



面向世界科技前沿、面向经济主战场、面向国家重大需求、面向人民生命健康，率先实现科学技术跨越发展，率先建成国家创新人才高地，率先建成国家高水平科技智库，率先建设国际一流科研机构。

——中国科学院办院方针

[首页](#)[组织机构](#)[科学研究](#)[成果转化](#)[人才教育](#)[学部与院士](#)[科学普及](#)[党建与科学文化](#)[信息公开](#)[首页 > 科研进展](#)

合肥研究院在电催化氮还原合成氨研究方面取得进展

2022-06-30 来源：合肥物质科学研究院

【字体：大 中 小】



语音播报



近期，中国科学院合肥物质科学研究院固体物理研究所纳米材料与器件技术研究部环境与能源纳米中心在电催化合成氨反应性能与机理探究方面取得进展，通过构筑正十二烷硫醇修饰的铑基催化剂实现高效电催化氮气还原合成氨（NRR），并结合理论计算揭示了表面氢覆盖度对NRR性能的影响规律。相关研究成果发表在Nano Research上。

相比于反应条件严苛、高能耗的Haber-Bosch工艺，电催化NRR过程可在常温常压下进行，并且可以选择水作为氢的来源，因而极具科学研究价值和工业化应用的可行性。但是，氮气非偶极、低溶解度等特点使其难以吸附在催化剂表面并被活化，反应位点更倾向于被水分解产生的质子所占据。由于电催化反应发生在电极-电解液界面处，因此表界面工程是提高催化剂性能重要的手段之一。其中，采用有机配体对催化剂表面进行修饰是表界面工程调节催化活性的有效方式之一。然而，催化剂表面有机配体浓度对催化性能的影响尚不明晰，而且催化剂表面活性氢的覆盖度与有机配体之间的协同效应对NRR性能的影响仍需要进一步探究。

为此，研究人员通过气相水热法与低温热解方法相结合的方式，制备了一系列正十二烷硫醇修饰的铑基催化剂（Rh@SC₁₂H₂₅/CFC-x，x代表热解时间），并在室温条件下将其用于电催化合成氨性能的研究。研究表明，热解时间为0.5 h时，Rh@SC₁₂H₂₅/CFC-0.5催化剂具有最优的NRR性能，在-0.2 V (vs. RHE) 电位下，0.1 M Na₂SO₄溶液中，氨产率为121.2 ± 6.6 μg h⁻¹ cm⁻² (或137.7 ± 7.5 μg h⁻¹ mgRh⁻¹)，法拉第效率为51.6 ± 3.8%。适中的正十二烷硫醇覆盖度既可以有效抑制析氢过程（HER），也可以很好地促进NRR过程。同时理论计算模拟结果显示，电解液中的质子还原为活性氢（H^{*}）的过程优先于氮气的吸附过程，活性氢会在催化剂的表面形成高H^{*}覆盖度。当正十二烷硫醇修饰后，降低了催化剂表面H^{*}覆盖度，进而降低了NRR过程决速步骤的能垒，表面H^{*}覆盖度与有机配体修饰的协同作用增强了催化剂NRR性能。该工作对于设计和开发在温和条件下高效NRR电催化剂提供了新的合成思路。

