

Effect of coordination environment on the kinetic and thermodynamic stability of single-atom iron catalysts

Weijie Yang^{a*}, Mingliang Zhao^a, Xunlei Ding^b, Kai Ma^a, Chongchong Wu^c, Ian D.Gates^c and Zhengyang Gao^{a*}

^a. School of Energy and Power Engineering, North China Electric Power University, Baoding 071003, China.

^b. School of Mathematics and Physics, North China Electric Power University, Beijing 102206, China.

^c. Department of Chemical and Petroleum Engineering, University of Calgary, T2N 1N4, Calgary, Alberta, Canada.

*Corresponding author: Weijie Yang (yangwj@ncepu.edu.cn); Zhengyang Gao (gaozhyan@163.com)

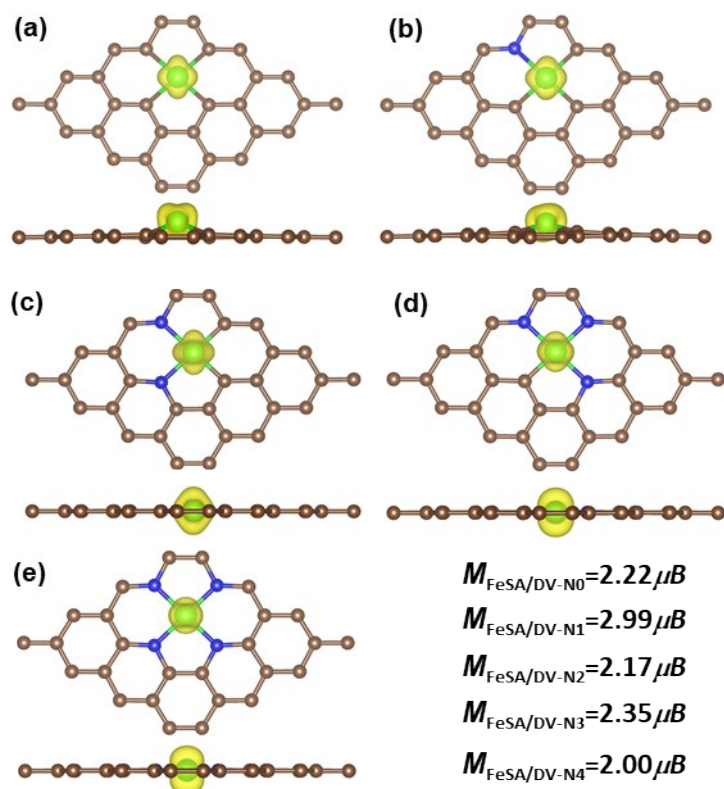


Fig. S1 Spin density and magnetic moment (M) of five Fe_{SA}/CS. (The contour lines in plots are drawn at 0.02 e/Å³ intervals)

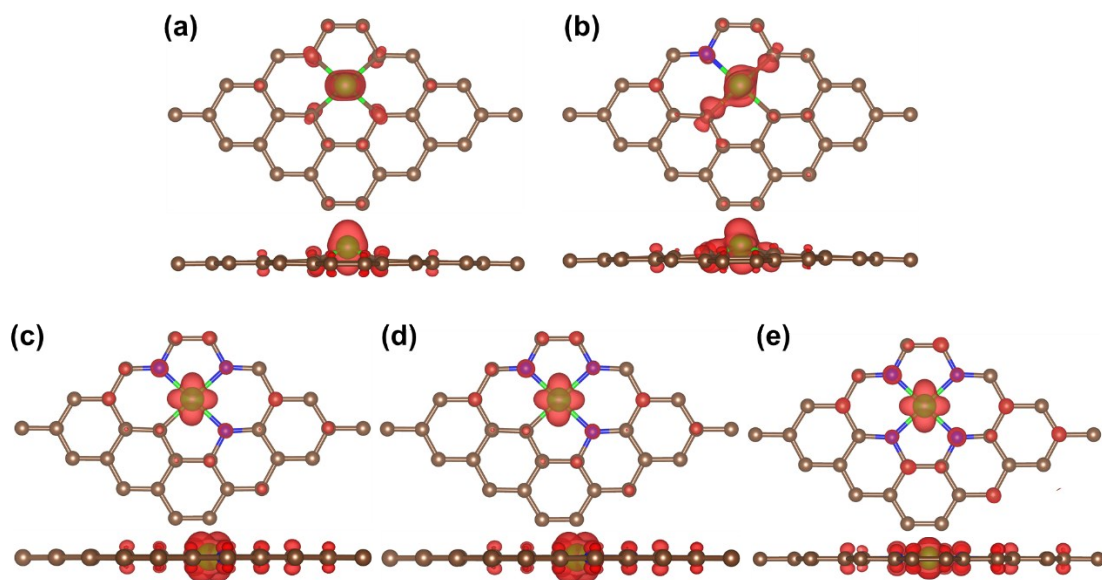


Fig. S2 Band decomposed charge density near Fermi energy level (The contour lines in plots are drawn at 0.01 e/Å³ intervals and the energy range is [E_{Fermi}-1.0, E_{Fermi}])

