

首页 - 科学研究 - 科研动态 - 内容

合肥光源用户在电催化硝酸盐与二氧化碳偶联合成尿素研究中获得新进展

发布时间: 2023-03-13

微信 微博 qzone

Haber-Bosch合成氨工艺约占全球能源需求的2%，并导致1.44%的全球CO₂排放，而约80%的合成氨通过Bosch-Meiser工艺用于尿素合成。化肥密集型农业和工业排放导致硝酸盐污染物日益积累，严重威胁着人类健康和环境。尽管通过可再生能源驱动的电催化还原反应可以将硝酸盐转化为氨，但工业过程仍需将其进一步转化为尿素。利用二氧化碳和硝酸盐之间的电催化C-N偶联反应合成尿素，为减少工业尿素生产的环境影响和提高各种工业过程中废弃物的价值提供了一条极具前景的途径。然而，电催化尿素合成是一个涉及多种反应物和反应的多步骤过程，因此实现高效C-N偶联和尿素合成仍面临重大挑战。

单原子材料因其高原子利用率和高等活性等优势，在催化领域受到广泛关注。在电催化过程中可能会发生单原子催化剂的重构，导致真实活性位点与原始催化构型不一致，特别是对于以铜原子为金属中心的催化剂。深入研究催化剂的动态重构机制，识别催化反应的真实活性位点，对于设计高活性催化剂具有重要意义。

湖南大学王双印教授课题组依托合肥光源红外谱学与显微成像站发展的原位显微电催化红外光谱技术，在电催化尿素合成方面取得新进展。Cu₁-CeO₂单原子催化剂在-1.6 V versus RHE的应用电位下，重构为Cu₄-CeO₂，原位生成的Cu₄团簇是C-N偶联的真实活性位点，尿素产率高达52.84 mmol⁻¹ h⁻¹ g_{cat}⁻¹，当催化剂重新置于开路电压下时，可逆重构至初始的Cu₁-CeO₂单原子构型。

通过Operando FTIR追踪电催化C-N偶联过程中关键中间体信号，结合DFT理论计算，发现*OCNO是尿素合成过程中的关键中间物种，由*NO和*CO偶联生成，其信号强弱的变化规律与不同电位下尿素产率变化规律一致。且在Ar + NO₃⁻或CO₂ + KHCO₃的对比实验中，均观测不到*OCNO的吸收峰信号。在CO₂ + ¹⁵NO₃⁻的同位素实验中，同位素效应导致相关的含N吸收峰(*OC¹⁵NO, *C-¹⁵N, *¹⁵N-H以及*¹⁵NH₂)向低波数移动。