该项工作得到了国家自然科学基金和安徽省自然科学基金青年项目的支持。

论文链接

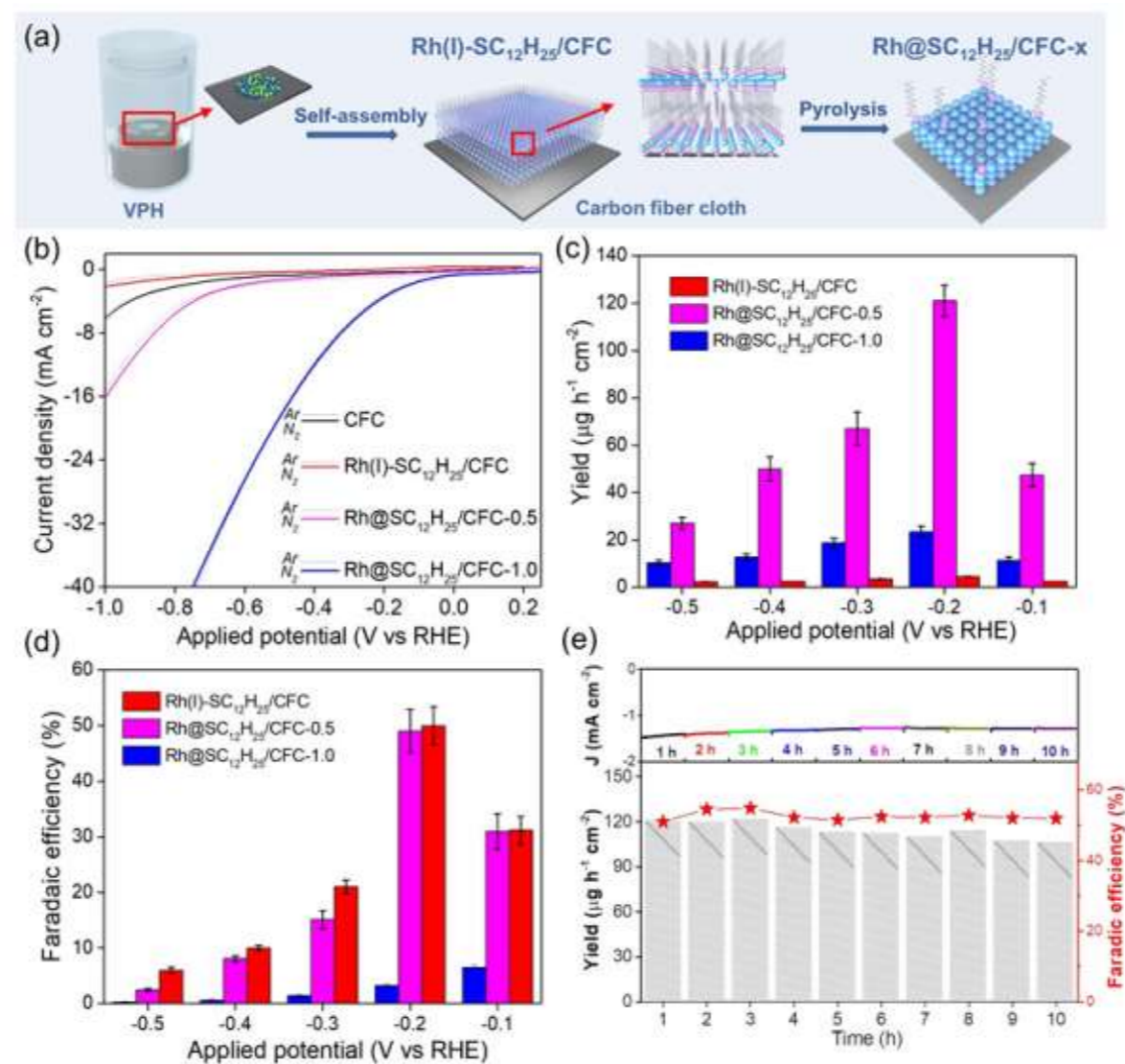


图1 (a) Rh@SC₁₂H₂₅/CFC-x催化剂的制备示意图。(b) Rh(I)-SC₁₂H₂₅/CFC、Rh@SC₁₂H₂₅/CFC-0.5、Rh@SC₁₂H₂₅/CFC-1.0、CFC电极分别在Ar和N₂饱和的0.1 M Na₂SO₄溶液中的LSV曲线; Rh(I)-SC₁₂H₂₅/CFC、Rh@SC₁₂H₂₅/CFC-0.5、Rh@SC₁₂H₂₅/CFC-1.0电极在不同电位下氨生成 (c) 产率; (d) 法拉第效率; (e) Rh@SC₁₂H₂₅/CFC-0.5在-0.2 V过电位下循环反应10次对应的产率、法拉第效率、阴极电流