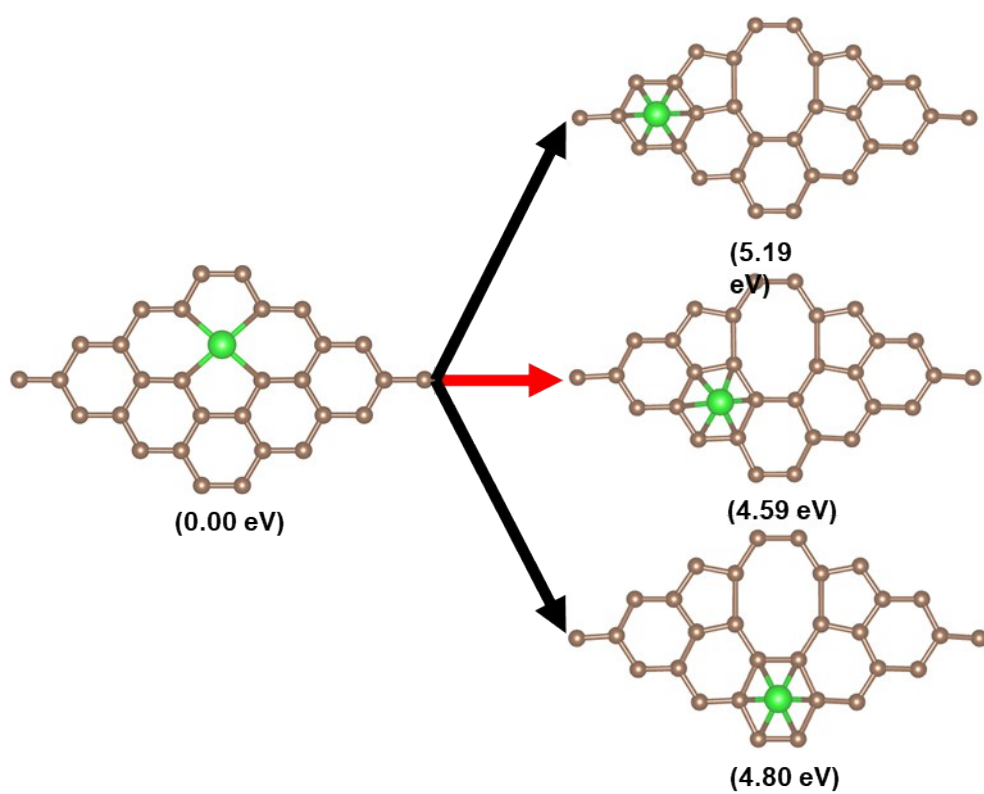


Fig. S3 Final geometric structures and relative energies in Fe_{SA}/DV-N0

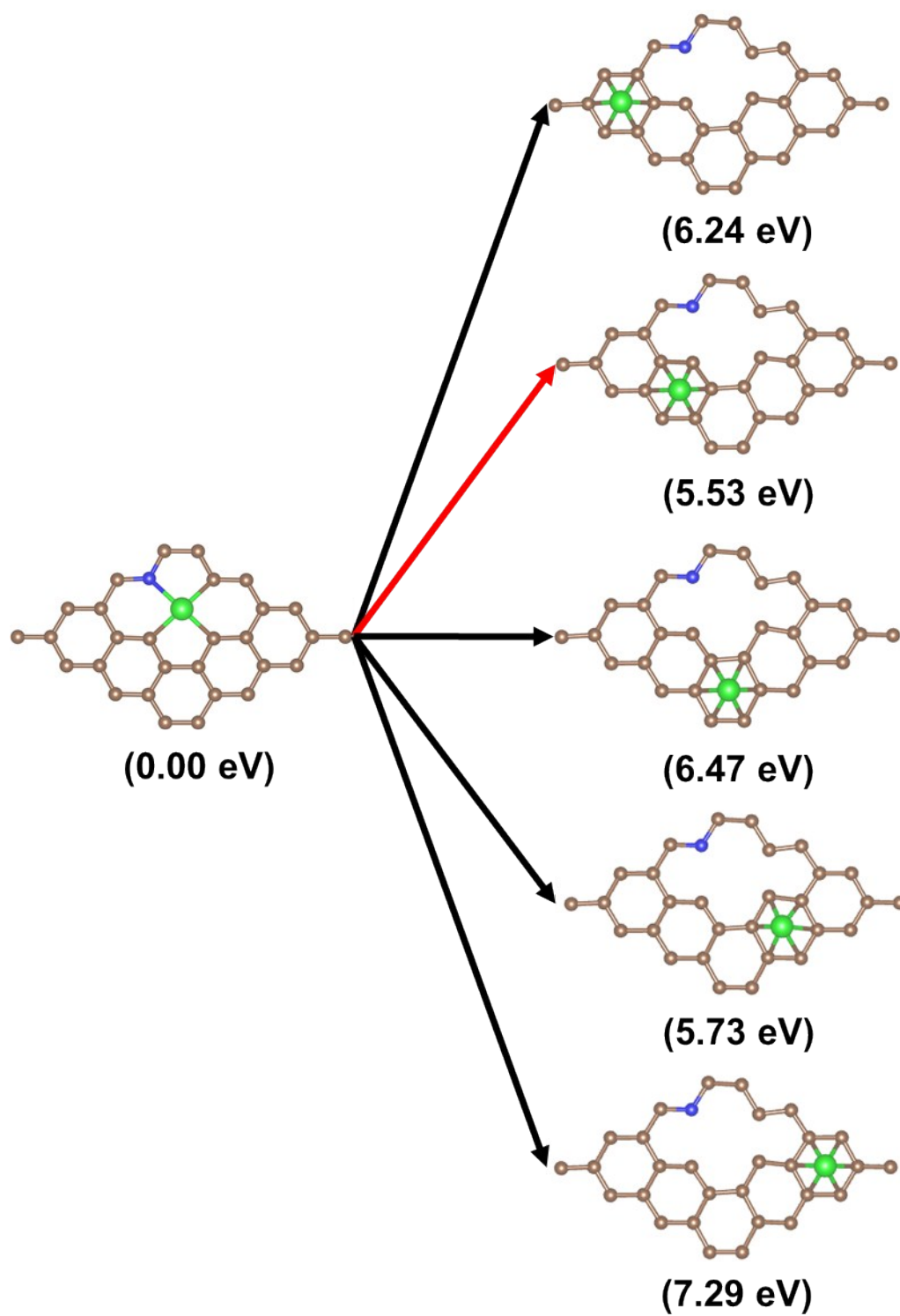


