



厦门稀土材料研究中心在揭示碳材料电催化本质方面取得新进展

更新日期: 2022-09-26

过氧化氢（H₂O₂）是一种需求量大的重要绿色氧化剂，已广泛应用于各种化工行业和废水处理。以蒽醌为催化剂，在氢气和氧气的条件下发生还原和氧化反应，是目前工业合成H₂O₂的主要工艺。但是，这种方法涉及多步反应、及提取和纯化等步骤，而且还需要复杂和大规模的基础设施等苛刻条件。

利用两电子途径，实现电催化氧气还原反应（ORR）是目前合成过氧化氢（H₂O₂）的绿色新方法。经过多年研究，掺杂型碳材料在H₂O₂电合成中已被证实具有较好的潜在应用，通过各种实验表征和理论计算表明碳材料边缘的杂原子（如O原子）是主要的活性位点。考虑到碳材料表面的复杂性，例如碳材料边缘往往吸附着不同的杂原子，因此对于单独的碳材料边缘（非杂原子）在电催化合成H₂O₂过程中的真实贡献一直缺乏实验证明。

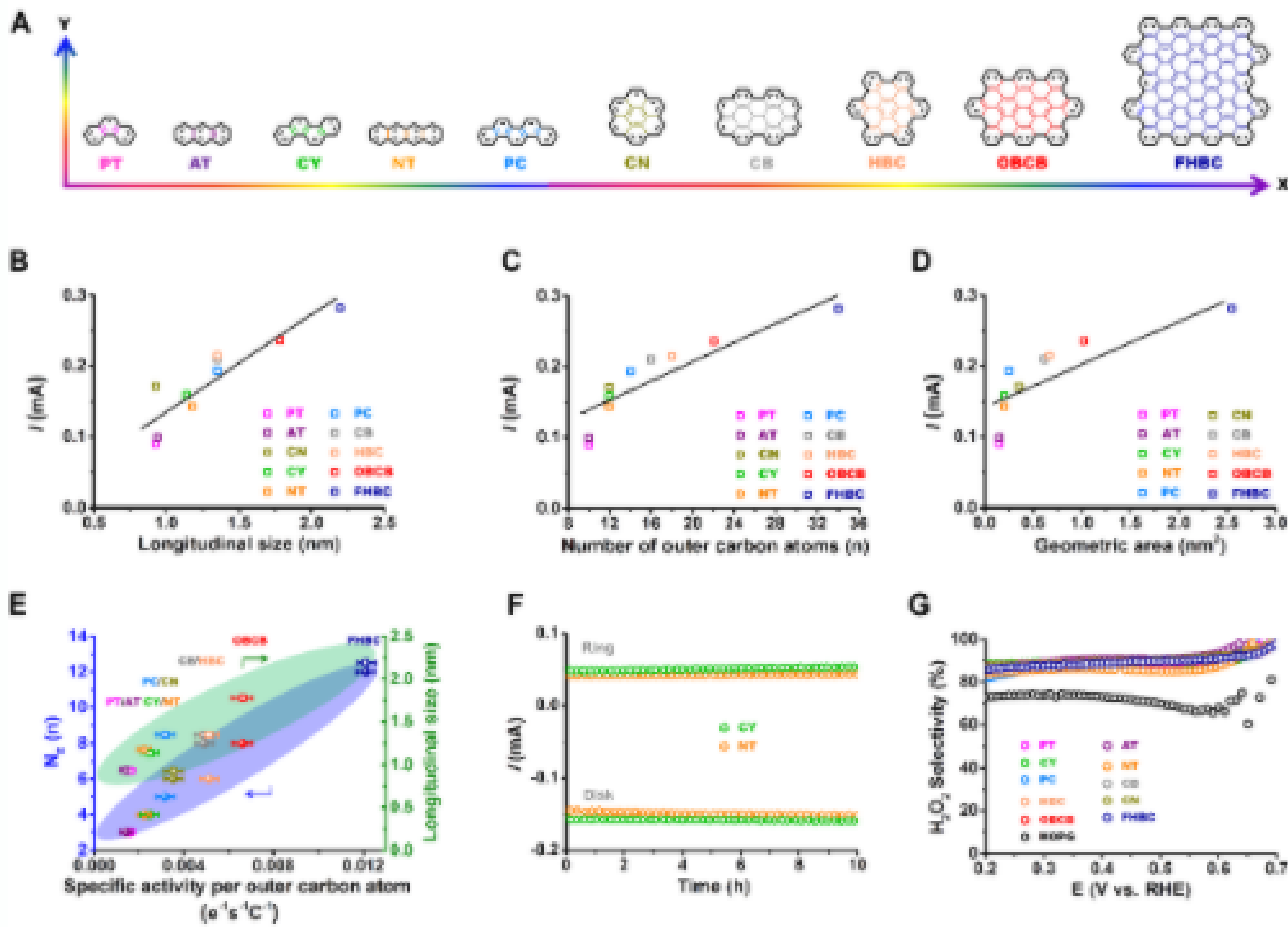


图1：PAHs模型催化剂的构效关系及电化学性能。

近日，林扬明团队从分子层面研究了碳基非金属材料的本征边缘结构在电催化合成H₂O₂过程中的真实贡献值，同时对关键活性中间物种的反应动力学以及可能决速步骤进行研究，为非金属碳基电催化的理解提供了一定的参考。常见的碳基非金属材料被认为是碱性电合成H₂O₂的有效催化剂，其表面的各种氧化物对反应起到一定的积极作用，而本征边缘结构的作用由于其结构复杂性等原因而被忽视。利用多环芳烃纳米碳分子（PAHs）作为结构模型催化剂，通过实验证明了扶手形和锯齿形边缘对H₂O₂合成都具有积极的作用，其选择性达到~90%，两者具有相似的起始电位，此外通过精确控制PAHs的纬向和纵向（二维）延伸，在分子水平上建立了扶手形或锯齿形边缘的大小/数量/面积与活性之间的构效关系。另外，通过有效分散梯度模型纳米碳分子，其质量活性接近5500A/g。通过搭建micro-flow cell也发现碳分子具有较好的实用价值。

该研究通过以一种纳米级别PAHs作为模型碳催化剂，进而对碳基电催化反应机制进行研究的策略，为揭示扶手形和锯齿形边缘在H₂O₂合成中的真实贡献值提供了实验依据，并且首次通过实验观察到碳边缘在电化学生成H₂O₂过程中关键中间体的实时演变以及反应动态行为，这些结果为研究其它碳基电催化反应提供了参考。相关成果以“Disclosing the nature of carbon edges with gradient nanocarbons for electrochemical hydrogen peroxide production”为题，近期发表于《Matter》。

文章链接: <https://doi.org/10.1016/j.matt.2022.04.010>

（林扬明课题组供稿）

