



科研之窗

通知公告

学院新闻

科研之窗

学术活动

物资共享

首页 · 科研之窗 · 正文

安培级电流密度电催化还原硝酸根合成氨

发布日期:2022-12-24 浏览次数:1245次

我院孙世刚院士团队在电催化还原硝酸根合成氨方面取得重要进展, 相关研究成果以“*Ampere-Level Current Density Ammonia Electrochemical Synthesis Using CuCo Nanosheets Simulating Nitrite Reductase Bifunctional Nature*”为题, 在线发表于《自然·通讯》(Nature Communications, DOI: 10.1038/s41467-022-35533-6)。

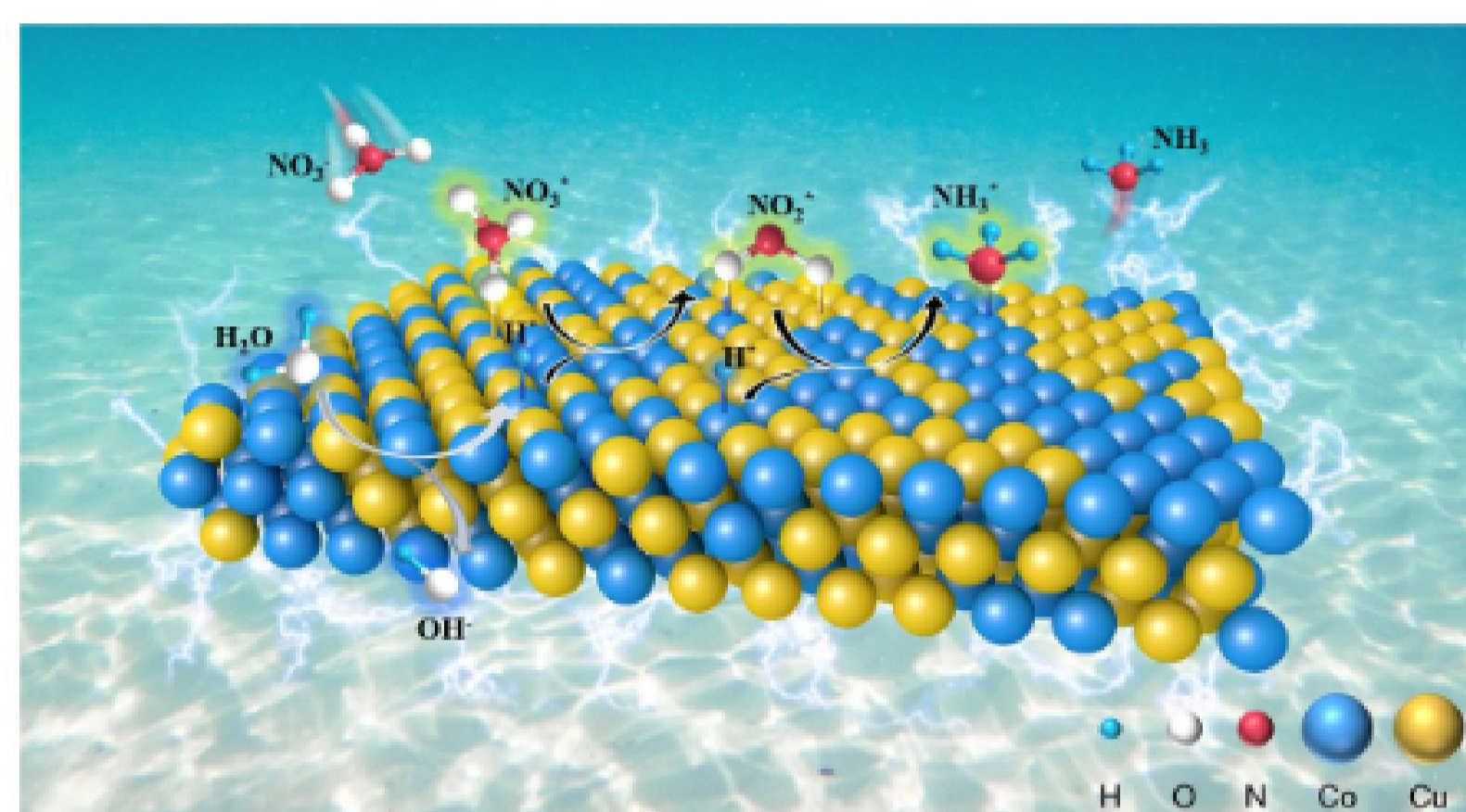


Fig. 1 Electrochemical reduction NO_3^- to NH_3 on enzyme-inspired CuCo nanosheet

图1 酶启发式CuCo纳米片电催化还原硝酸根产氨

当前, 广泛存在于工业和农业废水中的硝酸根离子 (NO_3^-), 对人类健康和环境生态平衡造成了严重的威胁。特别是其不完全转化生成的亚硝酸盐 (NO_2^-), 是一种常见的致癌物质, 也是引起肝损伤和高铁血红蛋白血症的主要元凶。另一方面, 氨 (NH_3) 作为重要的工业原料, 其主要的工业合成路线 (哈伯法) 严重依赖化石能源, 且年碳排放量约占全球年总碳排放总量的1.2%。利用可再生能源将 NO_3^- 电催化还原为 NH_3 , 被认为可同时实现环境污染治理与减少碳排放, 也是哈伯法路线可持续化的补充方法。因此, 如何设计和研发具有高活性和高选择性的新型电催化剂以实现电催化还原 NO_3^- 合成氨的大规模应用, 受到越来越多的关注。