Fig. S4 Final geometric structures and relative energies in Fe_{SA}/DV-N1

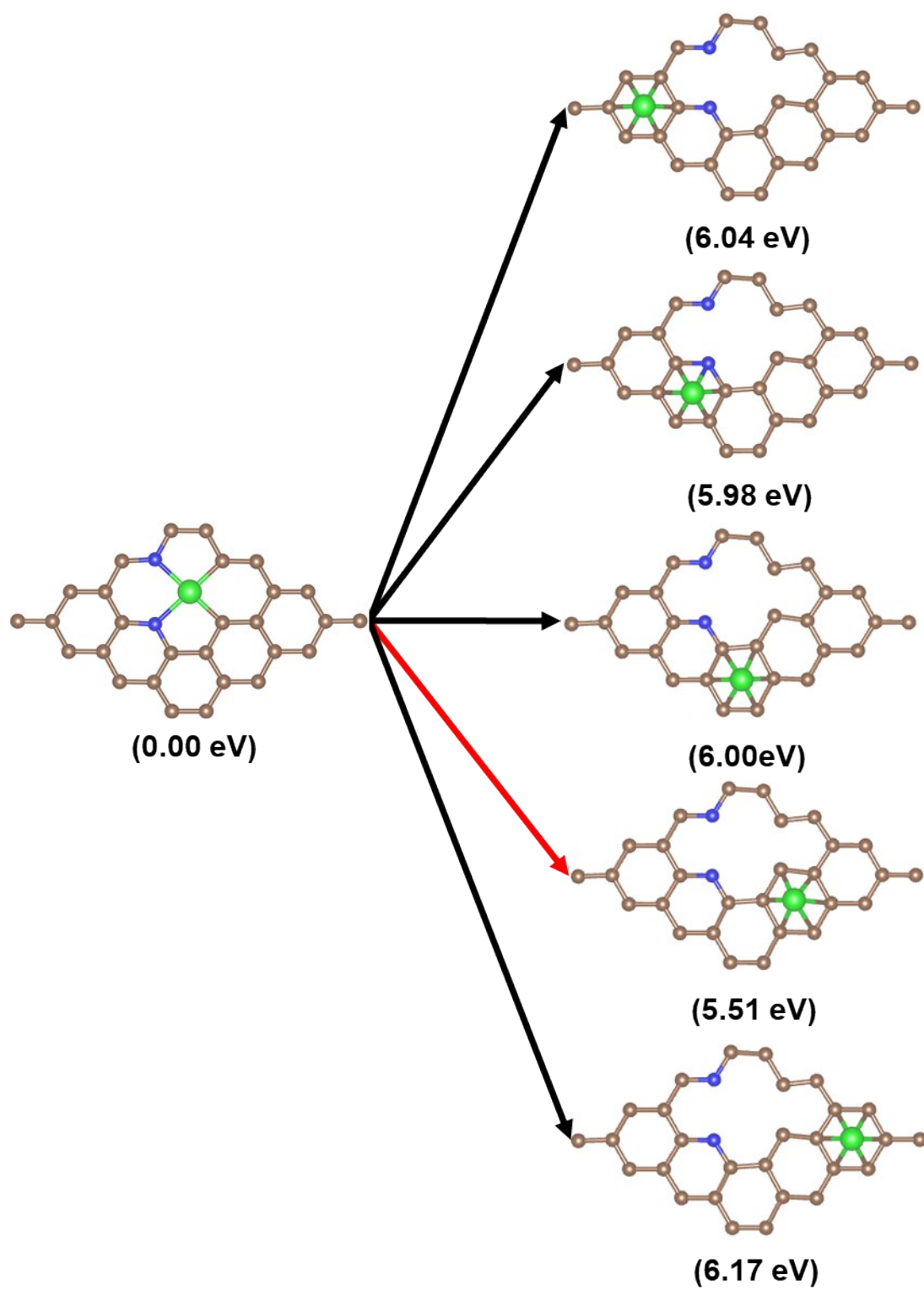


Fig. S5 Final geometric structures and relative energies in Fe_{SA}/DV-N2

