
过程工程所在电催化固氮合成氨和尿素方面取得系列进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/13821.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！

将氮气和二氧化碳同时转化为高附加值的尿素，起到人工固氮和固碳的作用，对碳中和战略的实现具有重要意义。但传统的工业合成氨和尿素过程存在高能耗问题，造成资源浪费。近日，中国科学院过程工程研究所发展出一系列半导体基电催化剂，实现了常温常压下合成氨和尿素，该发现对推动惰性气体分子的高值化利用和优化具有重要意义，并为新能源及化肥行业的低碳发展提供了新模式。

氮气占空气中所有成分的

78%，但无法被动物和植物体直接吸收，利用氮气人工合成氨则需要消耗大量能量。此外，二氧化碳的过量排放严重影响环境。研究表明，电催化法可成为解决上述两个问题的“金钥匙”，且在常温常压条件下即可实现氨和尿素的电合成 ($N_2 + CO_2 + H^+ + 6e^- \rightarrow CO(NH_2)_2 + H_2$)。

然而，电催化合成尿素的过程中，其活性和选择性仍受限于：惰性的氮气和二氧化碳分子在催化剂表面极弱的化学吸附；断裂极其稳定的C=O双键和N-N三键需要较

高的过电位；氮气和二氧化碳的平

行还原与尿素合成过程中的C-N偶联反应形成竞争并导致复杂的产物分布。

为此，中科院过程工程所研究员张光

晋团队采用配位自组装-高温煅烧策略，合成

NiTe基纳米电催化剂。研究表明，不同煅

烧温度实现了

NiTe纳米晶的表面原子结构调控，有助于实现催化剂活性位点的最大化暴露并提高催化剂的原子利用率，从而实现高效率的电催化合成氨。相关研究成果发表在Advanced Functional Materials上。

基于此，科研人员以纳米钷酸铋为研究对象，构筑金属-半导体基Mott-Schottky异质结构的Bi-BiVO₄

复合物。复合物中金属相的铋与n型的钷酸铋半导体相互作用诱导了自发电子转移并形成独特的空间电荷区域。综合分析证明，复合物界面处构筑的独特空间电荷区域有效加速了氮气和二氧化碳在产生的局部亲电和局部亲核区域的特异性吸附和活化，并抑制了一氧化碳对活性位点的毒化以及吸热的*NNH中间体的形成，确保了*N=N*中间体和产生的一氧化碳放热耦合形成尿素前驱体*NCON*。相关研究成果发表在Angewandte Chemie International Edition上。

进一步研究发现，创建局部带电区域可以实现惰性气体分子的化学吸附和活化。因此，理论预测首先证明p-n异质结构的铁酸铋/钒酸铋复合物中构建内建电场确保了从钒酸铋到铁酸铋的电子转移，有利于产生理想的亲核和亲电区域。作为概念验证实验，科研人员采用独特的超声水浴策略制备出大米状的铁酸铋/钒酸铋复合物。研究表明，内建电场的存在使异质结构界面处发生局域电荷重排；氮气/二氧化碳分子通过静电相互作用特异性吸附在产生的亲电和亲核区域；吸附的 *N_2 促进二氧化碳还原为一氧化碳，产生的一氧化碳与 *N_2 通过热力学可行的C-N偶联反应产生尿素前驱体 $^*NCON^*$ ；随后的质子化过程会以末端机理进行直至产生尿素。相关研究成果发表在Chemical Science上。

上述系列研究提出了温和条件下合成氨及尿素的全新工艺，并开发出一系列高性能电催化固氮催化剂，具有重要的理论与现实意义，可为我国碳达峰与碳中和目标的实现提供科技支撑。研究工作得到国家重点研发计划、国际科技合作重点项目、化学与精细化工广东省实验室的资助。过程工程所直博生原孟磊为上述论文第一作者，研究员张光晋为论文唯一通讯作者。