针对上述问题, 研究团队受自然界中生物还原硝酸根启发, 即以Cu和Co元素分别模拟酶的吸附催化中心和质子提供中心, 设计制备了CuCo合金纳米片催化剂。该催化剂将电催化还原 NO_3^- 的电流密度提高到 1 A cm^{-2} 级别, 最高法拉第效率接近100%, 产氨速率达到 $960 \text{ mmol g}_{\text{cat}}^{-1} \text{ h}^{-1}$, 显著高于工业哈伯法合成氨的产率 ($200 \text{ mmol g}_{\text{cat}}^{-1} \text{ h}^{-1}$)。同时, 对 $100 \text{ mmol L}^{-1} \text{ NO}_3^-$ 的废液处理10h后, NO_3^- 去除率达99.5%, NO_3^- 残留浓度低于世界卫生组织对饮用水的限定标准。此外, 研究团队利用电化学原位傅里叶变换红外光谱 (FTIR) 和壳层隔绝纳米粒子增强拉曼光谱 (SHINERS), 揭示了Cu和Co之间的协同作用, 且Co位点通过吸附的*H促进 NO_3^- 加氢还原为 NH_3 , 结合密度泛函理论 (DFT) 计算, 可以确认合适的*H和* NO_3^- 的覆盖率是提高产氨选择性和产氨速率的关键因素。该研究工作为阐明电催化 NO_3^- 还原合成 NH_3 的反应途径和机理做出了重要贡献, 也为后续催化剂的优化和放大提供了重要的基础数据。

我院2020级硕士研究生方佳仪为文章第一作者, 博士后赵匡民、博士生李广和胡圣男参与了部分实验。该研究在孙世刚教授和楼耀尹博士后 (现为苏州大学副教授) 的共同指导下完成, 英国卡迪夫大学的黄小洋博士和Ouardia Akdim博士也对这项工作做出了贡献。研究工作得到国家自然科学基金委 (批准号: 22002131) 和中国博士后科学基金委 (批准号: 2020M671963) 的资助。北京同步辐射光源为研究体系的同步辐射表征提供了支持与帮助。

论文链接: <https://doi.org/10.1038/s41467-022-35533-6>

上一条: “以毒攻毒”: 硫醇修饰实现... 下一条: 基于单细胞转录组测序图谱的...