[Highlight]

doi: 10.3866/PKU.WHXB201904076

www.whxb.pku.edu.cn

单位点催化剂的简便构筑方法、原理及性能研究

刘忠范

北京大学化学与分子工程学院, 北京 100871

The Simplest Construction of Single-Site Catalysts for Efficient Energy Conversion

LIU Zhongfan

College of Chemistry and Molecular Engineering, Peking University, Beijing 100871, P. R. China.

Email: zfliu@pku.edu.cn.

Published online: April 24, 2019.

Pt₁/hNCNC 单位点催化剂的形貌与氢析出性能: (a) HAADF-STEM 照片; (b) EXAFS 图谱, 其中 Pt/hCNC 表示通过相同方法在未掺杂碳纳米管上构建的催化剂, Pt-NPs/hNCNC 表示 hNCNC 负载的 Pt 纳米粒子催化剂, Pt₁/hNCNC 和 Pt/hCNC 中 Pt 载量均为 2.92% (w, 质量分数); (c) 氢析出线性扫描伏安谱, 其中 Pt₁/hNCNC 后接数值表示 Pt 载量(%); (d) 氢析出稳定性, Pt₁/hNCNC 和 Pt/hCNC 中 Pt 载量均为 2.92% (w), Pt/C 中 Pt 载量为 20% (w)。

单位点催化剂(文献中也时常称为单原子催化剂)是负载型催化剂的极限, 因其最大的原子利用率、独特的催化性能、均一的配位环境等特点成为近年来科学研究的前沿热点¹。金属单原子表面

能高, 容易团聚, 其制备过程通常较为复杂, 因此, 方便地构建稳定性高的单位点催化剂对于开展相关基础或应用研究均意义重大²⁻⁴。

近年来, 南京大学胡征教授领衔的能源纳米

材料物理化学课题组发展了具有自主知识产权的技术路线, 开发出具有新颖介观结构、高比表面积、微孔-中孔-大孔共存、便于掺杂调变的碳基纳米笼新材料, 展现出一系列十分优异的能源转化及储存性能⁵⁻⁷。本项研究中, 他们以氮掺杂碳纳米笼(hNCNC)为载体, 利用笼壁上丰富的微孔(~0.6 nm)易于捕获金属配位阴离子、掺杂氮原子利于锚定金属原子的协同作用, 通过最简单的浸渍-吸附-烘干(70 °C)过程, 制得了M₁/hNCNC (M = Pt、Pd、Au、Ir等)单位点贵金属催化剂。Pt₁/hNCNC催化剂的Pt载量可高达5.68% (w, 质量分数), 在酸性介质中表现出极低的氢析出过电位、超高的质量活性和优异的稳定性(见上图)。通过理论和实验研究揭示了Pt单位点催化剂的形成机制及其优异稳定性的根源。本项研究揭示的微孔捕获和杂原子锚定的协同作用为方便构建高稳定单位点催化剂提供了新的思路和方法, 对于促进单位点催化剂的基础研究和实际应用具有重要价值。相关论文最近发表于*Nature Communications*杂志上⁸。该研究得到了国家自然科学基金重点项目、科技部纳米重大研究计划等项目的资助。

References

- (1) Qiao, B. T.; Wang, A. Q.; Yang, X. F.; Allard, L. F.; Jiang, Z.; Cui, Y. T.; Liu, J. Y.; Li, J.; Zhang, T. *Nat. Chem.* **2011**, *3*, 634. doi: 10.1038/NCHEM.1095
- (2) Yang, X. F.; Wang, A. Q.; Qiao, B. T.; Li, J.; Liu, J. Y.; Zhang, T. *Acc. Chem. Res.* **2013**, *46*, 1740. doi: 10.1021/ar300361m
- (3) Zhang, H. B.; Liu, G. G.; Shi, L.; Ye, J. H. *Adv. Energy Mater.* **2018**, *8*, 1701343. doi: 10.1002/aenm.201701343
- (4) Zhu, C. Z.; Fu, S. F.; Shi, Q. R.; Du, Q.; Lin, Y. H. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, *56*, 13944. doi: 10.1002/anie.201403864
- (5) Xie, K.; Qin, X. T.; Wang, X. Z.; Wang, Y. N.; Tao, H. S.; Wu, Q.; Yang, L. J.; Hu, Z. *Adv. Mater.* **2012**, *24*, 347. doi: 10.1002/adma.201103872
- (6) Wu, Q.; Yang, L. J.; Wang, X. Z.; Hu, Z. *Acc. Chem. Res.* **2017**, *50*, 435. doi: 10.1021/acs.accounts.6b00541
- (7) Yang, L. J.; Shui, J. L.; Du, L.; Shao, Y. Y.; Liu, J.; Dai, L. M.; Hu, Z. *Adv. Mater.* **2019**, *31*, 1804799. doi: 10.1002/adma.201804799
- (8) Zhang, Z. Q.; Chen, Y. G.; Zhou, L. Q.; Chen, C.; Han, Z.; Zhang, B. S.; Wu, Q.; Yang, L. J.; Du, L. Y.; Bu, Y. F.; et al. *Nat. Commun.* **2019**, *10*, 1657. doi: 10.1038/s41467-019-09596-x