

---

# 串联气体扩散电极实现CO<sub>2</sub>高选择性电催化

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/17603.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！*

## 串联气体扩散电极实现CO<sub>2</sub>高选择性电催化。

2022年3月3日，美国辛辛那提大学邬静杰教授联合劳伦斯伯克利国家实验室Alexis T. Bell 和 Adam Z. Weber教授团队合作在Nature Catalysis上发表了一篇题为Highly selective and productive reduction of carbon dioxide to multicarbon products via in situ CO management using segmented tandem electrodes的新研究。

不同于以往的大量研究集中在催化剂层面，此项工作聚焦串联气体扩散电极设计，结合实验和多物理场模拟优化了CO中间体浓度的时间和空间分布管理，从而实现电催化CO<sub>2</sub>到C<sub>2+</sub>产物的同步高选择性和高生产率。

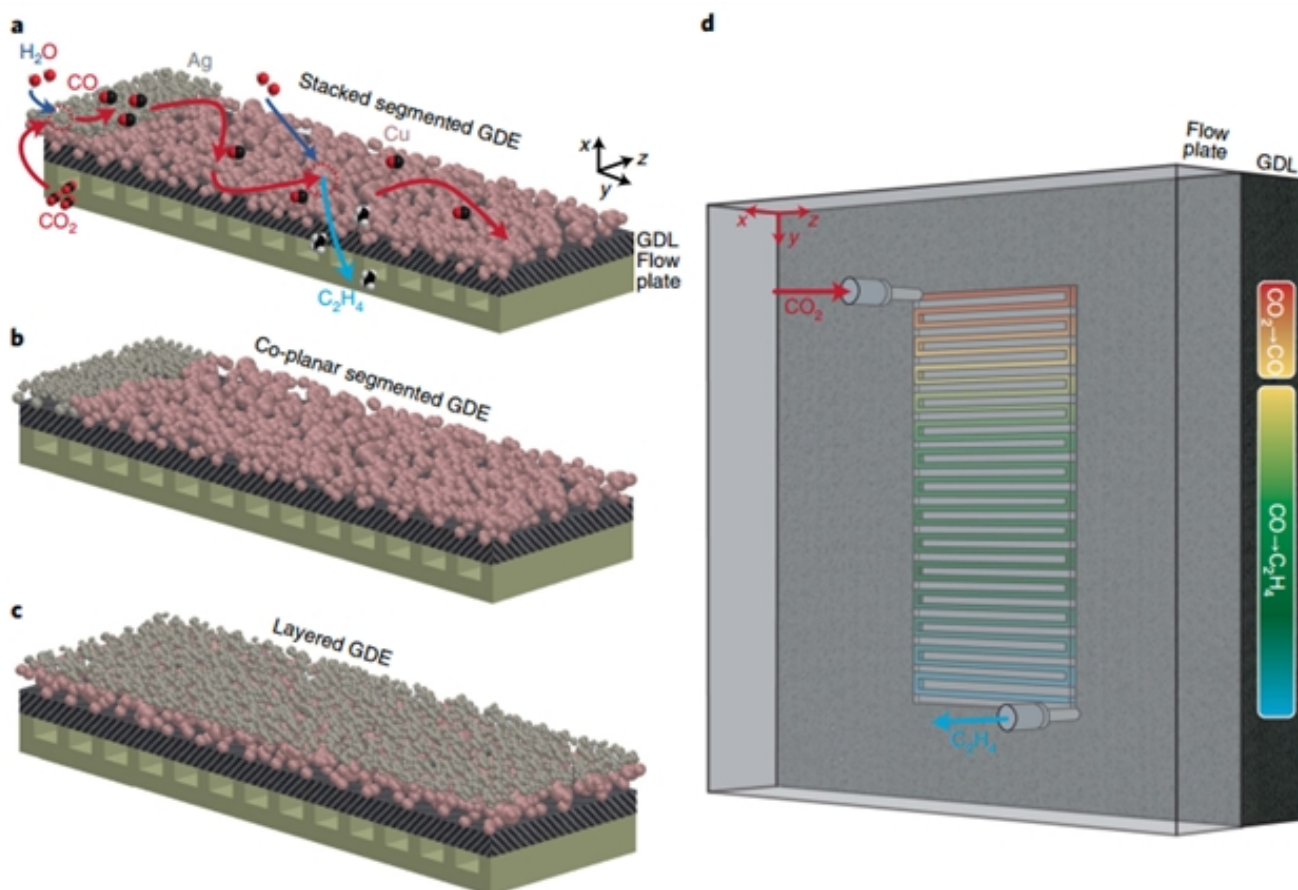
电化学二氧化碳还原为可持续生产有价值的化学品和燃料提供了一条有希望的途径。串联催化剂通过在互补活性位点上有序地实现CO<sub>2</sub>到CO和CO到多碳（C<sub>2+</sub>）产物转化，从而产生高C<sub>2+</sub>法拉第效率和产率。然而，先前的串联催化剂疏于对CO中间体浓度的空间分布管理，从而降低了C<sub>2+</sub>的法拉第效率。在这里，我们设计了分段气体扩散电极，其中位于流场入口处的CO选择性催化剂层片段延长了CO在随后的C<sub>2+</sub>选择性片段中的滞留时间，从而增加了转化率。这种设计通过增加铜催化剂层内的\*CO覆盖率和滞留时间，使Cu/Ag分段气体扩散电极的CO利用率和C<sub>2+</sub>电流密度与纯铜相比明显增加。最后，我们开发了一种Cu/Fe-N-C分段气体扩散电极，C<sub>2+</sub>偏电流密度超过1 A cm<sup>-2</sup>，同时C<sub>2+</sub>法拉第效率达到90%。这些结果证明了CO传输的重要性，并建立了在串联CO<sub>2</sub>催化中提高C<sub>2+</sub>法拉第效率和偏电流密度的设计原则。

