

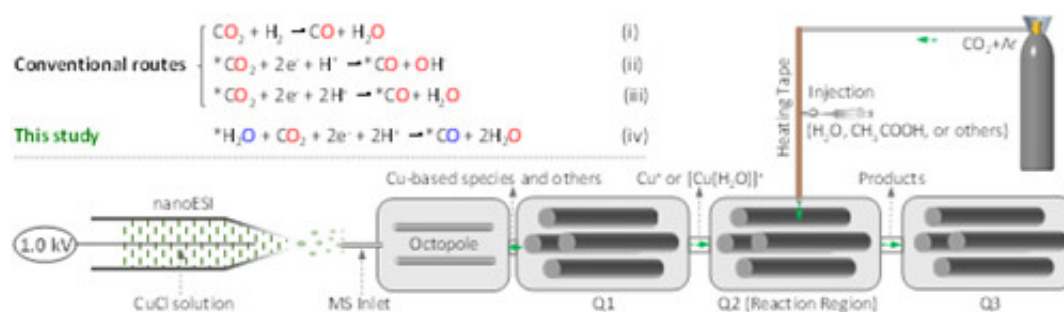
# 二氧化碳还原反应机理研究获突破

作者：writer 来源：爱科学

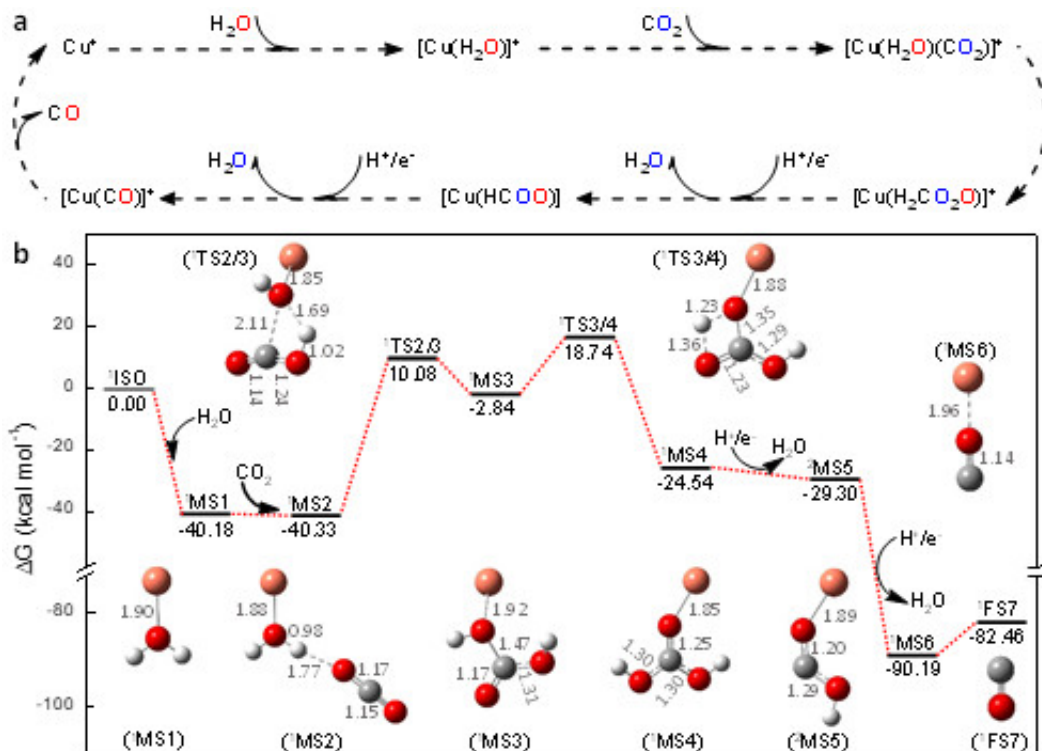
本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/18312.html>

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！

二氧化碳还原反应机理研究获突破。



CO<sub>2</sub>还原和反应产物监测所使用仪器装置示意图，其中左上角为CO<sub>2</sub>经不同路径生成CO反应方程式，\*表示催化剂。



在Cu(I)催化剂和水存在条件下，CO<sub>2</sub>还原为CO反应机理示意图：(a)通过实验观察捕获中间体和产物推演出CO<sub>2</sub>还原为CO反应过程示意图；(b)通过密度泛函理论计算得出单重态条件下，CO<sub>2</sub>转化为CO反应过程经历中间体的能垒变化图。论文作者供图

二氧化碳等温室气体排放量逐年增多是引起全球气候变暖最主要的因素之一，因此有效减排和综合利用二氧化碳具有重要的战略与现实意义。将二氧化碳直接转化为高附加值的化学品长期以来是催化领域中一大挑战，而从分子水平深入了解二氧化碳还原过程对于提高其转化率和选择性极其关键。尽管现今已发展了许多光谱学方法和理论计算模型用于二氧化碳转化过程的研究，但是仍然缺乏充足的实验证据来阐述其反应机理，从而限制了二氧化碳转化效率的提高。

近日，西安石油大学化学化工学院张智平教授团队在二氧化碳还原反应机理研究方面取得了重要进展，相关工作发表在《自然-通讯》上。

张智平介绍，在该研究工作中，他们通过对商品仪器的改造，巧妙地将三重四极质谱仪第一级四极杆作为特定催化剂离子的实时分离器、第二级四极杆作为二氧化碳还原过程的微反应器、第三级四极杆将反应涉及的中间体和产物在线传递到检测器中，采用同位素标记化合物作为反应的示踪剂，通过对质谱仪气路系统的特殊设计，直接将常压电离源电离的催化剂铜离子及其配合物离子分离出来与二氧化碳气体在线相互作用，通过对各种实验条件下反应中间体及产物的在线捕获及同位素对比实验，详细阐释了二氧化碳还原为一氧化碳的反应机理。

按照传统观点，二氧化碳还原转化为一氧化碳中的O原子来自二氧化碳。在该研究中，论文作者们发现还原反应生成一氧化碳中的O原子来自反应体系催化剂表面的配位水分子，而非二氧化碳本身。该结论不仅适用于物质在线反应过程，也适用于实际二氧化碳的电催化还原反应和工业化水煤气逆反应过程，说明该发现具有一定的普适性。同时发现相比于金属催化剂Cu<sup>+</sup>，当[Cu(H<sub>2</sub>

---

O)]+作为催化剂时，二氧化碳还原为一氧化碳的反应效率可提高两个数量级。

据了解，为了深入探究该反应过程，张智平教授团队通过改造质谱仪对反应中间体的捕获、同位素对比实验和密度泛函理论的计算，详细阐述了二氧化碳在[Cu(H<sub>2</sub>O)]+催化作用下生成一氧化碳的机制。

该研究领域相关专家认为，该工作不仅为深入阐述二氧化碳还原机理提供了方法学基础，也为详细了解水在二氧化碳还原过程中的作用提供了着眼点。

据悉，该项研究工作得到了国家自然科学基金、陕西省杰出青年基金、陕西高校青年创新团队等项目的资助。（来源：中国科学报 张行勇 赵喜军）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41467-022-30289-5>

版权声明：凡本网注明来源：中国科学报、科学网、科学新闻杂志的所有作品，网站转载，请在正文上方注明来源和作者，且不得对内容作实质性改动；微信公众号、头条号等新媒体平台，转载请联系授权。邮箱：shouquan@stimes.cn。

作者：张智平等 来源：《自然—通讯》

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