科学家开发铁-铜双原子还原硝酸盐合成氨催化剂

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/23702.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！

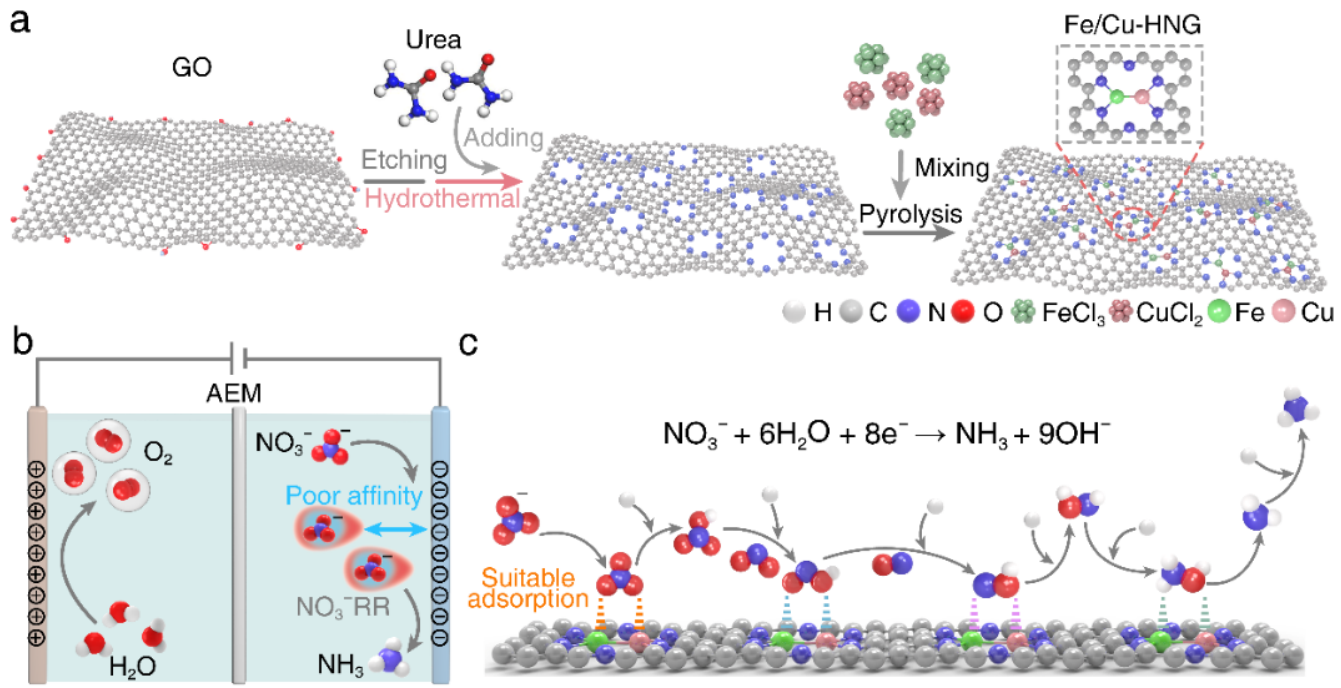
科学家开发铁-铜双原子还原硝酸盐合成氨催化剂。

人类既需要合成氨支撑地球七十亿人口的生存，又不断向环境中释放活性氮，导致地表水和地下水层中硝酸盐浓度增加，对人类健康构成严重威胁。

近日，中国科学院过程工程所研究员朱庆山、张会刚与浙江大学教授陆俊合作，提出铁-铜(Fe/Cu)双原子催化硝酸盐法还原制氨，实验表明，该催化剂可实现92.51%的最大氨法拉第效率。这种双中心和杂原子结合的策略为催化剂的进一步开发提供了新思路，扩展了硝酸盐还原和氨合成的电催化技术。相关工作发表于《自然-通讯》(Nature Communications)上。

氨是农业、塑料、制药等行业中的重要化学品。传统的哈伯-博施法(Harber-Bosch)合成氨工艺消耗大量能源的同时，也给环境造成了严重影响。将硝酸盐电还原成氨，既可减轻环境污染，也为可持续氨生产大大节约能源，但硝酸根还原合成氨(NO3－RR)过程是一个八电子传递反应，速率很慢，硝酸根特有的平面共振结构降低了其阴极吸附、抬高了转化过程能垒，研究高效的硝酸根还原合成氨催化剂仍然是一个重大挑战。

研究团队发现Fe/Cu和NO3-之间存在适当的相互作用，并促进了NO3-阴离子的吸附和产物释放。NO3-与双金属原子d轨道的强耦合降低了阴离子吸附的能垒，双原子可以进一步削弱N-O键，使NH3的生产具有较低的反应能垒。双原子位点也降低了整体反应势垒。



Fe/Cu-HNG的合成和电化学硝酸盐还原示意图(研究团队供图)

为了锚定双原子并形成金属-金属二聚体，研究人员首先在石墨烯中设计孔洞结构以产生大量的边缘位点，这些边缘位点被进一步氮化以结合Fe/Cu原子。通过形貌表征观察到大量双原子对，确定双原子位点的成功合成。通过价态分析与配位结构表征，确定杂原子双位点催化剂(Fe/Cu-HNG)中存在金属-N配位和异质金属-金属配位。同时进一步验证Fe/Cu-HNG的配位结构为Fe/Cu双原子锚定在MN2位点上，相邻的Fe/Cu原子结合在一起形成金属-金属二聚体结构。

实验表明，Fe/Cu-HNG具有显著提高的催化活性，在0.3 V(vs RHE)下产NH3的FE最大为92.51%，同时Fe/Cu-HNG具有高产率(1.08 mmol h-1mg-1，0.5 V vs RHE)和超低能耗。确定了产物NH3的来源并证明了催化剂的优异稳定性。

该项研究展示了高效NO3－RR双原子催化剂，在碱性条件下具有优异的催化活性，双原子的协同效应为NO3－RR催化剂的设计提供了一种新途径，有助于促进电化学硝酸根还原制氨领域的研究及实际应用。

该工作得到了科技部重点研发大科学装置前沿研究专项和自然科学基金的支持。(来源：中国科学报 甘晓)

相关论文信息：https://doi.org/10.1038/s41467-023-39366-9

作者：朱庆山等 来源：《自然—通讯》

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