利用可再生能源将CO<sub>2</sub>电化学还原（CO<sub>2</sub>R）为高价值化学品，为减少CO<sub>2</sub>排放，同时生产燃料和化学品提供了一条可持续的途径。在CO<sub>2</sub>R的产物中，多碳（C<sub>2+</sub>）产品由于其作为化学原料的工业价值而成为最理想的产物。在CO<sub>2</sub>R的催化剂中，只有含铜材料被广泛证明有产生C<sub>2+</sub>产物的能力，并且已经有大量的研究旨在开发能够提升C<sub>2+</sub>生成速率的催化剂。在Cu上的CO<sub>2</sub>到C<sub>2+</sub>产物的反应中，表面吸附的一氧化碳（\*CO）的吸附能和\*CO表面覆盖率（θ<sub>\*CO</sub>）决定了反应决速步骤的反应动力学，从而决定了C<sub>2+</sub>产物的偏电流密度（j<sub>C2+</sub>）。因此，很多工作试图增强\*CO对Cu的吸附和增加θ<sub>\*CO</sub>以提升CO向C<sub>2+</sub>的转化率。因为θ<sub>\*CO</sub>由催化剂附近的CO浓度决定，Cu上C<sub>2+</sub>产物的产率可以通过增加局部CO浓度来提高。特别是在有气体扩散电极的电解池中，CO分压的增加已被证明直接导致C<sub>2+</sub>产量的提高。

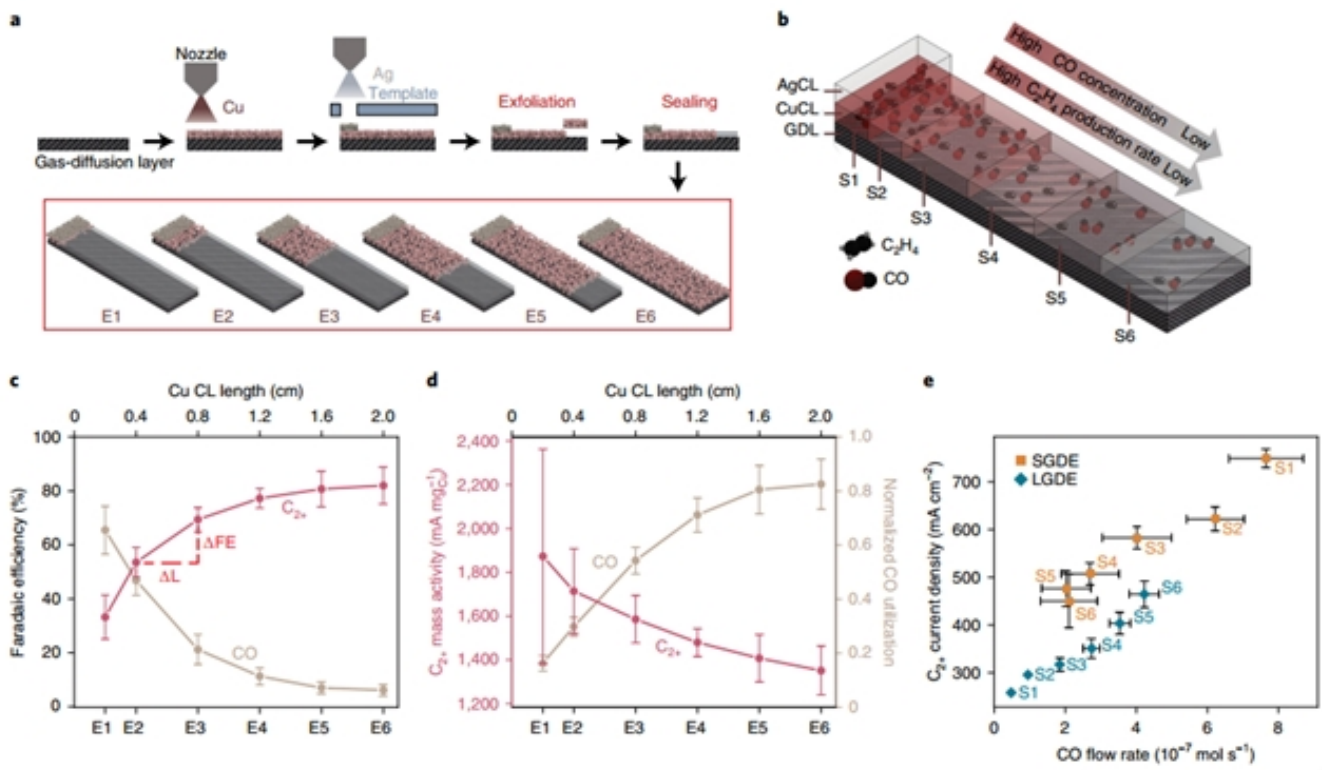
串联CO<sub>2</sub>R系统通过在两个互补的活性位点上集成了CO<sub>2</sub>到CO和CO到C<sub>2+</sub>的两个连续步骤来增加θ<sub>\*CO</sub>。在这些体系中，一种催化剂材料选择性地将CO<sub>2</sub>转化为CO，以提供一种原位CO源，从而增加θ<sub>\*CO</sub>，另一种含Cu催化剂进行C-C偶联。因为θ<sub>\*CO</sub>通常是限制因素，通过增加CO

