纳米多相催化剂驱动的氮循环电化学的研究进展

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/19204.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！

纳米多相催化剂驱动的氮循环电化学的研究进展。 2022年5月30日，Nano Research Energy(https://www.sciopen.com/journal/2790-8119)副主编,电子科技大学孙旭平教授发表题为Recent advances in nanostructured heterogeneous catalysts for N-cycle electrocatalysis的最新综述。

氮(N)是地球上最丰富的元素之一，在生命中发挥着不可替代的作用。它主要作为非极性二氮(N2)气体(~大气体积的78%)的惰性分子结构存在，具有941 kJ mol-1的高键能，N2不能被大多数植物群和所有生物直接使用。有趣且值得庆幸的是，N2可以通过闪电或特定的生物方式转化为活性氮。自然界中还有硝酸盐(NO3-)、亚硝酸盐(NO2-)、一氧化氮(NO)、二氧化氮(N2O)、肼(N2H4)、氨(NH3)等无机含氮化合物，它们大多能够相互转化。这些相互转化过程(如N2固定NH3、NH3硝化生成NO2-/NO3-、NO3-反硝化返回N2等)可以组成与碳循环同等重要的生物地球化学氮循环(N-cycle)，具有充分的研究意义。

然而，由一系列自然系统介导的N-cycle受到人类活动的严重影响，由此导致的N-cycle的失衡伴随着严重的环境问题（人类活动导致的N-cycle失衡对陆地、海洋和大气生态系统产生了严重的负面影响），进而威胁到人类的生存。例如NO和N2O都是大气污染物，是工厂和车辆中燃烧化石燃料形成的，NO的快速排放和积累导致了酸雨、臭氧消耗和雾霾等问题。 此外，过度使用人工氮肥导致地下水中活性固定氮素(如NO3-和NO2-)浓度较高，对陆地和水生生态系统有显著的副作用，这种氮氧阴离子的过量吸收对人和动物都有害。因此，NO/N2O的排放控制和NO3-/NO2-对地下水的修复是氮化学研究的重要领域。

在过去的几十年里，人类活动对氮循环的循环和平衡造成了严重的影响。20世纪Fritz Haber和Carl Bosch最伟大的发明之一(H-B工艺，N2 + H2→NH3)使工业化生产NH3成为可能。然而，不仅集中工厂和设备的巨额资金成本，而且H-B工艺对环境的负面影响，使其不再适合今天人类发展的需要。因此，我们面临着探索可持续/分布式的方法来控制氮循环和实现循环氮经济的巨大必要性。电还原氮气为电气化工业提供了一种可持续的方式，不仅可以将间歇电能存储到有用的化学品(如NH3)中，还可以直接抵消传统H-B工艺产生的全球CO2排放。不幸的是， N2是热力学上最稳定的物种之一，使N2-到NH3的转化成为一个高度吸热的过程。事实上，电化学氮还原反应(NRR)非常棘手，它甚至推动了硝酸盐还原反应(NO3RR)和一氧化氮还原反应(NORR)的发展，以产生NH3。使用反应性更强但有害的NO3-、NO3-、NO等作为前体，不仅有助于提高转化效率，而且有望缓解相关的环境污染问题。此外，如图1所示，无机氮化物的电化学转化还包括以N2(或NO3-)为主要产物的氧化反应，如氨氧化反应(AOR)、肼氧化反应(HzOR)、氮氧化反应(NOR)等。

制定减轻这种人为不平衡的可持续方案对于解决严重的环境问题至关重要。具有灵活性、可持续

性和兼容性的人工氮循环 (N-cycle) 电催化技术被认为是塑造地球氮循环未来的可行选择。电催化是指用电、电解质（反应通常以水为质子源）和足够高效的催化剂加速转换过程。在催化剂表面，N2、气态氮氧化物、氮氧阴离子均可作为电合成NH3的氮源。NH3和N2H4在燃料电池中可以转化为N2。

孙旭平教授团队的最新氮循环综述重点介绍了多相纳米催化剂在各种半反应（如NOR, AOR, HzOR, NOOR, NRR, NORR, NO3RR, NO2RR）和能源器件（如金属- N2电池）中的重要进展（主要是在过去三年），包括它们的制备细节和电化学性能。强调了闭环电化学中循环氮物种对同时生成有用化学物质（如NH3、NH2OH和N2H4）和减少污染物（如NO3-、NO2－、NO）的有效性。此外，还列举了许多例子来简要说明催化体系设计的灵活性，例如，在典型的碳表面上修饰COFs。更重要的是，在氮循环电催化剂的发展中仍然存在问题和挑战，综述总结出了该领域的一些可能的未来趋势，希望对最近 N-cycle电催化的概述能够激发进一步的研究。