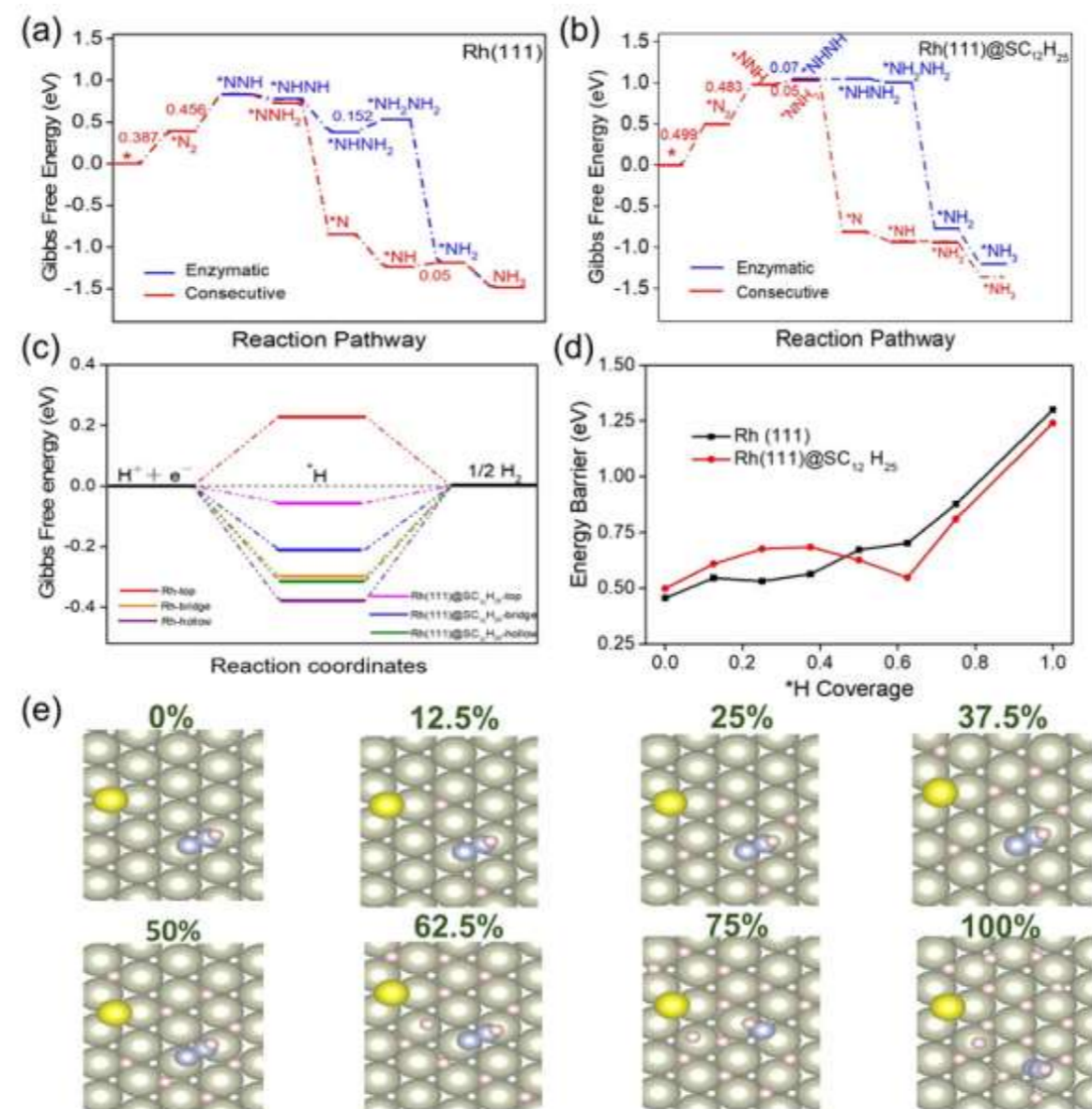


图2 (a) Rh(111); (b) Rh(111)@SC₁₂H₂₅上NRR过程吉布斯自由能图; (c) HER过程吉布斯自由能图; (d) 不同氢覆盖度下N₂加氢能垒; (e) 氢覆盖度示意图

责任编辑: 江澄

打印



更多分享

» 上一篇: 武汉植物园等在野生番茄基因组研究方面取得进展

» 下一篇: 力学所等在超深层天然气藏开发流固耦合研究中取得进展



扫一扫在手机打开当前页

© 1996 - 2022 中国科学院 版权所有 京ICP备05002857号-1 京公网安备110402500047号 网站标识码bm48000002

地址：北京市西城区三里河路52号 邮编：100864

电话：86 10 68597114 (总机) 86 10 68597289 (总值班室)

编辑部邮箱：casweb@cashq.ac.cn