生成速率来提升局部CO分压，可以实现更高的 $j_{C2+}$ 。但是，如果CO生成速率超过C-C偶联速率，则CO利用率和 $C2+$ 法拉第效率会降低。这要求权衡CO产生速率，以保持高 $j_{C2+}$ 的同时最大化 $C2+$ 法拉第效率。

我们先前的研究已经证明了分层气体扩散电极结构的价值。在这种分层气体扩散电极结构中，CO选择性催化剂层覆盖在 $C2+$ 选择性Cu催化剂层之上。分层气体扩散电极的灵感来自于，在具有正反应级数的反应中，平推流反应器（PFR）比连续搅拌釜式反应器（CSTR）能实现更高的反应物转化率。这种转化率的提高是由于反应器内反应物浓度的增加。通过创建层状催化剂层结构，可以将CO集中在Cu催化剂层/电解质界面处，并沿着气体扩散电极的厚度方向逐渐进一步还原CO，来模仿PFR中的反应物浓度分布。这种层状结构提升了Cu催化剂层中的局部 $^*CO$ ，并且与纯Cu气体扩散电极相比，将 $j_{C2+}$ 提高了1.2倍。然而，分层气体扩散电极仅仅调控了气体扩散电极厚度方向上微米尺度的CO分压分布，然而却没有调控气体扩散电极长度方向上至少厘米尺度上的CO分压分布。因此， $j_{C2+}$ 还有很大的进一步提升的空间。



在此项工作中，我们提出了一种分段气体扩散电极结构，实现 $CO_2$ 到 $C2+$ 产物的高选择性转化。分段气体扩散电极在靠近流场入口端集成了一个CO选择性催化剂层片段，在电极的下端集成了一个Cu催化剂层段，从而实现了 $^*CO$ 在沿电极长度的平面内的空间管理。CO分压在入口区域急剧上升，同时，CO滞留时间最大化，这些调控同时提升了 $C2+$ 产物法拉第效率和 $j_{C2+}$ 。 $CO_2$ 还原性能沿电极长度方向的映射和多物理场建模结果进一步证明CO分压与 $j_{C2+}$ 之间的紧密相关性，表明 $j_{C2+}$ 在流场入口区域达到顶峰，并随着CO分压的消耗而逐渐衰减。



基于以上的理解，最后我们展示了一种由Cu和铁单原子（Fe-N-C）催化剂层片段组成的分段气体扩散电极，能够在超过1 A cm<sup>-2</sup>的jC<sub>2</sub><sup>+</sup>下实现90%的C<sub>2</sub><sup>+</sup>法拉第效率。这项工作提供了对串联电极设计原理的深入了解，以同时提高C<sub>2</sub><sup>+</sup>产物的选择性和生产率。

---

(来源：科学网)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41929-022-00751-0>

作者：邬静杰等 来源：《自然-催化》

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