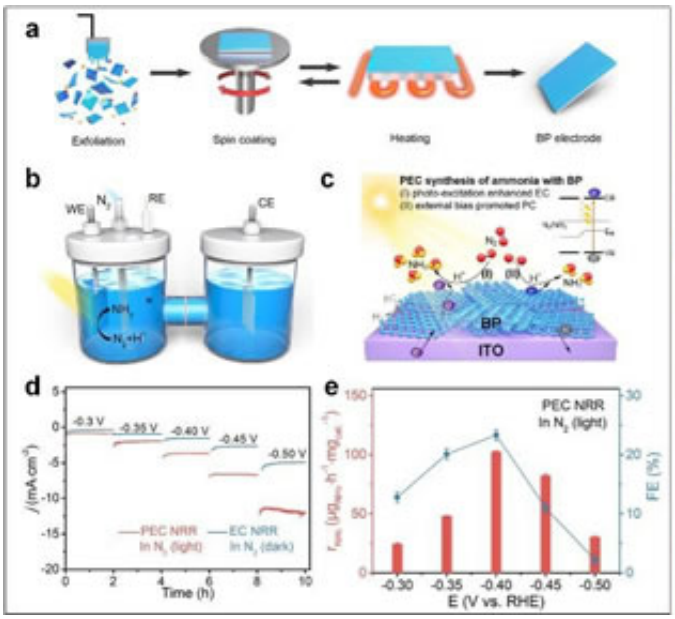
深圳先进院成功开发面向高效固氮的黑磷光电极

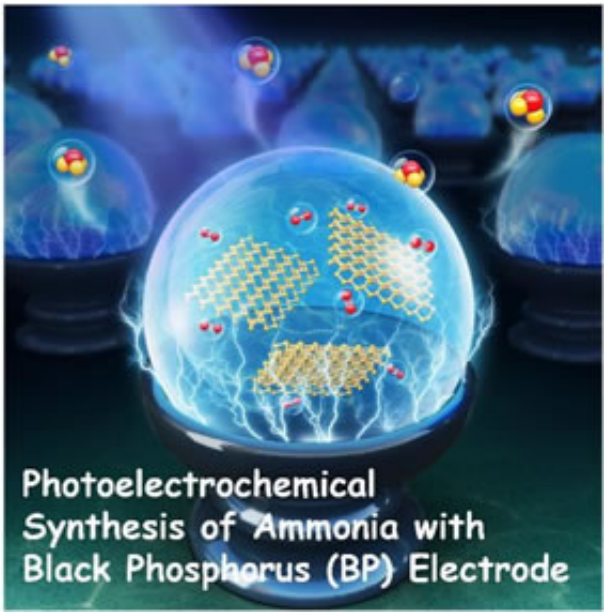
近日，中国科学院深圳先进技术研究院材料所（筹）材料界面研究中心王佳宏、喻学锋等在常温常压高效固氮领域取得新进展，开发出具有优异的光电协同固氮合成氨性能的黑磷光电极。相关工作以Photoelectrochemical Synthesis of Ammonia with Black Phosphorus（《黑磷的光电化学合成氨研究》）为题发表于《先进功能材料》（Advanced Function Materials，DOI:10.1002/adfm.202002731），并被选为杂志封底故事。副研究员王佳宏和研究员喻学锋是该文通讯作者，助理研究员刘丹妮是该文第一作者。

氨是工农业生产中重要的化学原料，也是一种新型的富氢能源载体。目前氨的合成主要通过Haber-Bosch法在高温高压下(350-550°C,150-350 atm)进行，耗能较高并伴随着大量的温室气体排放。因此，绿色环保的以氮气和水为原料的常温常压固氮合成氨技术获得了广泛关注。融合了电催化和光催化过程的光电化学技术则为常温常压固氮合成氨提供一个更加高效的技术平台。黑磷作为一种二维直接带隙半导体，具有光响应范围广、载流子迁移率高、边缘活性位点丰富和氢吸附较弱等众多优点，在光电协同固氮合成氨方面展现出极大的潜力。

在本项研究中，课题组将电化学插层剥离得到的高质量黑磷微片通过一种新型的旋涂-快蒸技术在导电基底上组装成固氮光电极。在氮气饱和的酸性电解液中，黑磷表现出较好的电催化固氮合成氨性能（24.1 μg/h/mgcat，法拉第效率5.5%）。而在光电协同作用下，黑磷光电极的产氨率和法拉第效率均有大幅提升，分别达到102.4 μg/h/mgcat和23.3%，是同类非金属固氮催化剂中获得的最好纪录。研究团队在进一步研究中，通过定量同位素标记验证了氮元素来源、排除了杂质干扰；通过光电化学Mott-Schottky谱研究证明光激发提升了黑磷光电极的平带电位、促进了电极表面的电化学过程；此外，反应系统中的阴极电场和惰性环境也有助于界面电荷分离，能有效保护黑磷光电极免于氧化，使其在光电固氮过程中呈现出良好的稳定性。

该研究工作揭示了黑磷优异的光电固氮性能及机理，拓展了黑磷在异相催化领域的应用；光电协同催化呈现的一加一大于二的效果也为常温常压固氮合成氨的发展提供了新思路。该研究工作得到国家自然科学基金、中科院青年创新促进会、中科院前沿科学重点研究计划等的支持。





左图：(a) 黑磷光电极制备流程示意图，(b) 常温常压光电固氮装置示意图，(c) 黑磷光电极光电固氮原理示意图，(d) 不同电位下电催化和光电催化电流密度图，(e) 黑磷光电固氮性能数据图。右图：黑磷光电极固氮过程示意图。

原文地址：http://www.china-nengyuan.com/tech/155919.html