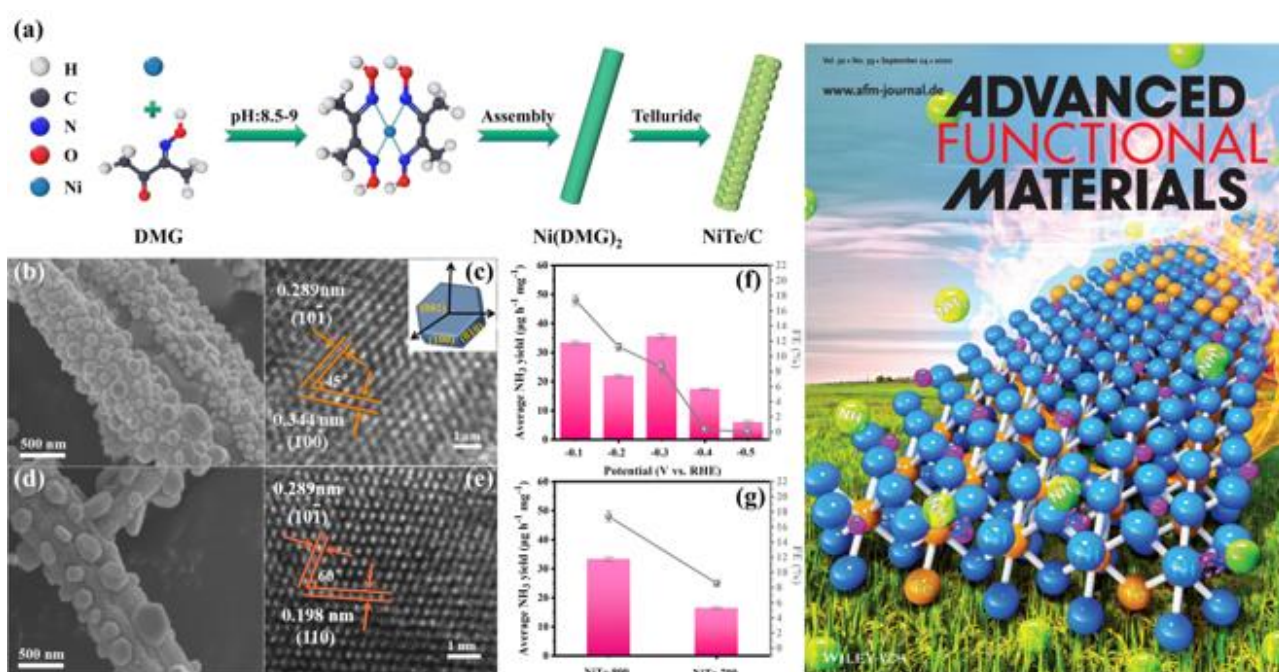


图1. (a) NiTe纳米晶的合成示意图；NiTe-700催化剂的SEM (b) 及 (c) HRTEM图片；NiTe-800催化剂的SEM (d) 及 (e) HRTEM图片；(f) NiTe-800在不同电位下的法拉第效率及氨产率；(g) NiTe-700及NiTe-800的性能对比图。右侧为本文被Advanced Functional Materials选作的内封面图。