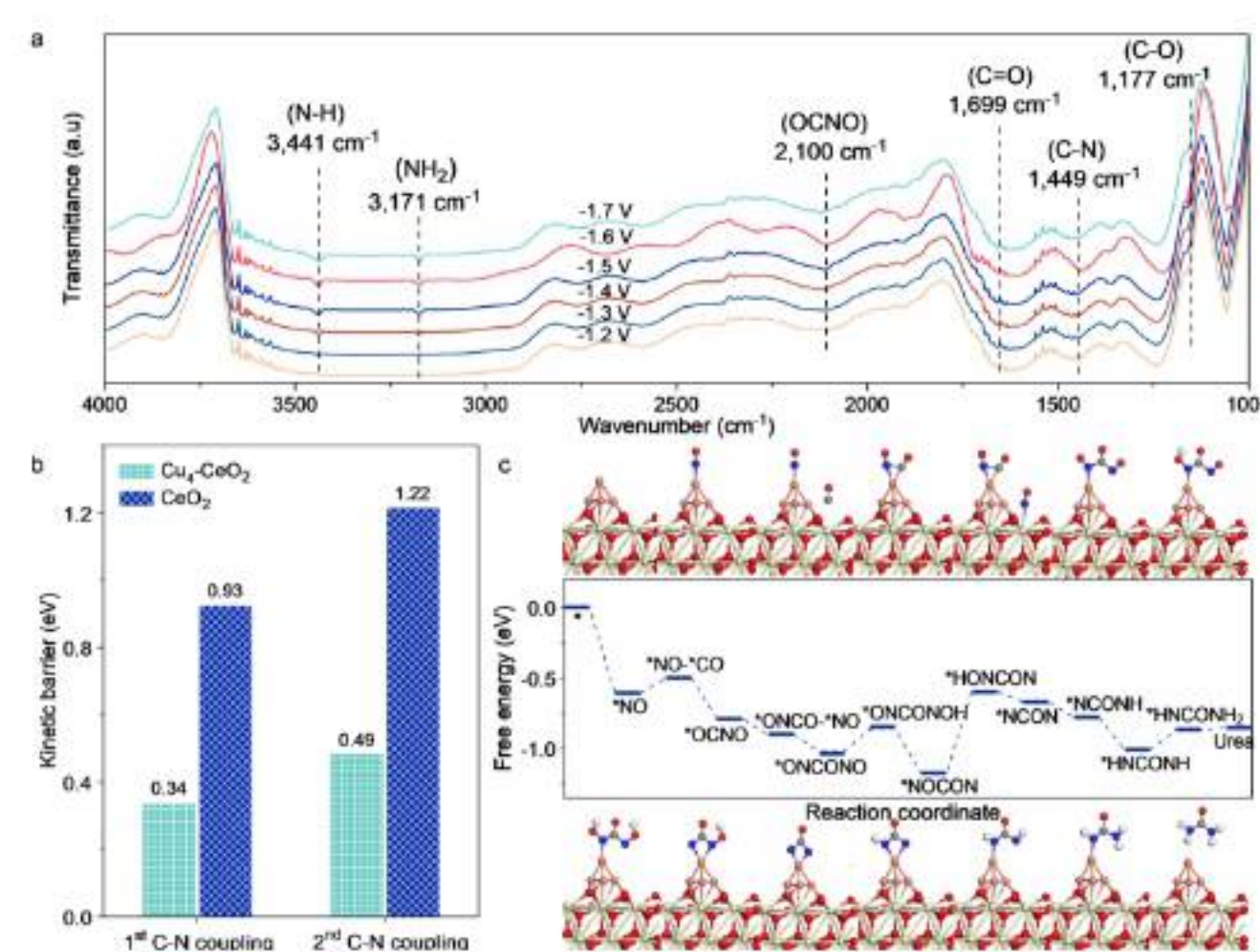


图1. Operando FTIR谱图和DFT理论计算结果

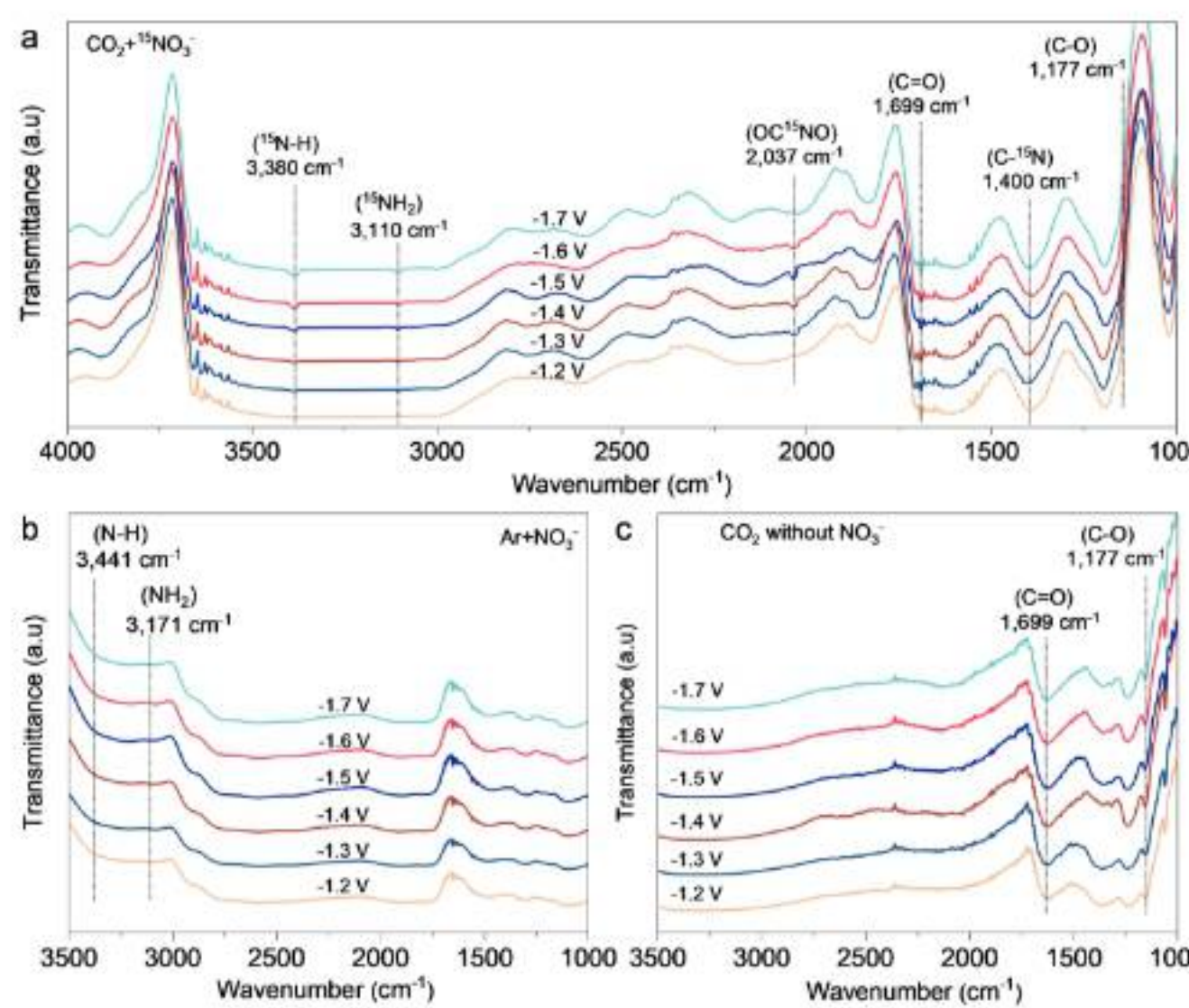


图2. Operando FTIR谱图

相关研究成果以“Dynamic reconstitution between copper single atoms and clusters for electrocatalytic urea synthesis”发表在国际著名学术期刊《Advanced Materials》上。论文共同第一作者为Xiaoxiao Wei, Yingying Liu, Xiaorong Zhu, Shuowen Bo, Lei Xiao。

最新推荐

- 2021.06.22
国家同步辐射实验室入选全国爱国主义教育示范基地
- 2021.04.26
“党史、校史、室史、院史，从胜利走向胜利”——国家同步辐射实验...
- 2021.03.30
安徽省省长王清宪来我室调研
- 2020.12.18
【安徽日报】追光
- 2020.12.31
合肥先进光源预研项目总体工艺测试会顺利召开
- 2021.01.14
合肥先进光源预研项目顺利通过工艺验收

