



新闻动态

科技新闻

通知公告

支部活动

学习园地

信息公开

科技新闻

当前位置: 首页 | 新闻动态 | 科技新闻

中国科大发现铜多面体界面催化C-C电化学耦联的优越性

来源: 科技部 发布时间: 2022-01-14 浏览次数: 164

电催化二氧化碳还原(CO₂RR)是二氧化碳资源化利用的有效手段,为实现碳达峰与碳中和目标提供了一种有潜力的途径。近年来,随着对CO₂RR研究的深入,通过催化转化二氧化碳制备能量密度高、应用前景广阔的多碳燃料(如乙烯、乙醇等)取得很大进展。然而,二氧化碳转化为多碳燃料需经历动力学缓慢的C-C耦联过程。因此,设计并发展能高效促进C-C电化学耦联催化剂对二氧化碳减排和变废为宝利用至关重要。

近日,中国科学技术大学高敏锐课题组控制合成了系列暴露不同Cu(100)和Cu(111)比例的铜催化剂,并发现Cu(100)/Cu(111)界面相比于单一的晶面展现显著地催化C-C电化学耦联优越性(图1)。相关成果近日以“Identification of Cu(100)/Cu(111) Interfaces as Superior Active Sites for CO Dimerization During CO₂ Electroreduction”为题发表于《美国化学会志》上(*J. Am. Chem. Soc.* 2022, 144, 1, 259–269)。论文的共同第一作者为中国科大博士研究生吴志征、张晓隆和牛壮壮。

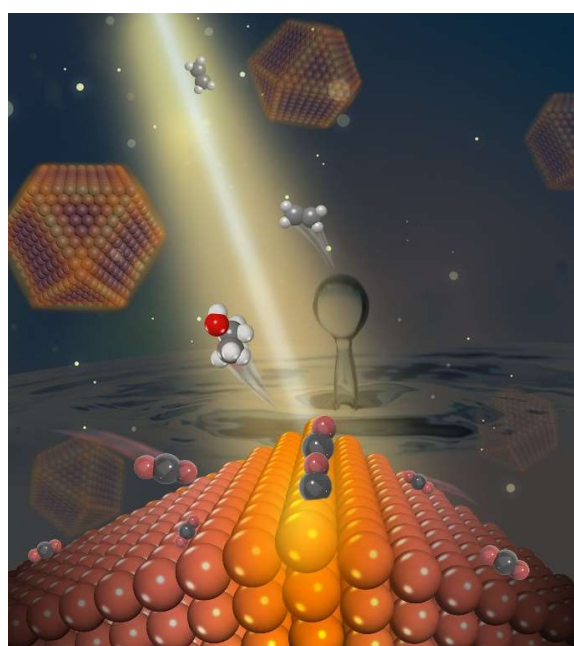


图1. Cu(100)/Cu(111)展现C-C耦联催化优越性示意图。

电化学测试表明,在电流密度为100 ~ 400 mA cm⁻²时,与其它铜催化剂相比,具有最多Cu(100)/Cu(111)界面的OD-Cu-III催化剂更有利于催化二氧化碳到多碳产物的转化(图2)。例如,在300 mA cm⁻²的电流密度下,该催化剂展现了74.9±1.7%的多碳产物选择性。研究人员发现,多碳产物的选择性与Cu(100)/Cu(111)界面的长度呈现线性相关,证明该界面为催化C-C耦联的活性位点。

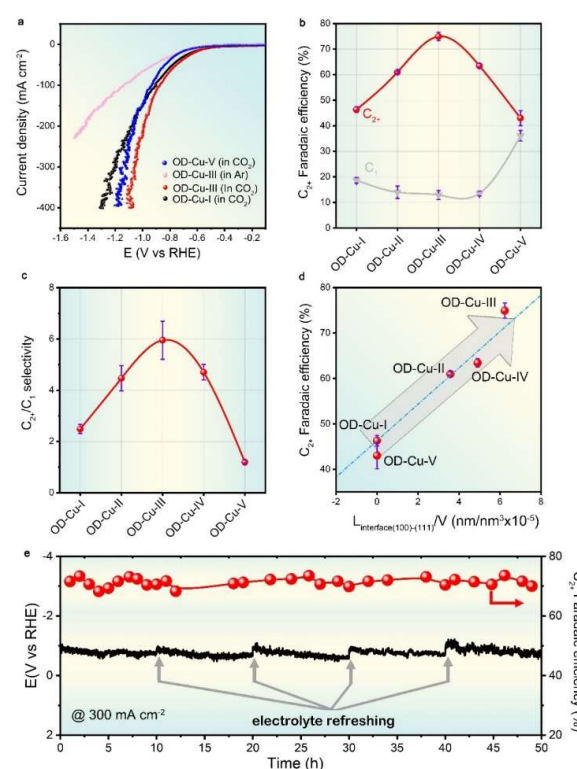


图2. 不同铜基催化剂的CO₂RR性能评价。

研究人员发现,在Cu(100)/Cu(111)界面处,其功函更低,有利于更快的电子转移。原位拉曼和红外实验证明,Cu(100)/Cu(111)界面处能更好吸附*CO中间体,展现更强的C-C耦联能力。理论计算进一步表明Cu(100)/Cu(111)界面处电子结构被优化,促进了C-C耦联动力学(图3)。该项研究发现了铜原子排列变化形成的界面结构能更高效催化C-C耦联,降低多碳产物形成过程中的关键步骤能垒,其对二氧化碳制备多碳燃料的电化学升级利用具有重要的意义。

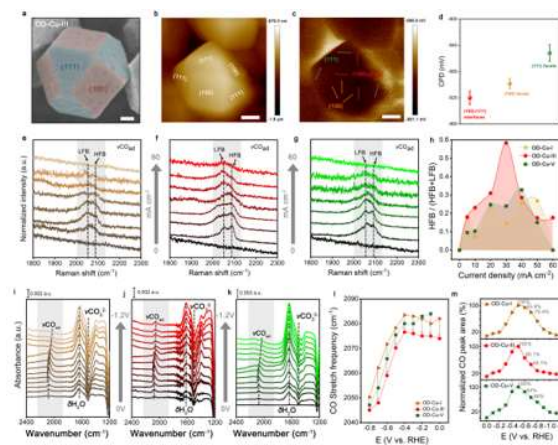


图3.KPFM和原位谱学研究。

相关研究受到国家自然科学基金委、国家重点研发计划、安徽省重点研究与开发计划等项目的资助。

论文链接: <https://doi.org/10.1021/jacs.1c09508>

(微尺度物质科学国家研究中心、科技部)