
合肥研究院发展新型铁单原子催化剂实现高效电催化固氮合成氨

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/9597.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常温常压下电催化氮气还原研究方面取得新进展，该工作首次报道了新型氧配位铁单原子催化剂实现高效电催化氮气还原合成氨。相关研究成果以全文形式发表在国际期刊《德国应用化学》（Angewandte Chemie International Edition）上。

单原子催化剂具有最大的质量催化活性和可调节的配位电子结构，已被广泛应用于热催化、光催化和电催化。不同于其他形式的催化剂，单原子催化剂的催化活性取决于单原子的性质、载体的物理化学性质以及将单原子固定在载体上的配位键形式。迄今为止，已经报道了多种碳负载贵金属和过渡金属单原子电催化剂。然而，这些单原子催化剂几乎都是通过金属-氮（或碳）配位键将单原子锚定在碳载体上，因此探索其他形式的配位构型来制备单原子催化剂将有利于丰富单原子催化剂家族的种类和拓展其新的催化功能和应用领域。

近年来，常温、常压电催化氮气还原反应合成氨已经引起研究者广泛关注，可能成为替代能源密集型哈珀-波施工业法的理想合成氨工艺。迄今为止报道的电催化合成氨单原子催化剂包括在含氮碳载体上通过金属-氮锚定的Au、Ru、Mo、Cu、Fe和Co单原子催化剂，以及在石墨炔上通过金属-碳键锚定在碳载体上的Mo单原子催化剂。此外，对于所有报道的单原子催化剂，碳载体几乎是由金属-有机骨架(MOFs)或有机分子的碳转化而制备，导致其大规模生产成本增加。而生物质基前驱体由于廉价、资源丰富且容易获得，作为碳载体用于大规模合成单原子催化剂是非常有利的。更重要的是，生物质前驱体(例如甲壳素、壳聚糖、纤维素、半纤维素和木质素)表面富含氮、氧官能团，便于调节金属离子的吸附活性，进而通过氮、氧配位键将单原子可控地锚定在碳载体上，形成新型催化活性配位构型。

基于此，课题组创新

性地利用富氧官能团且不含氮元素的木质

纤维素作为 Fe^{3+}

吸附的前驱体，在碳热还原过程

中，通过Fe-O配位结构($Fe-(O-C_2)_4$)将铁单原子锚定到碳载体上(Fe-

SAs/L

CC)。不含

氮的木质纤维素的应

用也使研究人员能够在不受其它配位结构(

尤其是Fe-N_x配位结构)干扰的情况下研究Fe-O配位结构的催化性能。结果表明，负载在碳布电极

上的Fe-SAs/LCC(Fe的质量分数为0.60wt.%), 在0.1 M KOH电解液中, 可以获得氨产率和法拉第效率分别为 $32.1 \mu\text{gh}^{-1}\text{mg}^{-1}$ ($5350 \mu\text{gh}^{-1}\text{mg}_{\text{Fe}}^{-1}$)和29.3%。为了验证氮气扩散传质对电催化氮气还原反应的影响, 研究者将Fe-SAs/LCC负载在玻碳电极上, 可获得 $307.7 \mu\text{gh}^{-1}\text{mg}^{-1}$ ($51283 \mu\text{gh}^{-1}\text{mg}_{\text{Fe}}^{-1}$)的超高氨产率和接近记录的法拉第效率(51.0%)。该研究作为设计和开发高性能单原子电催化剂提供了新思路。

该项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](#)

图: (a)木质纤维素的SEM图; Fe-SAs/LCC的 (b)TEM图和 (c)球差校正的HADDF-STEM图; (d)石墨碳上优化的Fe-(O-C₂)₄结构; (e) Fe-(O-C₂)₄以end-on和side-on两种方式吸附氮气的结构, Fe-(O-C₂)₄以end-on和side-on两种方式吸附氮气的差分电荷密度图(黄色和青色分别代表得到和失去电子; 褐色球、红色球和黄色球分别代表C、O和Fe原子); Fe-SAs/LCC、Fe₂O₃和Fe foil样品的 (f) Fe K边XANES光谱和 (g) Fe K边的R空间EXAFS; (h) Fe-SAs/LCC负载于玻碳电极上在各个反应电位对应的产氨速率和法拉第效率。

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