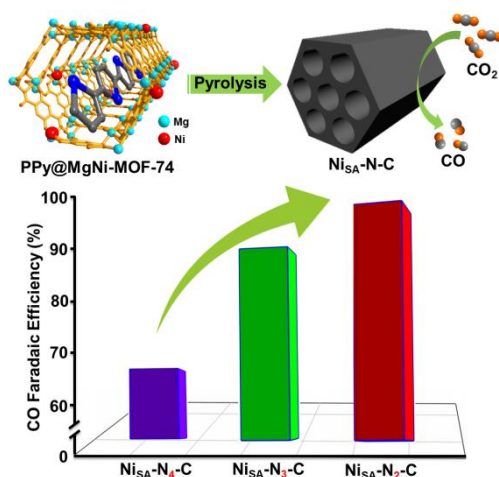




调控 MOF 基单原子 Ni 催化剂的配位环境优化电催化 CO₂ 还原性能

单原子催化剂 (SACs) 由于具有金属原子最大化的利用率、高的催化活性和选择性等优势引起了人们广泛的关注。此外, SACs 作为连接非均相催化和均相催化之间的理想模型, 其性质与结构密切相关。而 SACs 的通用合成和配位环境的控制仍然是一个巨大的挑战。金属有机框架材料 (MOFs) 具有明确的结构、灵活可剪裁性、易于功能化等已被证明是制备 SACs 的理想前驱体, 但目前的构筑策略限制在 MOFs 必须含有丰富的 N 原子。

近日, 中国科学技术大学的江海龙教授、刘波教授与广东工业大学的潘春阳教授等提出了一种通用的主-客体协同保护策略制备 SACs, 他们首次选择不含 N 的双金属 MgNi-MOF-74 作为前驱体, 引入 Mg 延长了相邻 Ni 原子的空间距离。此外, 在 MOF 孔道中引入聚吡咯 (PPy) 分子作为 N 源, 以稳定热解过程中分离的 Ni 原子, 通过调节热解温度, 获得了一系列 N 配位数不同的单原子 Ni 催化剂。此外, 采用这种主-客体协同保护策略也制备了单原子 Fe 和 Co 催化剂。电催化 CO₂ 还原测试表明, 具有最低的 N 配位数的 Ni_{SA}-N₂-C 表现出最高的法拉第效率 (98%) 和周转频率 (1622 h⁻¹)。理论计算表明, Ni_{SA}-N₂-C 中单原子 Ni 位点的低 N 配位数有利于形成 COOH* 中间体, 从而表现出更好的活性和选择性。



该工作提出了一种新型通用的策略来制备 SACs, 通过调节单原子位点的配位环境优化了催化活性, 为设计高性能的单原子催化剂提供了借鉴。

相关工作以“Regulating Coordination Environment of Single-Atom Ni Electrocatalysts Templated by MOF for Boosting CO₂ Reduction”为题发表在 *Angew. Chem. Int. Ed.* 上 (DOI: 10.1002/anie.201914977)。