

---

# 酸性CO<sub>2</sub>RR：高单程碳利用率生产多碳产物

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/18712.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！*

**酸性CO<sub>2</sub>RR：高单程碳利用率生产多碳产物。**

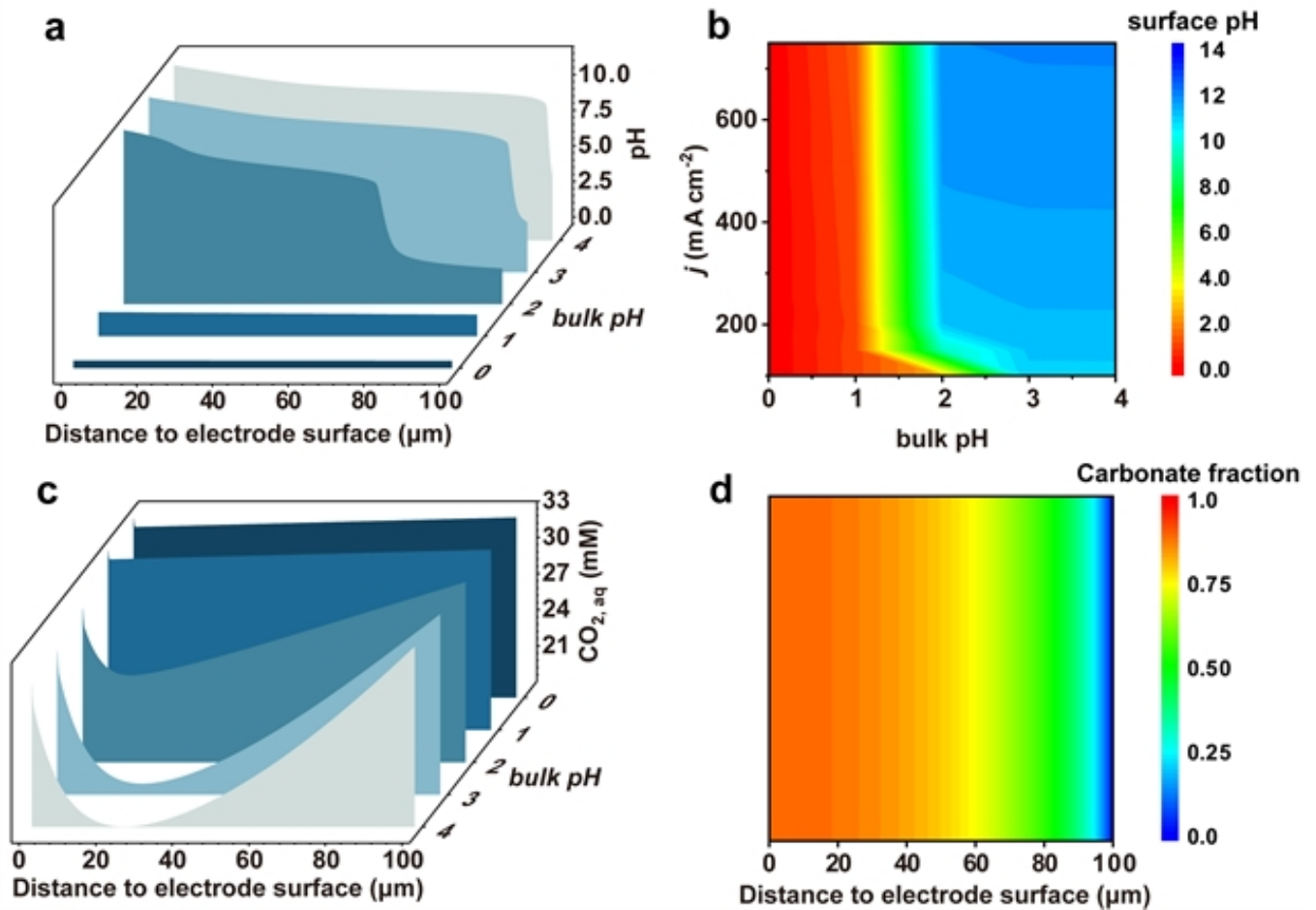
近日，香港中文大学王莹教授和多伦多大学Edward H.

Sargent教授通过界面工程和双金属催化剂优化的策略，在500 mA cm<sup>-2</sup>的电流密度下实现了高达89%的多碳产物法拉第效率与60%的单程碳利用率。2022年6月9日，相关成果以High Carbon Utilization in CO<sub>2</sub> Reduction to Multi-Carbon Products in Acidic Media为题发表在Nature Catalysis上。

