大连化物所提出电催化一氧化氮还原合成氨新策略

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/8946.html

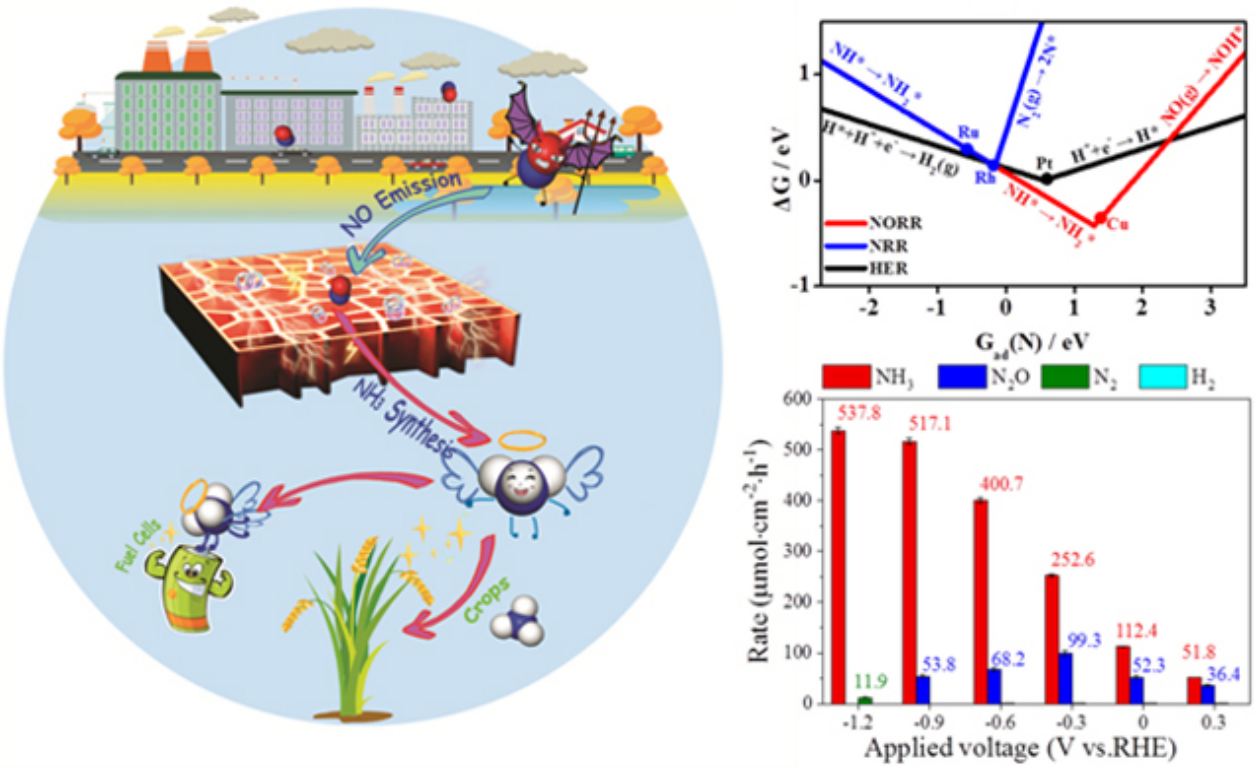
本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

近日，中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室理论催化创新特区研究组研究员肖建平团队和二维材料与能源小分子转化创新特区研究组研究员邓德会团队合作，提出将工业废气和汽车尾气中排放的一氧化氮(
NO)电催化还原合成氨气(NH_3)，为脱硝和电催化合成氨提供了新思路。

NO是一种有害的大气污染物，通常来自于化石燃料的燃烧，如火电厂锅炉烟气、汽车尾气等，NO去除在工业烟气处理中是必不可少的。同时，合成氨在工业上是一个重要的化工过程，氨气是化工生产中一种基础的化学物质，可以用来制备化肥、硝酸、炸药等，还可作为燃料电池的燃料。传统的合成氨方法主要是哈-伯法，但此过程在高温高压下才能进行，需要消耗大量的能量。电催化氮气还原合成氨可以在常温常压下进行，但是由于氮气分子非常稳定，氮-氮三键难以断裂，面临着低活性和低选择性的难题，难以得到实际应用。鉴于此，该团队提出将烟气中的NO电催化还原合成NH_3。

基于密度泛函理论计算研究，研究人员首先考虑了数十种不同的NO还原反应路径，发现NO还原在热力学上比N_2
还原和析氢（竞争反应）都更容易进行。此外，研究人员通过基于描述符的方法筛选出最优的过渡金属催化剂——Cu，
电催化动力学计算表明，在Cu(111)表面上，NH_3
在不同的还原产物（NH_3、H_2、N_2O和N_2
）中的生成能垒最低。NO电催化实验表明，Cu和Pt具有相近的氨气产率，但是Cu的选择性更优。相对于Cu Foil电极，Cu
Foam由于具有丰富的孔隙结构，使催化性能得到进一步提高，在电压为-0.9 V时，可得到517.1 $\mu mol \cdot cm^{-2} \cdot h^{-1}$的氨气产率和93.5%的法拉第效率，且具有100 h运行稳定性。这是目前在电催化合成氨中得到的最高的氨气产率和选择性，氨气产率更是达到了传统热催化合成氨产率的量级。同位素标记实验证明NH_3
生成全部来自于NO还原。最后，通过微观动力学模拟计算了NO还原的TOF理论值，随着电压的改变，这与实验上的氨气产率呈很好的线性关系，证明了NO还原机理的正确性。

相关研究成果发表在《德国应用化学》（*Angew. Chem. Int. Ed*
.）上。以上研究得到国家自然科学基金项目、国家重大研发计划项目、辽宁省“兴辽英才计划”等的支持。



脱硝和合成氨的有机结合-废气/尾气的电还原

研究团队单位：大连化学物理研究所

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转发