

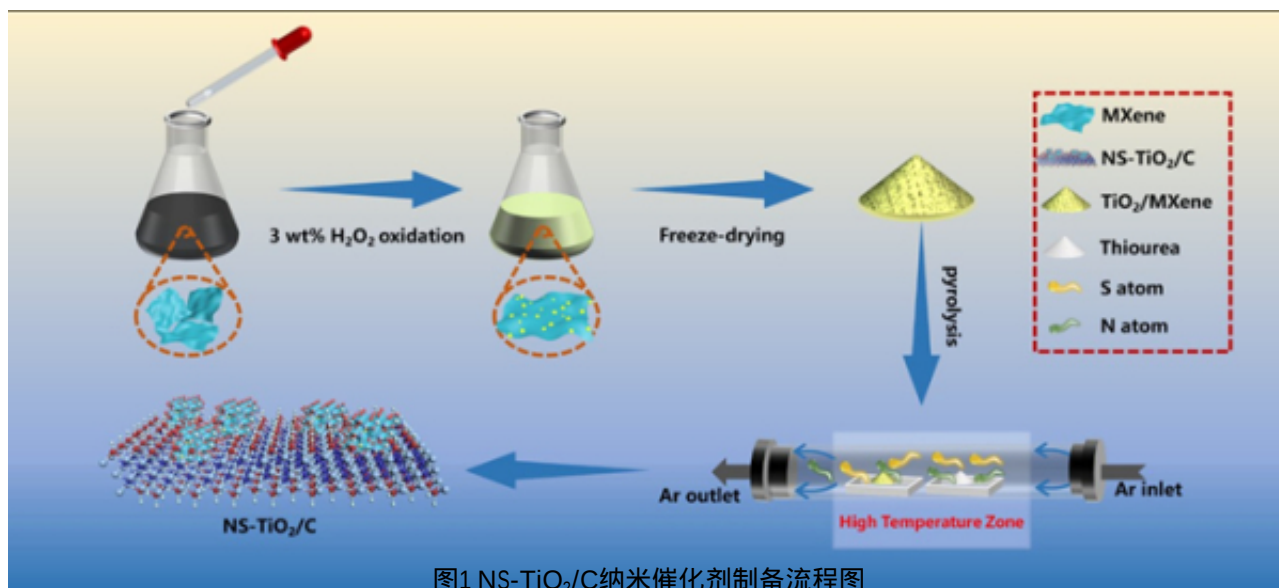
青岛能源所开发双阴离子取代策略调节Ti氧化态和氧空位提升电催化氮还原活性

NH_3 作为一种重要的化工原料，因其具有储存转运方便、氢含量高等优势，是一种潜在的储氢化学品。开发温和条件下电催化氮还原合成氨技术路线有助于解决传统Haber-Bosch法存在对化石资源依赖度大、高能耗、高 CO_2 排放等问题。 TiO_2 因具有储量丰富、无毒、结构可调、合成简便，以及对惰性 N_2 分子活化能力强等优势，近年来被广泛研究并用于电催化氮还原反应。但是， TiO_2 带隙较宽，导电性差，不利于电催化反应中的电子转移过程，阻碍了 N_2 分子的活化过程。因此，开发高活性、高选择性 TiO_2 基催化剂用于电催化氮还原反应具有重要的研究意义。

此前，中国科学院青岛生物能源与过程研究所研究员杨勇团队通过金属阳离子诱导MXene凝胶化-硫化策略，制备了硫化钴纳米颗粒限域于硫掺杂MXene 3D多孔气凝胶纳米异质结构催化剂（Small 2021, 2103305），实现了温和条件下电化学氮还原反应高效合成氨。基于对MXene物化结构性质的深入认识，利用其在水溶液易于氧化的特点，研究人员通过预氧化—高温热解和双阴离子取代策略，开发了Ti元素价态可调以及富含氧空位 TiO_2 基纳米杂化结构催化剂NS- TiO_2 /C，实现了温和条件下高效电催化氮还原合成氨反应（产氨速率： $19.97 \mu\text{g h}^{-1}\text{mg}^{-1}$

