光催化固氮合成氨催化剂开发取得新进展

作者：writer 来源：中国科学技术大学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/1146.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

当前工业合成氨技术以使用铁基催化剂的哈柏法(Haber-Bosch)为主，其反应条件非常苛刻(250大气压、400摄氏度)，并需要巨大的能耗。光催化技术能够直接将太阳能转化为化学能，为降低合成氨能耗提供了一种非常具有前景的方法。然而，氮-氮叁键的超高键能使得氮分子体现出稳定的化学特性，从而导致常规的光催化材料很难活化氮分子。因此，开发高效的固氮合成氨光催化剂依然面临巨大挑战。

近日，中国科学技术大学熊宇杰教授团队与武晓君教授理论课题组合作，基于金属氧化物光催化剂的缺陷工程调控，发现通过掺杂的方式来精修催化剂的缺陷态，可以促进缺陷位点对氮分子的高效活化，有效地提高光催化固氮合成氨的效率。该工作在线发表于国际化学重要期刊《美国化学会志》(J. Am. Chem. Soc. DOI: 10.1021/jacs.8b02076)，共同第一作者是张宁博士、博士研究生AbdulJalil和吴道雄，共同通讯作者包括熊宇杰教授、高超特任副研究员和武晓君教授。

基于钼掺杂精修缺陷态的W18O49催化剂用于光驱动固氮合成氨示意图 从动力学上来看，鉴于氮分子超高的化学稳定性，氮分子活化一般被认为是氮还原的先决条件。对于光催化材料，表面缺陷位点可以作为氮分子化学吸附的活性位点，同时局域在缺陷处的电子可以转移进入吸附氮分子的反键π轨道，从而实现对氮-氮叁键的弱化作用。虽然目前已有相关文献报道了基于缺陷构筑的催化剂材料可用于光催化固氮合成氨反应，但是其活性仍有待进一步的提高。其瓶颈来自于多个方面：首先需要进一步调控催化位点对于氮分子的吸附作用，促进光生电子从催化剂向吸附氮分子的转移，以提高对氮分子的活化能力;其次需要抑制光生电子在缺陷处的能量驰豫过程，以减少电子传递过程中的能量损耗。

熊宇杰团队针对该系列挑战，将钼原子掺杂在W18O49催化剂的缺陷位点处，实现了光催化体系中氮分子的高效活化。研究人员结合同步辐射技术表征、原位红外光谱检测和理论计算模拟，揭示了掺杂钼原子对缺陷状态的精修作用。一方面，钼掺杂提升了催化剂缺陷能级，减少了电子能量驰豫过程带来的能量损耗;另一方面，钼掺杂形成的钼-钨异质位点调控了吸附氮分子的电荷状态，增大了氮原子之间的电荷差，同时提高了金属-氧键的共价性，促进了光生电子转移过程。通过这些钼掺杂带来的不同效应之间的协同作用，有效地促进了催化位点对氮分子的活化，实现了催化剂光驱动固氮合成氨效率的大幅提升。

该进展为开发高效的固氮光催化剂以及调控催化剂缺陷的状态提供了一种新的思路,并展示了催化位点电子结构的调控对催化反应的重要性。 该工作的同步辐射X射线吸收谱表征、光电子能谱表征和红外光谱原位检测，分别得到中国科学技术大学宋礼教授、朱俊发教授和戚泽明副研究员的合作支持。研究工作得到了国家重点研发计划、国家杰出青年科学基金、中国科学院前沿科学重点研究项目、中国科学院创新交叉团队等项目的资助。(来源：中国科学技术大学)

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发