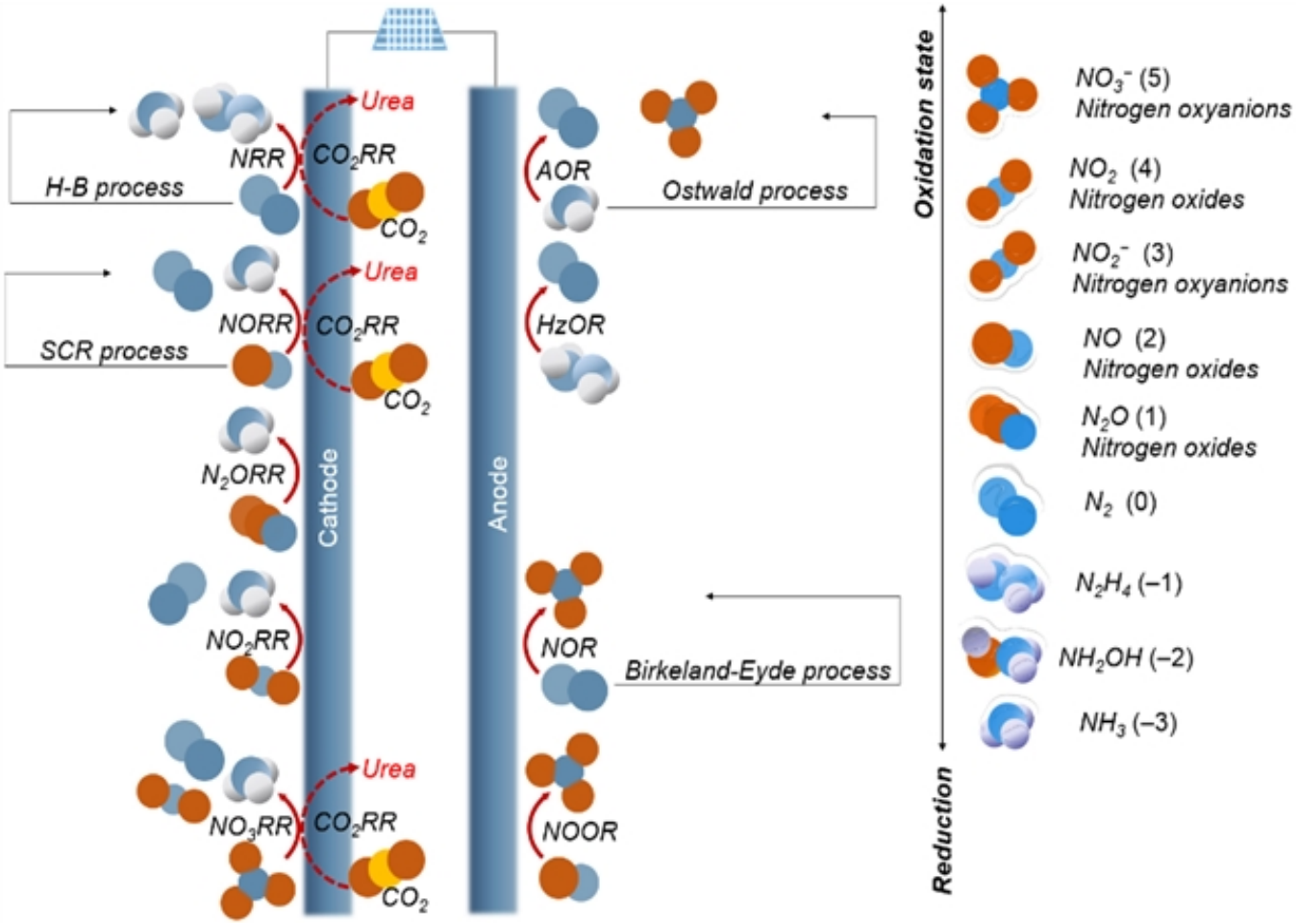


图1：含氮小分子的典型电化学转化。图中左侧包括了常见的氧化还原反应，还显示了一些与CO2还原反应 (CO2RR)
耦合产生更高附加值产品（如尿素）的反应。右边是常见的无机含氮物质及其氧化态。

