科学家提出“步骤特异性光激发”策略

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/40787.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！

科学家提出“步骤特异性光激发”策略。近日，中国科学院大连化学物理研究所研究员陈萍、研究员郭建平团队与厦门大学副教授吴安安合作，在氢化物固氮研究领域中取得新进展。团队揭示了氢化锂（LiH）及其关键反应中间体的波长依赖光响应行为，并基于此构筑了紫外—可见光协同驱动的LiH光化学合成氨过程。相关成果发表在《美国化学会志》。

氨是化肥和含氮化学品的基础原料，其温和条件下的高效合成是化学科学研究的重要方向。传统Haber-Bosch工艺需在高温高压下运行，能耗与碳排放较高。这源于热催化合成氨面临的一个核心难题：氮气活化和中间体加氢两个步骤在能垒上存在标度关系——催化剂若能有效活化惰性的N≡N键，则对含氮中间体的吸附也会较强，会阻碍后续加氢放氨；反之，若有利于产物脱附，则氮气活化能力不足。

光照为解决这一问题提供了新思路：不同波长的光子能量不同，理论上可以针对性地驱动特定反应步骤。然而，常规光催化体系中关键中间体丰度低、寿命短，难以研究其特异性的光响应行为。

在前期LiH介导紫外光化学合成氨研究基础上，团队注意到LiH在光化学固氮过程中会生成Li2NH和LiNH2等稳定中间体，这些物种具有不同的光激发性质，为研究波长对各反应步骤的选择性调控提供了平台。团队利用该特性发现，紫外光可以驱动氮气在LiH上还原生成含氮中间体，随后可见光可以驱动这些物种加氢成氨，从而解耦整个反应路径，绕过了标度关系。在常压、644?K条件下，该体系出口氨浓度可以达到0.25%，超出了该条件下的热力学平衡上限。

本工作提出了步骤特异性光激发策略：利用不同波长的光分别驱动氮气固定和中间体加氢这两个在热催化中相互制约的步骤，绕过了标度关系，实现了突破热力学平衡极限的光催化合成氨。该策略为温和条件下人工固氮提供了新思路，也为其他重要催化反应提供了新的调控途径。（来源：中国科学报 孙丹宁）

相关论文信息：https://doi.org/10.1021/jacs.6c04222

作者：陈萍等 来源：《美国化学会志》

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