合肥研究院构建高效硼掺杂氮化碳纳米片光催化剂应用于固氮合成氨研究

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/8487.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！

近期，中国科学院合肥物质科学研究院固体物理研究所环境与能源纳米材料中心在构建高效硼掺杂氮化碳纳米片光催化剂应用于固氮合成氨研究方面取得新进展，通过构建B-N-C键用于稳定氮化碳光催化剂表面暴露的活性氮原子并且促进氮气分子吸附和活化，最终实现增强光催化固氮合成氨。相关研究成果以全文形式发表在国际期刊*Small*上。

氨是世界上产量最大的化工产品之一，在全球经济中占有重要地位。到目前为止，最成熟的人工固氮合成氨（NH_3）工艺是哈伯-博施（Haber-Bosch）法（即在高温、高压条件下利用铁基催化剂将高纯度的氮气和氢气转化为氨气），然而由于其工作条件非常苛刻（200-300 atm、350-550°C），并产生巨大的能耗，因此，发展高能源利用效率、低CO_2排放和直接利用空气中N_2在常温常压下合成NH_3是非常必要的，同时也具有一定的挑战性。

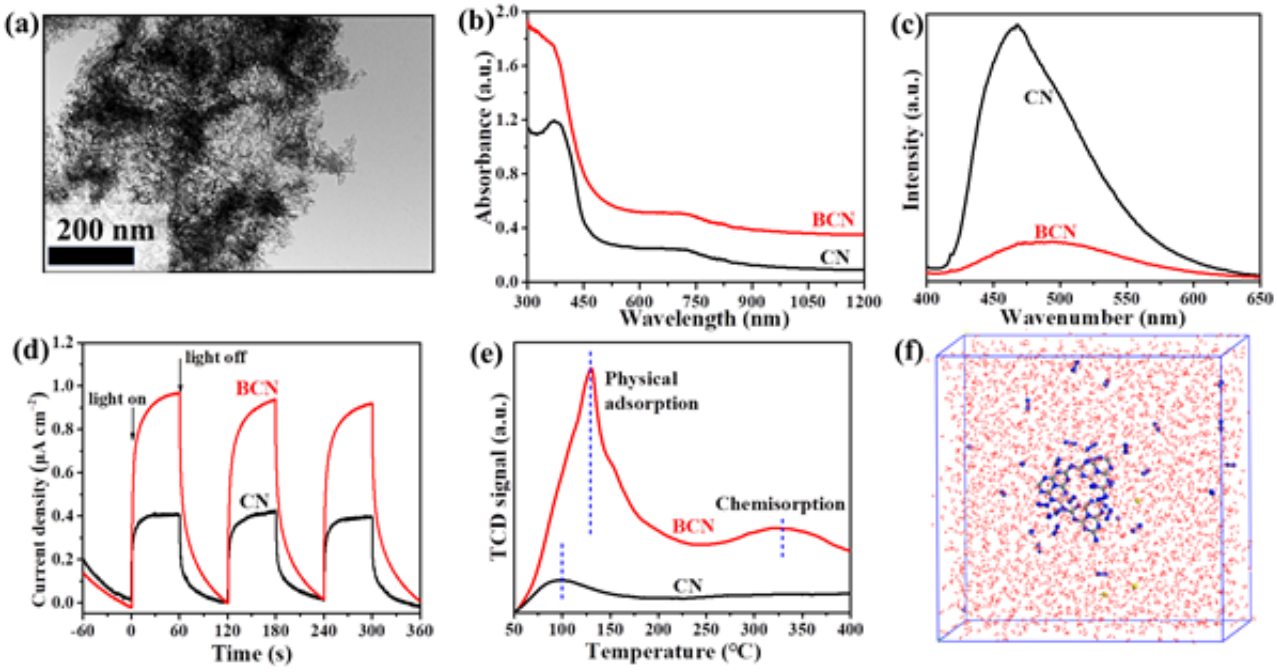
近年来，光催化氮还原反应（NRR）被认为是在常温常压条件下可持续合成氨的最有前途的方法之一。其中，石墨相氮化碳（g-C_3N_4）作为一种典型的二维非金属聚合物半导体光催化剂，因其具有元素来源丰富、可见光响应高、光/化学稳定性强、制备方法廉价等优势，在合成氨光催化反应中展现出巨大潜力。然而，g-C_3N_4基光催化剂用于合成氨反应还存在一些关键性问题，包括：（1）g-C_3N_4表面暴露的活性N原子（例如边缘N和氨基N）是否会在光催化过程中发生加氢反应从而合成了NH_3分子？（2）如果暴露的活性N原子在光催化NRR过程中确实参与了合成NH_3，是否能开发出稳定这些活性N原子有效的方法，同时构建新的N_2吸附、活化和加氢的活性位点？（3）纯块体g-C_3N_4

的比表面积非常低，不利于N_2
的吸附、活化，并且光生载流子的复合率高，导致光催化效率相对较低。

基于上述问题，课题组通
过引入硼（B）原子掺杂制备出B原子掺杂g-C_3N_4
纳米片光催化剂（BCN）应用于固氮合成氨反应，并结合理论计算方法（分子动力学模拟）对相关结果进行了理论预测和展望。一系列实验及分子动力学模拟证明：B掺杂构建的B-N-C键不仅能够稳定地锚定C_3N_4表面暴露的活性N原子，同时通过形成纳米级别的p-n结可以有效抑制g-C_3N_4的光生载流子复合。N_2
化学吸附测试及分子动力学模
拟证明：B原子位点的引入成为了N_2
分子吸附和活化的活性位点，有利于光催化合成氨反应的进行。因此，制备的BCN光催化剂的产氨效率达到了313.9 μmol
$g^{-1}h^{-1}$，约为纯g-C_3N_4
纳米片（CN）光催化效率的10倍。此工作通过非金属原子掺杂策略调控半导体的能带结构及光/电化学性质，显著提升了光催化固氮合成氨的活性，为未来常温常压下开发新的合成氨催化剂提供了新的思路和重要的参考价值。

该项目工作得到国家自然科学基金和中科院创新研究团队国际合作项目的资助。

文章链接



（a）BCN样品的TEM图片；（b）CN和BCN样品的漫反射光谱对比；c）CN和BCN样品的荧光光谱对比；（d）C
N和BCN样品的光电流响应对比；（e
）CN和BCN样品的N_2
化学吸附测试对比；（f）BCN催化剂在水分子、氮气分子及牺牲剂环境中分子动力学模拟结果模型。

研究团队单位：合肥物质科学研究院

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