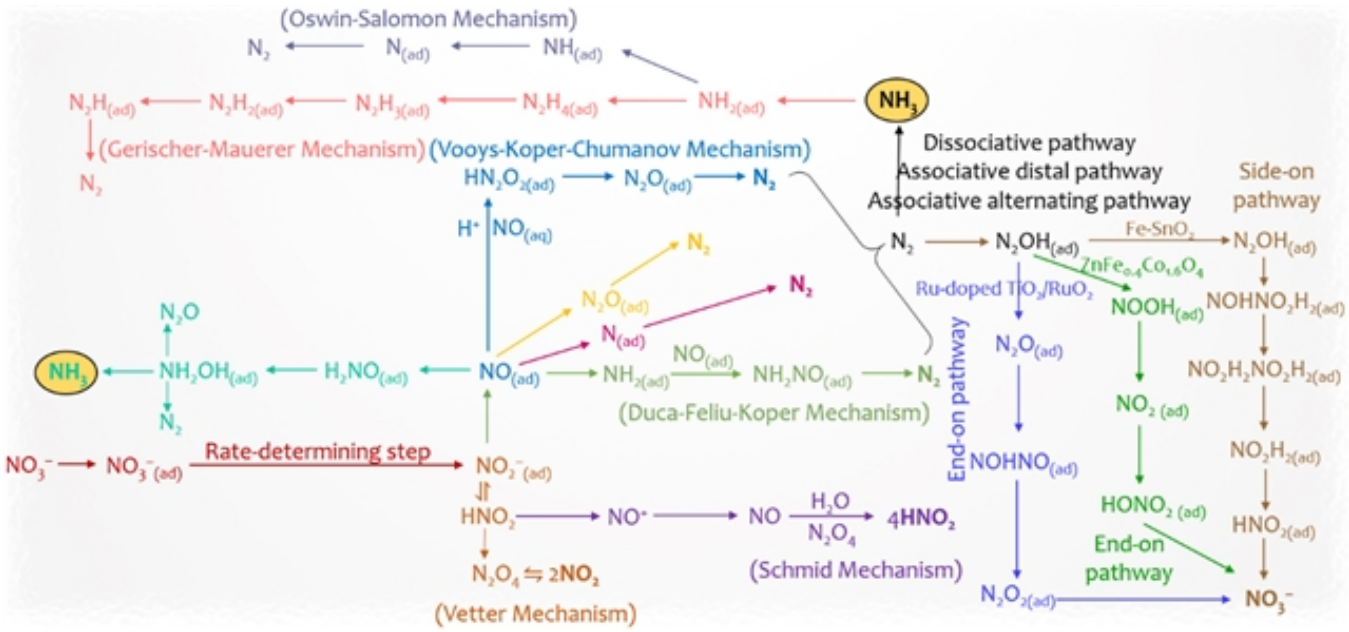


图2：氮循环电催化的主要机制和途径。

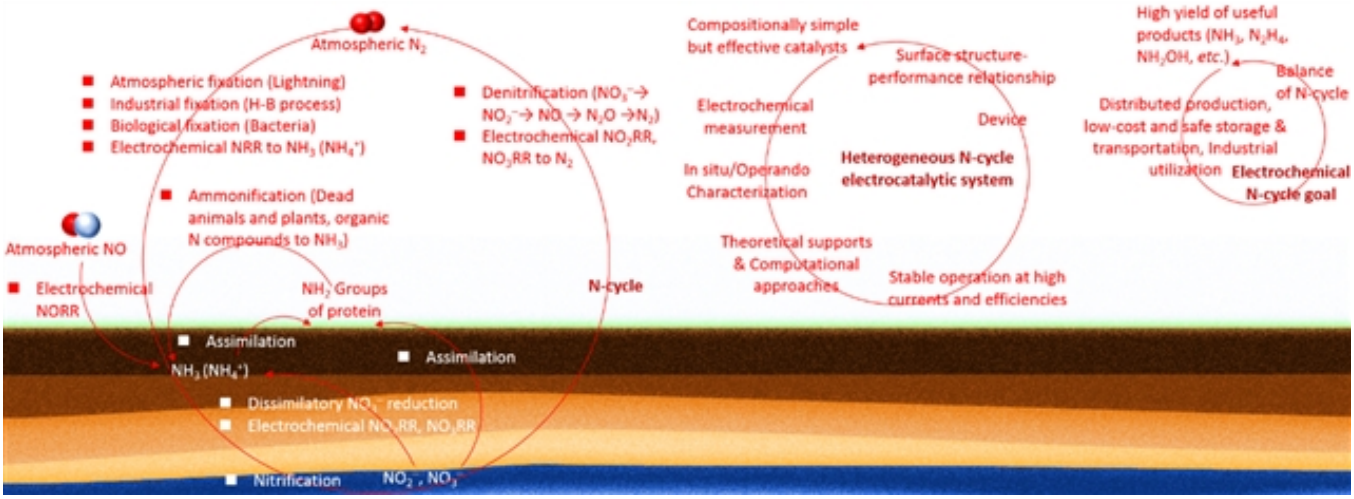


图3： 氮循环电催化的挑战和目标。从左到右依次为:(i)
氮循环中的关键转化步骤;(ii)目前电催化转化氮物种面临的挑战和目标;(iii)更高的目标。

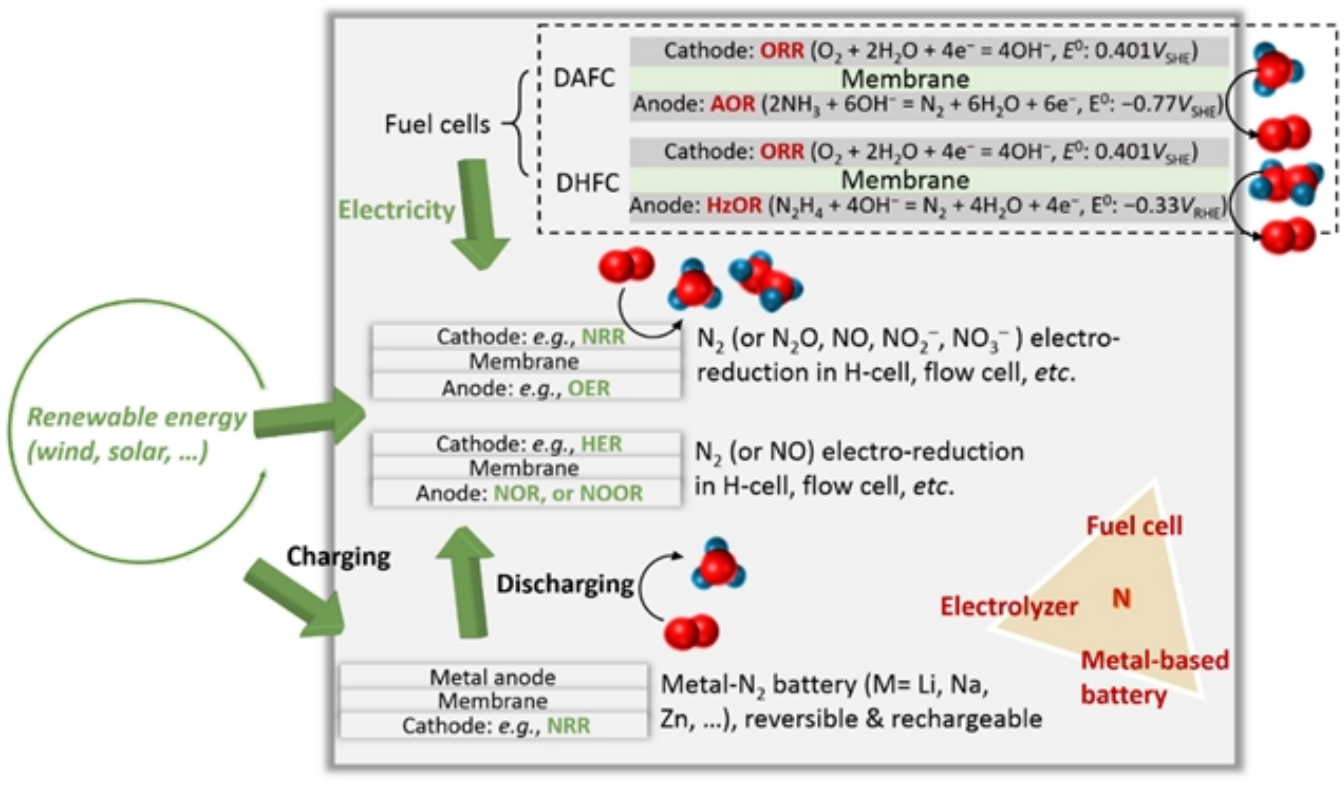


图4：一些电化学器件(如燃料电池、电解槽和电池)将含氮物质转化，构成一个循环三角。

相关论文信息：https://doi.org/10.26599/NRE.2022.9120010

作为Nano Research姊妹刊，Nano Research Energy (ISSN: 2791-0091; e-ISSN: 2790-8119; 官网: https://www.sciopen.com/journal/2790-8119)于2022年3月创刊，由清华大学曲良体教授和香港城市大学支春义教授共同担任主编。Nano Research Energy是一本国际化的多学科交叉，全英文开放获取期刊，聚焦纳米材料和纳米科学技术在新型能源相关领域的前沿研究与应用，对标国际顶级能源期刊，致力于发表高水平的原创性研究和综述类论文。

来源：Nano Research Energy

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