

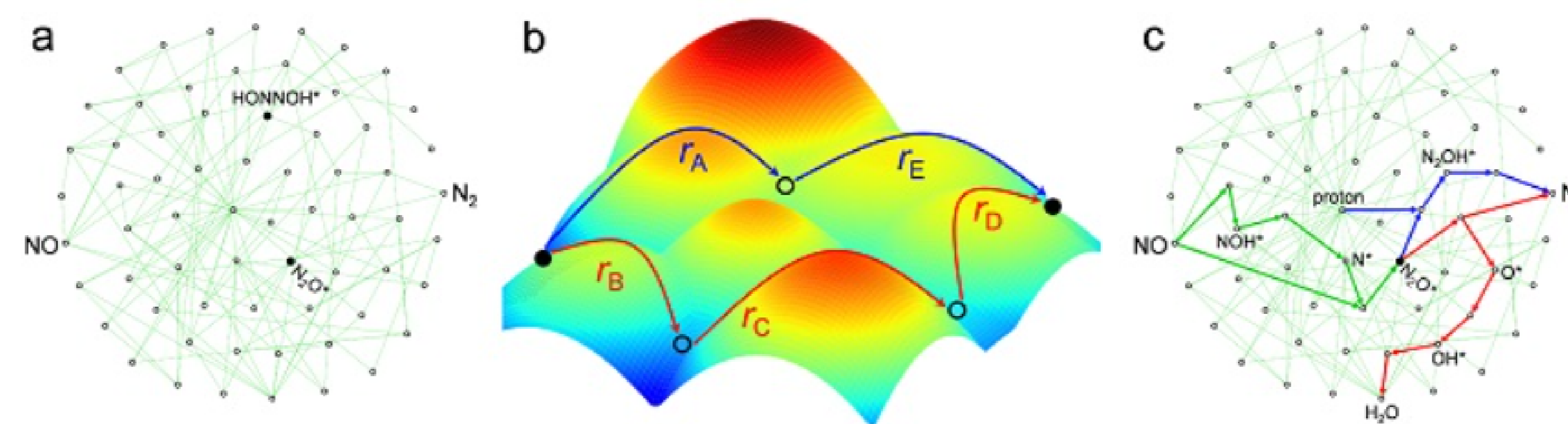


我所证明了从电催化脱硝转向合成氨过程的必要性

发布时间: 2023-01-15 | 供稿部门: 05T8组 | 【放大】 【缩小】 | 【打印】 【关闭】

近日, 我所催化基础国家重点实验室理论催化创新特区研究组 (05T8组) 肖建平研究员团队在氮氧化物 (NO_x) 转化研究方面取得新进展, 揭示了过渡金属电催化脱硝的机理限制并强调了合成氨的重要性。

NO_x 的处理是一个重要的环境问题, 也是实现高效二氧化碳电还原 (eCO_2RR) 的必要前提。肖建平团队在前期的工作中开发了基于图论的反应网络研究新型算法 (*ACS Catal.*, 2021), 应用这个算法开展了一氧化氮电还原的研究, 提出了合成氨的新线路 (*Angew. Chem. Int. Ed.*, 2020), 并持续在该方向上开展了多维度的研究 (*J. Phys. Chem. Lett.*, 2021; *ACS Sustain. Chem. Eng.*, 2022; *J. Phys. Chem. Lett.*, 2022)。系列成果在团队关于反向人工氮循环的综述文章中进行了详细阐述 (*ChemPlusChem*, 2021; *Curr. Opin. Electroche.*, 2023)。



本工作中, 团队继续讨论了脱除 NO_x 的另一条重要的路线: NO_x 转化为环境友好的 N_2 , 即直接电催化脱硝。该工作使用反应相图来分析系列金属催化剂上反应机理的演变, 并以Pd和Cu为例, 研究了电势和pH效应。综合理论分析和实验结果发现, 在所有金属上 N_2 都是通过 N_2O^* 进一步转化生成的, 且与 N_2O 相比, N_2 选择性较低。该工作还揭示了低 N_2 选择性的起源。一方面, 从能量的角度来看, 所有金属表面反应性对 N_2 的产生非常不利: 金属表面对 N_2OH^* 的吸附始终太弱, 抑制了 N_2O^* 质子化活性; 此外, O^* 和 OH^* 吸附能之间的强关联性使得强反应性金属表面上的活性位点被 O^*/OH^* 毒化, 或者导致 N_2O^* 在吸附较弱的金属上很难解离, 这两种性质协同使所有金属对 N_2O 更具选择性。研究发现, 相比于 N^*-NO 偶联, N^* 质子化使得Cu表现出高 NH_3 选择性。另一方面, 电位、pH和 NO 分压等实验条件的优化可以略微提高 N_2 的选择性, 但不足以超过 N_2O 或 NH_3 。对 NO 电催化还原中低 N_2 选择性的深入理解可以作为未来催化剂设计的提供参考。更重要的是, 氨合成的特殊活性为建立反向人工氮循环提供了一条可行的途径, 这可以在非集成式氨合成中发挥关键作用。基于上述研究, 团队建议未来可探索设计能打破金属催化剂“构效关系”的新催化剂, 或者发展非集成氨合成的新路线。

相关研究以“Steering from electrochemical denitrification to ammonia synthesis”为题, 于近日发表在《自然—通讯》(*Nature Communications*)上。该工作的第一作者是我所05T8组博士研究生李欢。以上工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金、榆林创新院人工智能科技专项、中科院洁净能源创新研究院合作基金等项目的资助。(文/图 李欢)

文章链接: <https://doi.org/10.1038/s41467-023-35785-w>



地址: 辽宁省大连市沙河口区中山路457号 邮编: 116023
电话: +86-411-84379163 / 9198 传真: +86-411-84691570
邮件: dicp@dicp.ac.cn



官方微信



化学之美