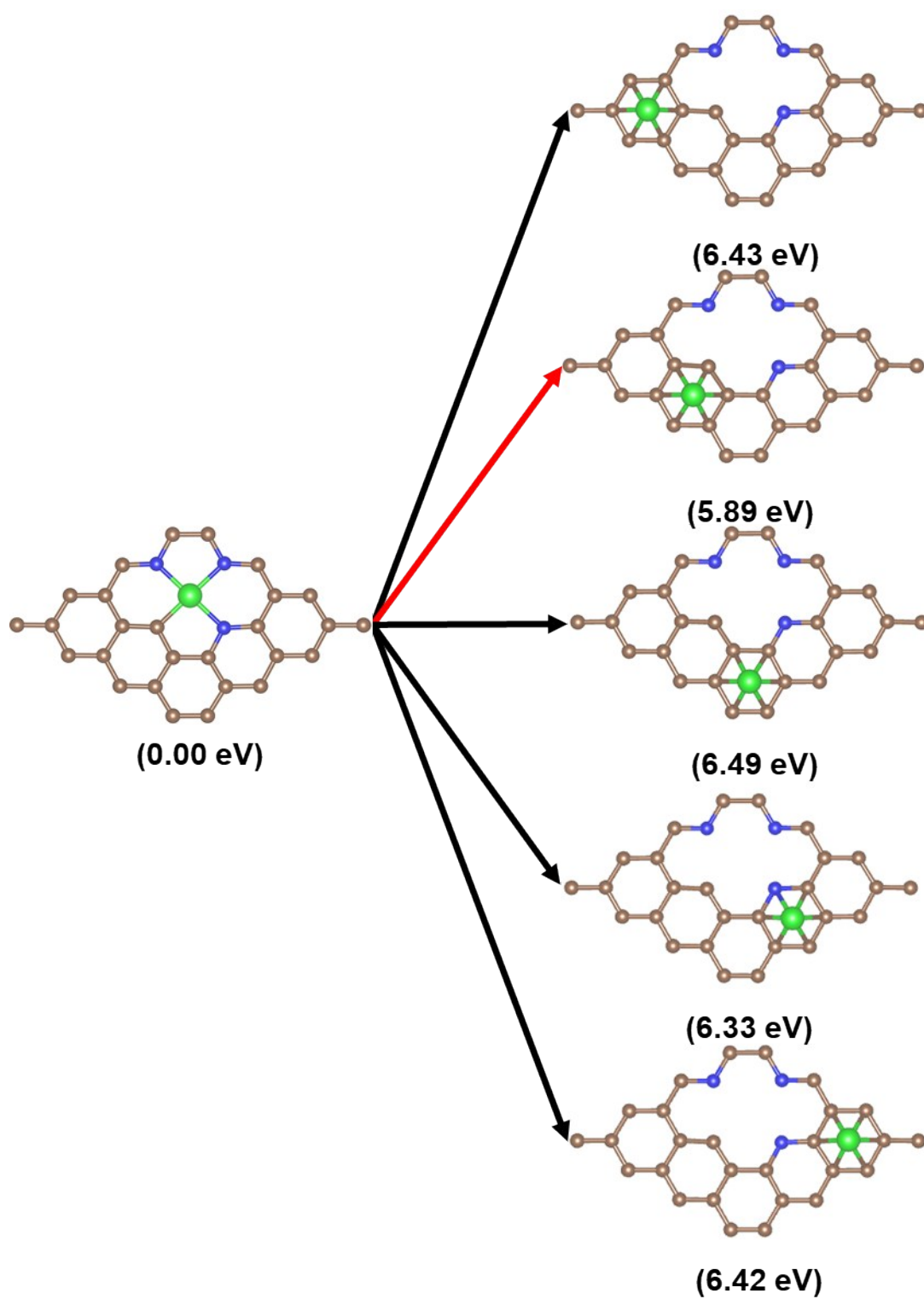


Fig. S6 Final geometric structures and relative energies in $\text{Fe}_{\text{SA}}/\text{DV-N3}$

