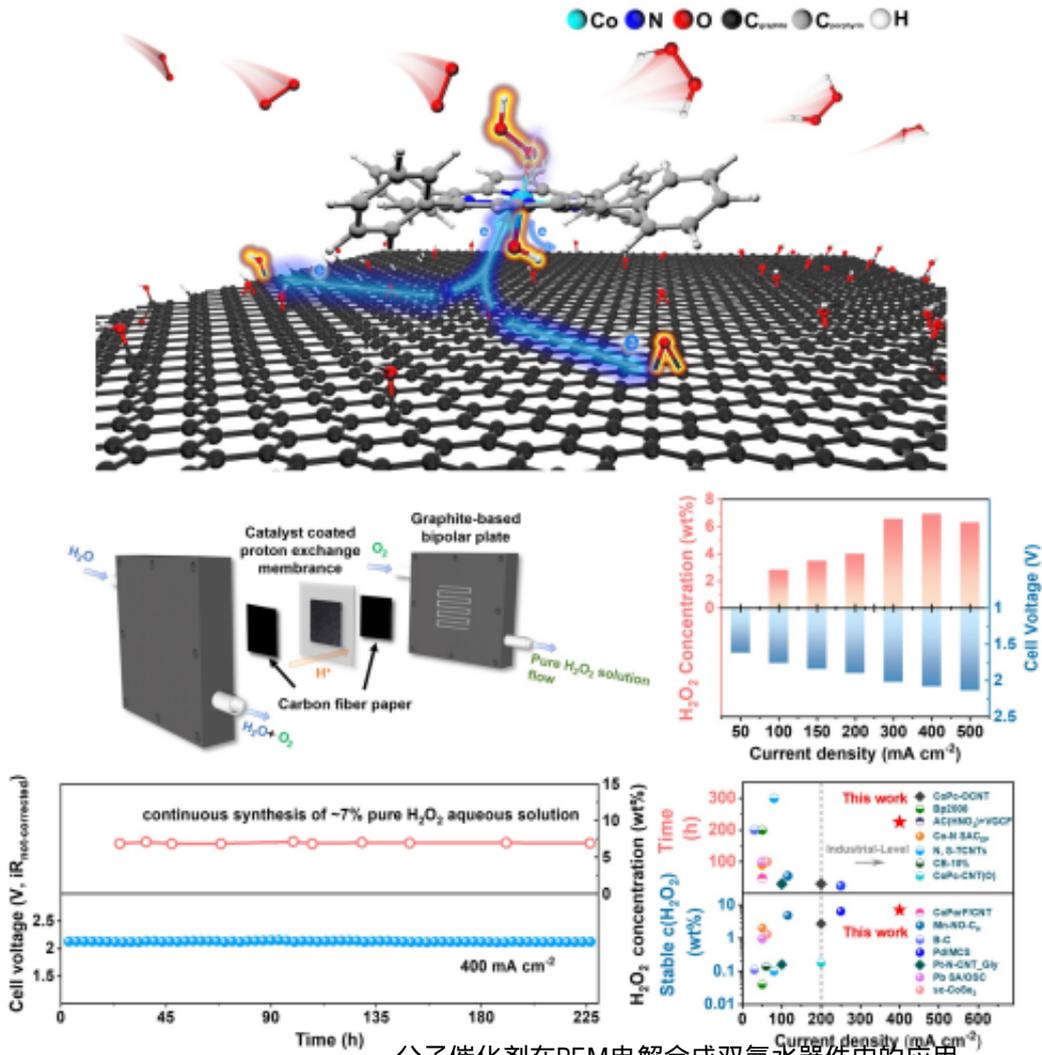
近日，中国

科学院上海高等研究院绿色

氢能与高效储能研究团队在工业级电流密度下PEM电解合成 $\text{H}_2\text{O}_2$ 方面取得进展。相关研究成果以Oxygen Functional Groups Regulate Cobalt-Porphyrin Molecular Electrocatalyst for Acidic  $\text{H}_2\text{O}_2$  Electrosynthesis at Industrial-Level Current为题，发表在《德国应用化学》上。

该团队提出了特定的OFG调节策略，使用了与 - 堆叠策略耦合的受控热分解，设计了一系列还原氧化石墨烯负载的钴卟啉分子催化剂（CoTPP@RGO）。X射线光电子能谱显示，在特定的温度范围内，RGO上单个OFG的变化可以被控制。研究利用X射线吸附光谱、原位拉曼光谱和开尔文探针力显微镜发现，羧基和环氧基通过长程作用与Co中心相互作用，而羟基通过短程作用直接与Co中心配位，导致Co中心的不同电荷分布。密度泛函理论验证了关键中间体在特定OFG调节的活性中心上的吸附能不同，揭示了长程相互作用方式利于CoN4活性位点，从而优化 $2\text{e}^-$ -ORR选择性。在流动池中，催化剂在 $200\text{ mA cm}^{-2}$ 电流密度下实现了约 $21\text{ mol h}^{-1}\text{ gcat}^{-1}$ 的稳定 $\text{H}_2\text{O}_2$ 生产速率，甚至在 $500\text{ mA cm}^{-2}$ 电流密度下达到了约 $50\text{ mol h}^{-1}\text{ gcat}^{-1}$ 的速率。研究发现，以该催化剂为阴极的PEM电解槽，可以在约2.1 V的低电池电压和 $400\text{ mA cm}^{-2}$ 的电流密度下连续稳定生产高达7wt%的纯 $\text{H}_2\text{O}_2$ 水溶液超过200小时。上述成果为催化剂活性中心电子结构的理性设计提供了新策略。

研究工作得到国家重点研发计划等的支持。



分子催化剂在PEM电解合成双氧水器件中的应用

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/212472.html>