

大连化物所等提出研究CO₂电催化还原机理和活性位的新方法

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/10331.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

近日，中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室理论催化创新特区研究组研究员肖建平团队，与天津大学教授张兵团队合作，提出一种用反应相图方法研究在不同活性点位上CO₂电催化还原机理和选择性的新策略。

电催化CO₂

RR可将温室气体二氧化碳和可持续的电能转化为有用的化学制品或燃料，在能源环境领域具有重要意义，产物的选择性却难以得到提高。研究人员通过原位电化学方法合成了一种碱式碳酸铅催化剂[Pb₃(CO₃)₂(OH)₂]，可达到90%以上的甲酸选择性，但反应机理和反应活性位点有待进一步研究确定。

研究团队基于密度泛函理论计算，建立了碱式碳酸铅催化剂模型。根据催化剂可能暴露的表面不同，以及表面是否含有阴离子空位缺陷，可得到6种可能的反应活性位点。计算发现，在碱式碳酸铅的不同位点上，反应中间产物的吸附能存在很好的关联性。由此以*HCOO的吸附能为描述符建立一维反应相图，发现CO₂还原到甲酸的活性具有双火山曲线的性质，即两个活性顶点。这是因为该反应存在两个可能的反应机理

，即*HCOO和

*COOH机理。进一步分析发

现，一种特殊的缺陷位同时具有高CO₂

还原活性和甲酸选择性，是反应的活性位点。此外，该团队研究计算了不同电压下这种位点上CO₂

还原的电化学能垒，并通过微观动力学模型估算了单个位点上的电荷转移速率。经比较，实验测得的产甲酸电流密度与理论计算的电荷转移速率呈很好的线性关系，进一步验证了反应机理和反应活性位点的正确性。该基于描述符的方法可推广到其他多机理、多活性位点的反应体系中，为研究反应机理和活性位点对产物的选择性提供了新思路。

相关研究成果发表在《[自然-通讯](#)》（*Nature Communications*

）上。研究工作得到国家自然科学基金、中科院战略性先导科技专项（B类）“功能纳米系统的精准构筑原理与测量”、辽宁省“兴辽英才计划”等的支持。

研究团队单位：大连化学物理研究所

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发