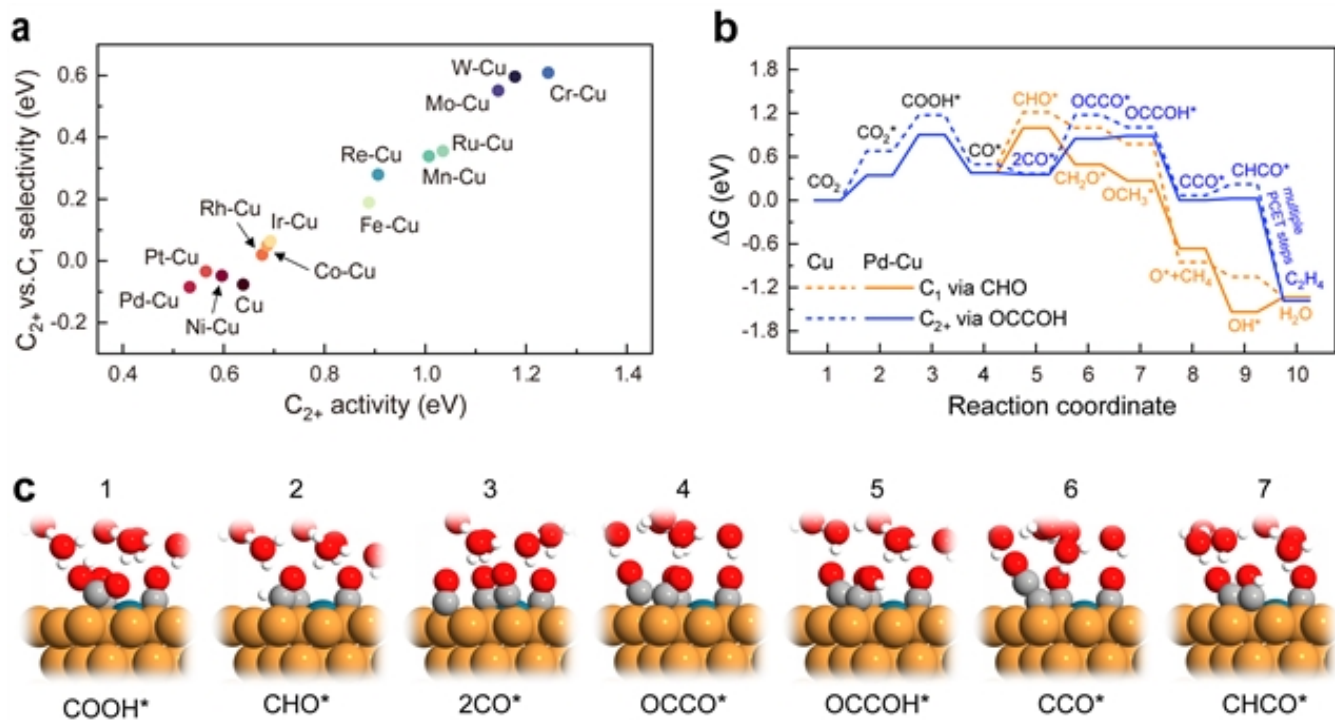
电化学CO<sub>2</sub>还原反应（CO<sub>2</sub>RR）利用可再生电能将CO<sub>2</sub>转换为乙烯、乙醇等具有高经济价值的多碳（C<sub>2+</sub>）产品，是当下颇具前景的CO<sub>2</sub>利用技术。然而，当前对多碳产物最具选择性与活性的CO<sub>2</sub>RR电解槽通常是在碱性或中性条件下进行，大量CO<sub>2</sub>与溶液中及电极表界面处的氢氧根（OH<sup>-</sup>）快速反应生成碳酸盐，导致其单程碳利用率极低，严重影响其实际应用价值。因此，如何实现高碳利用率，提高技术可行性，是当下常温电化学CO<sub>2</sub>还原技术面临的重大挑战。在酸性条件下进行CO<sub>2</sub>RR虽有望解决碳酸盐生成的问题，但该条件下的高质子浓度往往导致析氢反应占主导地位，限制了CO<sub>2</sub>RR到多碳产物的活性与选择性。

近日，王莹教授和Edward H. Sargent教授通过界面工程和双金属催化剂优化的策略，在500 mA cm<sup>-2</sup>的电流密度下实现了高达89%的多碳产物法拉第效率与60%的单程碳利用率。