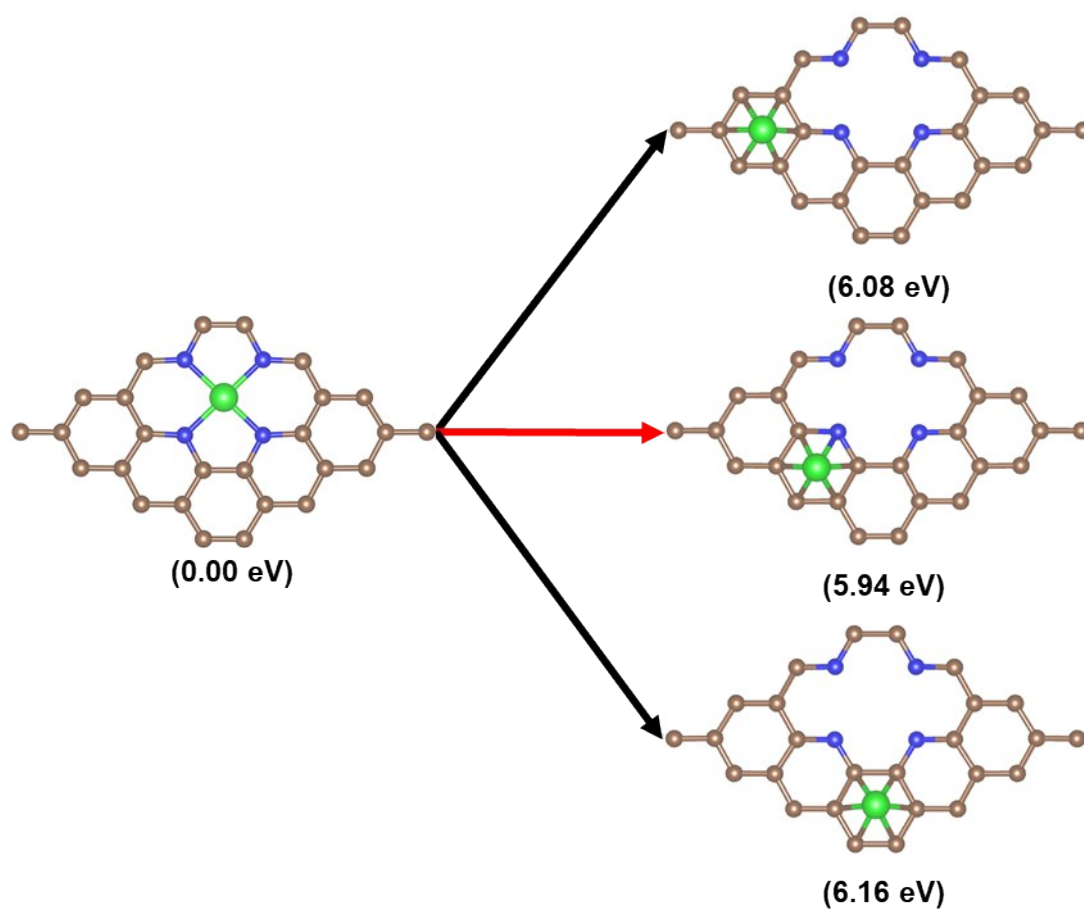


Fig. S7 Final geometric structures and relative energies in Fe_{SA}/DV-N4

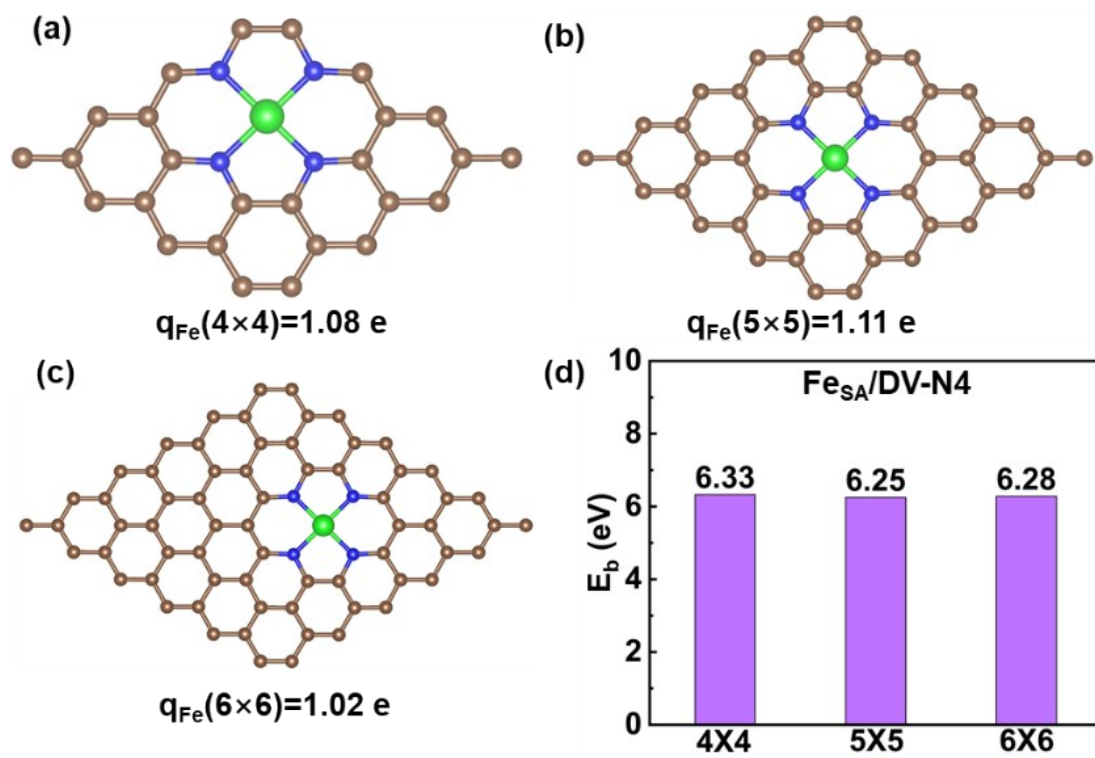


Fig. S8 Charge and transfer energy barrier of Fe atom in the system of Fe_{SA}/DV-N4 with 4×4, 5×5 and 6×6 supercell

Table S1 The coordinates of optimized Fe/DV-N0 in initial configuration (a) transition state configuration (b) final configuration (c)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15
C	Fe	
30	1	
Direct		
0.19	0.14	0.03
0.11	0.23	0.03
0.44	0.14	0.03
0.36	0.23	0.03
0.69	0.14	0.03
0.61	0.23	0.03
0.94	0.15	0.03
0.86	0.23	0.03
0.19	0.39	0.03
0.11	0.48	0.03
0.44	0.39	0.03
0.36	0.48	0.03
0.69	0.40	0.03
0.61	0.48	0.04
0.94	0.40	0.03
0.86	0.48	0.03
0.19	0.64	0.03
0.11	0.73	0.03
0.44	0.64	0.04
0.36	0.73	0.03
0.94	0.65	0.03
0.86	0.73	0.04
0.19	0.89	0.03
0.11	0.98	0.03
0.44	0.89	0.03
0.36	0.98	0.03
0.70	0.89	0.04
0.61	0.98	0.03
0.95	0.89	0.03
0.86	0.98	0.03
0.65	0.69	0.08

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	Fe	
30	1	
Direct		
0.19	0.14	0.03
0.11	0.23	0.03
0.45	0.15	0.03
0.37	0.24	0.03
0.69	0.14	0.03
0.61	0.23	0.03
0.94	0.13	0.03
0.86	0.22	0.03
0.21	0.40	0.03
0.12	0.48	0.03
0.47	0.42	0.03
0.39	0.50	0.03
0.70	0.40	0.03
0.65	0.50	0.03
0.95	0.39	0.03
0.87	0.47	0.03
0.20	0.65	0.03
0.11	0.73	0.03
0.47	0.68	0.04
0.36	0.74	0.03
0.94	0.63	0.03
0.84	0.69	0.03
0.19	0.89	0.03