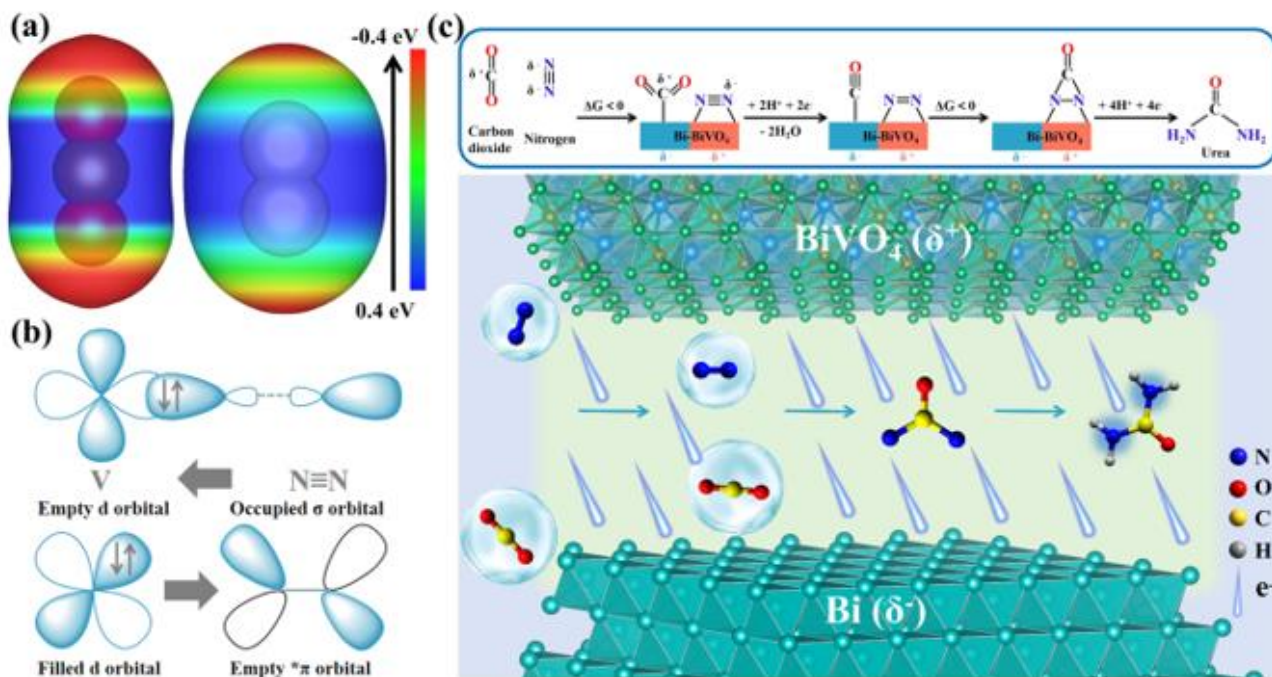


图2. (

a) 二氧化碳分子 (左侧) 及氮气分子的表面静电势图; (b) 氮气在V位点活化示意图; (c) Bi-BiVO₄ 复合物用于尿素电合成的机理图及示意图。

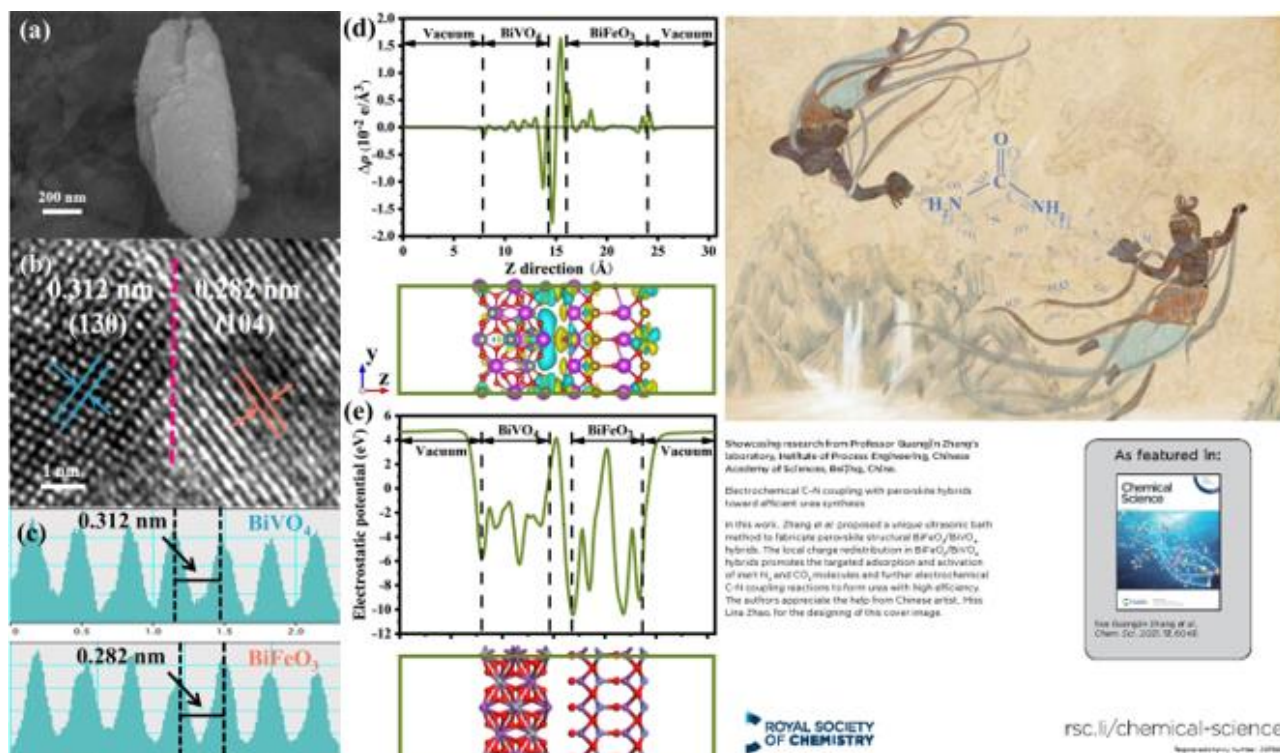


图3. (a) 铁酸铋/钒酸铋异质结的SEM图及 (b-c) HRTEM图片; (d-e) 铁酸铋/钒酸铋异质结的计算模型及差分电荷图。右侧为本文被Chemical Science选作的内封面图。

研究团队单位：过程工程研究所

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](http://www.iikx.com)转发