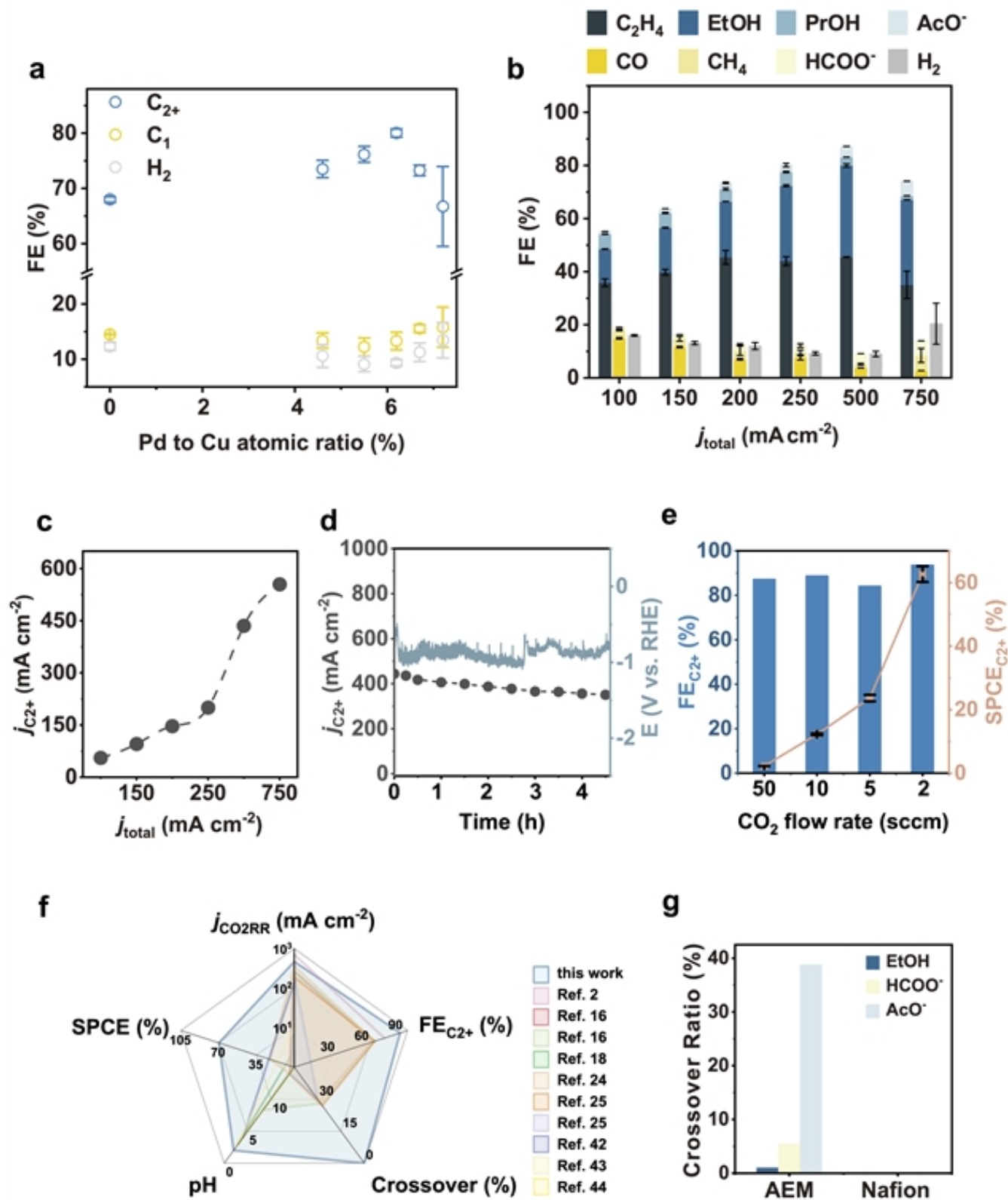
由于质子浓度对碳酸盐平衡和CO<sub>2</sub>RR中间体覆盖度具有决定性影响，因此作者首先通过COMSOL有限元仿真模拟，探究了电流密度及本体溶液pH值对电极界面质子浓度和CO<sub>2</sub>浓度的影响以同时优化反应选择性和碳利用率。在强酸条件下（pH = 0或1），电极界面H<sup>+</sup>浓度过高不利于多碳产物的生成；而在更高pH（pH = 3或4）及大电流密度条件下，其传质层内CO<sub>2</sub>浓度则过低。因此，基于大电流密度下（> 150 mA cm<sup>-2</sup>）局部CO<sub>2</sub>浓度与质子浓度的综合考量，pH=2被选择为下一步的实验条件。



此外，由于吸附质-吸附质相互作用，对  $\text{CO}^*$  具有强结合亲和力的金属会削弱  $\text{H}^*$  结合亲和力。因此，为寻求抑制竞争性析氢反应 (HER) 的途径，作者通过DFT计算对一系列具有强 $\text{CO}^*$ 吸附能力的铜基双金属催化剂进行筛选。结果显示Pd-Cu催化剂上  $\text{GOCCOH}^*$ 和  $\text{GOCCOH}^* - \text{GCHO}^*$ 均达到了最低值，表明Pd-Cu催化剂具有转化 $\text{CO}_2$ 为多碳产物的最佳活性与选择性。



基于以上探索，作者利用Galvanic Replacement Reaction在Cu/PTFE表面引入Pd作为电极，构筑了pH=2的酸性CO<sub>2</sub>RR体系。实验发现Pd的引入有效抑制了析氢反应并促进了多碳产物的生成，进一步的原位拉曼光谱研究显示Pd-Cu催化剂对CO\*的吸附增强从而促进表面C-C键生成。在500 mA cm<sup>-2</sup>的电流密度下实现了高达89%的多碳产物法拉第效率和60%的单程碳利用率，这为酸性CO<sub>2</sub>RR电解槽发展提供了重要的参考思路。



(来源：科学网)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41929-022-00788-1>

---

作者：王莹等 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](http://www.iikx.com)转发