0.10	0.97	0.03
0.44	0.90	0.03
0.35	0.98	0.03
0.66	0.87	0.03
0.60	0.98	0.03
0.92	0.87	0.03
0.83	0.95	0.03
0.40	0.62	0.16

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00

C	Fe	
30	1	
Direct		
0.19	0.14	0.03
0.11	0.22	0.03
0.44	0.15	0.03
0.37	0.24	0.03
0.69	0.14	0.03
0.61	0.23	0.03
0.93	0.13	0.03
0.86	0.22	0.03
0.21	0.40	0.03
0.12	0.48	0.03
0.47	0.42	0.03
0.39	0.51	0.03
0.70	0.40	0.03
0.65	0.50	0.03
0.95	0.39	0.03
0.87	0.47	0.03
0.20	0.65	0.03
0.11	0.73	0.03
0.47	0.68	0.03
0.36	0.74	0.03
0.94	0.63	0.03
0.84	0.69	0.03
0.18	0.89	0.03
0.09	0.97	0.03
0.44	0.90	0.03
0.35	0.98	0.03
0.66	0.87	0.03
0.60	0.98	0.03
0.92	0.87	0.03
0.83	0.95	0.03
0.30	0.57	0.13

(a)

(b)

(c)

Table S2 The coordinates of optimized Fe/DV-N1 in initial configuration (a) transition state configuration (b) final configuration (c)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
29	1	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.08	0.03
0.33	0.17	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.09	0.03
0.83	0.17	0.03
0.16	0.34	0.03
0.08	0.42	0.03
0.41	0.33	0.04
0.32	0.41	0.03
0.66	0.34	0.04
0.57	0.42	0.04
0.91	0.34	0.03
0.82	0.42	0.04
0.16	0.59	0.03
0.08	0.67	0.03
0.41	0.58	0.04
0.33	0.67	0.04
0.91	0.59	0.03
0.83	0.68	0.04
0.16	0.84	0.03
0.08	0.92	0.03
0.42	0.83	0.04
0.33	0.92	0.03
0.58	0.92	0.04
0.91	0.84	0.03
0.83	0.93	0.03
0.67	0.84	0.04
0.62	0.63	0.07