N_2 中同时形成间隙和取代的Ti-S和Ti-N键，有效地调节 TiO_2 纳米颗粒中 Ti^{3+} 和氧空位缺陷的浓度，且两者通过协同作用，促进了 N_2 分子的吸附和活化，加快了界面处电子传递过程，有效降低了反应决速步的能垒，从而提升了电催化氮还原合成氨效率。该工作通过调节活性位点氧化态以实现有效的电催化，为开发高效的纳米催化剂提供了新思路。相关研究成果近日发表在Small上。

该研究工作得到了国家自然科学基金、山东省自然科学基金、山东省人才基金等项目的支持。



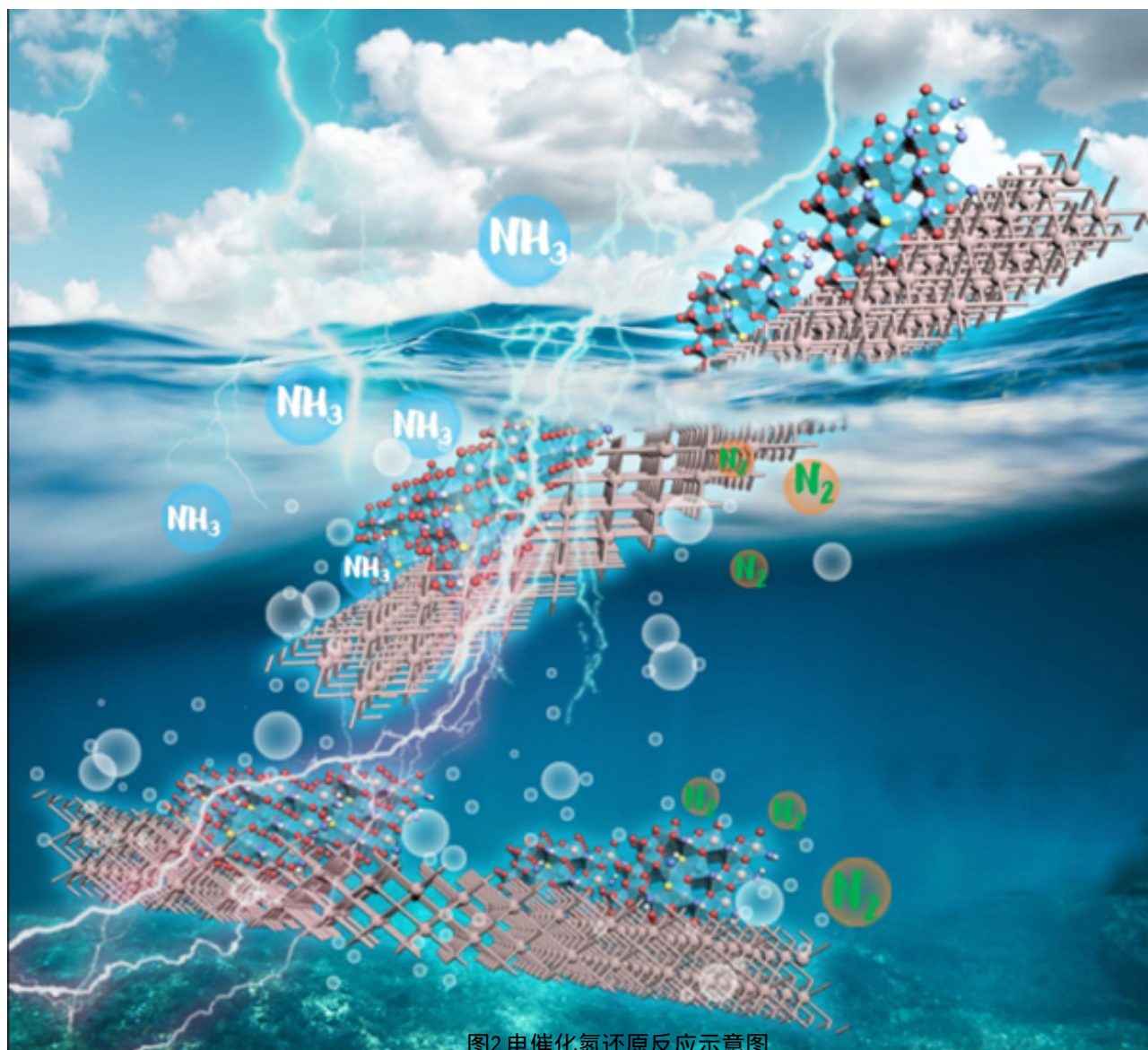


图2 电催化氮还原反应示意图

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/182928.html>