

基于三原子催化剂自旋态结构优化提升电催化反应活性和低温锌空气电池性能

Fe基双原子催化剂对氧还原反应（ORR）展现出了良好的催化活性，但是面临着低温性能不足的问题。针对这一问题，作者通过在Fe₂N₅双原子位点附近引入CoN₄位点以调节催化剂的电子自旋状态，实现了对电催化反应中间体的吸附-解吸行为的精确调控，制备出了一种自旋态增强的Fe基三原子催化剂Fe₂/Co-NHCS，展现出优异的低温催化活性。作者进一步发现，该Fe₂/Co-NHCS三原子催化剂可作为阴极催化剂时可显著提升锌空气电池的低温应用性能。

锌空气电池（ZABs）因其寿命长、环保、安全性高、成本低等优势，被认为是一种极具发展潜力的电化学储能装置。然而，锌空气电池中关键的阴极反应—氧还原反应（ORR）涉及多电子转移，动力学过程较为缓慢，亟需开发低成本、高效的电催化材料来提升阴极反应速率。单原子催化剂（SACs）因其独特的结构和优异的ORR催化性能受到广泛关注，作为SACs的延伸，双原子催化剂（DACs）由于具有更多的活性位点，并且活性位点之间存在协同作用，展现出更优异的ORR活性。Fe基双原子催化剂是当前催化材料的研究热点之一。然而，复杂的反应中间产物吸附-解吸过程使得低温时Fe基双原子催化剂的活性不足，影响了锌空气电池性能发挥。

为了进一步提高催化剂在低温环境下的应用能力，作者以Fe基双原子催化剂为基础，通过在Fe₂N₅双原子结构邻近处引入CoN₄位点，成功构建了一种具有中等自旋态的三原子催化剂Fe₂/Co-NHCS。理论计算和实验结果均表明，CoN₄位点对Fe₂N₅结构的自旋态调节起到了关键的增强作用，从而优化了反应中间产物的吸附-解吸过程，降低了反应势垒，提升了低温时的反应动力学。得益于CoN₄位点对Fe₂N₅双原子位点的电荷激活作用，中等自旋态的Fe₂/Co-NHCS展现出了优异的ORR催化活性，在碱性条件下Fe₂/Co-NHCS展现出了高达0.92 V的半波电位。基于该催化剂组装的柔性ZABs（F-ZABs）在常温和低温环境下的均展现出优异的应用性能。常温下，Fe₂/Co-NHCS驱动的F-ZABs获得1.47 V的开路电压，147.7 mW cm⁻²的峰值功率密度（P_{max}）和持续110 h的出色充放电稳定性。值得注意的是，即使在-40 °C的极端环境下，Fe₂/Co-NHCS驱动的F-ZABs仍能保持1.44 V的开路电压和57.3 mW cm⁻²的峰值功率密度，并具备超过150次充放电循环的优异稳定性，极大提升了ZABs在极端低温环境下的应用潜力。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/226133.html>