(a)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
29	1	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.09	0.03
0.34	0.18	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.08	0.03
0.83	0.17	0.03
0.17	0.34	0.03
0.08	0.42	0.03
0.43	0.35	0.03
0.34	0.43	0.04
0.67	0.34	0.03
0.61	0.44	0.03
0.92	0.34	0.03
0.83	0.42	0.03
0.16	0.59	0.03
0.08	0.67	0.03
0.41	0.59	0.06
0.33	0.68	0.04
0.91	0.58	0.03
0.80	0.64	0.03
0.16	0.84	0.03
0.07	0.91	0.03
0.41	0.84	0.03
0.33	0.92	0.03
0.58	0.92	0.03
0.89	0.82	0.03
0.81	0.91	0.03
0.66	0.84	0.03
0.31	0.52	0.16

(b)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
29	1	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.09	0.03
0.33	0.18	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.08	0.03
0.83	0.17	0.03
0.16	0.34	0.03
0.08	0.42	0.03
0.43	0.35	0.03
0.34	0.43	0.04
0.67	0.34	0.03
0.60	0.44	0.03
0.91	0.33	0.03
0.83	0.42	0.03
0.16	0.59	0.03
0.07	0.67	0.03
0.41	0.59	0.05
0.33	0.68	0.04
0.91	0.58	0.03
0.81	0.65	0.03
0.16	0.84	0.03
0.07	0.91	0.03
0.41	0.84	0.03
0.33	0.92	0.03
0.58	0.92	0.03
0.89	0.82	0.03
0.81	0.91	0.03
0.65	0.84	0.03
0.25	0.50	0.14

(c)

Table S3 The coordinates of optimized Fe/DV-N2 in initial configuration (a) transition state configuration (b) final configuration (c)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
28	2	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.08	0.03
0.33	0.17	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.09	0.03
0.83	0.17	0.03
0.16	0.34	0.03
0.07	0.42	0.03
0.41	0.33	0.03
0.32	0.42	0.03
0.66	0.34	0.03
0.57	0.42	0.04
0.91	0.34	0.03
0.82	0.42	0.03
0.16	0.59	0.03
0.08	0.67	0.03
0.33	0.66	0.03
0.91	0.59	0.03
0.83	0.68	0.04
0.16	0.84	0.03
0.08	0.92	0.03
0.42	0.83	0.03
0.33	0.92	0.03
0.58	0.92	0.03
0.91	0.84	0.03
0.83	0.93	0.03
0.40	0.58	0.03
0.67	0.85	0.03
0.62	0.63	0.04

(a)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
28	2	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.09	0.03
0.33	0.18	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.09	0.03
0.83	0.17	0.03
0.16	0.34	0.03
0.08	0.42	0.03
0.42	0.35	0.03
0.33	0.43	0.03
0.67	0.34	0.03
0.60	0.45	0.04
0.91	0.34	0.03
0.83	0.42	0.03
0.16	0.59	0.03
0.08	0.67	0.03
0.33	0.67	0.03
0.91	0.59	0.03
0.81	0.65	0.03
0.16	0.84	0.03
0.07	0.92	0.03
0.41	0.84	0.03
0.33	0.92	0.03
0.58	0.92	0.04
0.89	0.82	0.03
0.82	0.92	0.04
0.40	0.59	0.03
0.66	0.84	0.04
0.53	0.36	0.16

(b)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
28	2	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.09	0.03
0.33	0.18	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.08	0.03
0.83	0.17	0.03
0.16	0.34	0.04
0.08	0.42	0.04
0.42	0.35	0.03
0.33	0.43	0.04
0.67	0.34	0.03
0.60	0.44	0.04
0.91	0.34	0.03
0.83	0.42	0.03
0.16	0.59	0.04
0.08	0.67	0.04
0.33	0.67	0.04
0.91	0.58	0.03
0.81	0.65	0.04
0.16	0.84	0.04
0.07	0.91	0.04
0.41	0.84	0.04
0.33	0.92	0.04
0.58	0.92	0.04
0.89	0.82	0.04
0.82	0.92	0.04
0.40	0.59	0.03
0.66	0.84	0.04
0.50	0.28	0.13

(c)

Table S4 The coordinates of optimized Fe/DV-N3 in initial configuration (a) transition state configuration (b) final configuration (c)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
27	3	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.08	0.03
0.33	0.17	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.09	0.03
0.83	0.17	0.03
0.16	0.33	0.03
0.07	0.42	0.03
0.40	0.33	0.03
0.32	0.41	0.03
0.65	0.34	0.03
0.91	0.34	0.03
0.82	0.43	0.03
0.16	0.59	0.03
0.08	0.67	0.03
0.41	0.58	0.04
0.33	0.67	0.04
0.91	0.59	0.03
0.16	0.84	0.03
0.08	0.92	0.03
0.42	0.83	0.04
0.33	0.92	0.03
0.58	0.92	0.04
0.92	0.84	0.03
0.83	0.93	0.03
0.57	0.41	0.03
0.83	0.68	0.04
0.67	0.84	0.04
0.62	0.63	0.04

(a)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
27	3	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.09	0.03
0.33	0.17	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.09	0.03
0.83	0.17	0.03
0.16	0.34	0.03
0.08	0.42	0.03
0.42	0.33	0.03
0.33	0.42	0.04
0.66	0.34	0.03
0.91	0.34	0.03
0.83	0.43	0.03
0.16	0.59	0.03
0.08	0.67	0.03
0.41	0.58	0.05
0.33	0.67	0.04
0.91	0.60	0.03
0.16	0.84	0.03
0.08	0.92	0.03
0.42	0.84	0.03
0.33	0.92	0.03
0.59	0.92	0.03
0.91	0.83	0.03
0.82	0.92	0.03
0.57	0.41	0.04
0.83	0.68	0.03
0.66	0.84	0.03
0.31	0.52	0.16

(b)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
27	3	1
Direct		
0.16	0.09	0.03
0.08	0.17	0.03
0.41	0.09	0.03
0.33	0.17	0.03
0.66	0.09	0.03
0.58	0.17	0.03
0.91	0.09	0.03
0.83	0.17	0.03
0.16	0.34	0.03
0.08	0.42	0.03
0.42	0.33	0.04
0.33	0.42	0.04
0.65	0.34	0.04
0.91	0.34	0.03
0.82	0.42	0.03
0.16	0.59	0.04
0.08	0.67	0.03
0.40	0.58	0.05
0.33	0.67	0.04
0.91	0.59	0.03
0.16	0.84	0.03
0.08	0.92	0.03
0.42	0.84	0.03
0.33	0.92	0.03
0.58	0.92	0.03
0.91	0.83	0.03
0.82	0.92	0.03
0.57	0.41	0.04
0.83	0.68	0.03
0.66	0.84	0.03
0.25	0.50	0.14

(c)

Table S5 The coordinates of optimized Fe/DV-N4 in initial configuration (a) transition state configuration (b) final configuration (c)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
26	4	1
Direct		
0.19	0.14	0.03
0.11	0.23	0.03
0.44	0.14	0.03
0.36	0.22	0.03
0.70	0.14	0.03
0.61	0.23	0.03
0.95	0.15	0.03
0.86	0.23	0.03
0.19	0.39	0.03
0.11	0.48	0.03
0.44	0.39	0.03
0.35	0.47	0.03
0.69	0.40	0.03
0.94	0.40	0.03
0.85	0.48	0.03
0.19	0.64	0.03
0.11	0.73	0.03
0.36	0.72	0.03
0.94	0.65	0.03
0.20	0.89	0.03
0.12	0.98	0.03
0.45	0.89	0.03
0.37	0.97	0.03
0.62	0.97	0.03
0.95	0.90	0.03
0.87	0.98	0.03
0.60	0.47	0.03
0.44	0.63	0.03
0.87	0.74	0.03
0.71	0.90	0.03
0.65	0.69	0.03

(a)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
26	4	1
Direct		
0.19	0.14	0.03
0.11	0.23	0.03
0.44	0.14	0.03
0.36	0.22	0.03
0.70	0.15	0.03
0.61	0.23	0.03
0.94	0.15	0.03
0.86	0.23	0.03
0.19	0.39	0.03
0.11	0.48	0.03
0.45	0.39	0.04
0.36	0.48	0.04
0.69	0.39	0.03
0.94	0.40	0.03
0.86	0.48	0.03
0.19	0.64	0.03
0.11	0.73	0.03
0.36	0.72	0.03
0.94	0.65	0.03
0.20	0.89	0.03
0.11	0.98	0.03
0.45	0.89	0.03
0.37	0.97	0.03
0.62	0.98	0.03
0.95	0.89	0.02
0.86	0.98	0.03
0.60	0.47	0.04
0.44	0.64	0.04
0.87	0.73	0.02
0.70	0.90	0.02
0.34	0.59	0.16

(b)

9.84	0.00	0.00
-4.92	8.52	0.00
0.00	0.00	15.00
C	N	Fe
26	4	1
Direct		
0.19	0.14	0.03
0.11	0.22	0.03
0.44	0.14	0.03
0.36	0.22	0.04
0.70	0.14	0.03
0.61	0.23	0.03
0.94	0.14	0.03
0.86	0.23	0.03
0.19	0.39	0.03
0.11	0.48	0.03
0.45	0.39	0.04
0.36	0.48	0.04
0.69	0.39	0.04
0.94	0.40	0.03
0.86	0.48	0.03
0.19	0.64	0.03
0.11	0.73	0.03
0.36	0.72	0.04
0.94	0.65	0.03
0.20	0.89	0.03
0.11	0.98	0.03
0.45	0.89	0.03
0.36	0.97	0.03
0.62	0.98	0.03
0.94	0.89	0.02
0.86	0.98	0.02
0.61	0.47	0.05
0.44	0.64	0.05
0.87	0.73	0.02
0.70	0.90	0.02
0.27	0.56	0.14

(c)