
研究发现铜催化剂决速步受铜晶面影响

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/28016.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！

研究发现铜催化剂决速步受铜晶面影响。近日，中国科学技术大学教授高敏锐课题组发现，在二氧化碳电还原反应中，铜催化剂的决速步因晶面不同而表现出显著差异，即在铜（100）晶面，碳-碳键偶联是控制反应的决速步，而在铜（111）晶面，吸附的一氧化碳与水的质子化是决速步。利用主要暴露铜（100）晶面的催化剂，研究人员在中性介质中实现了72%的乙烯法拉第效率和工业级的部分电流密度，并稳定催化二氧化碳转化制乙烯超过100小时。相关成果日前发表于美国《国家科学院院刊》。

利用可再生电能将二氧化碳电化学转化制乙烯，在消除温室气体的同时，可实现高价值大宗化工产品乙烯的绿色合成，对于加快我国碳资源高值转化，实现双碳战略目标具有重要的推进作用。

然而，由于存在法拉第效率低、反应速率缓慢和机理复杂等问题，利用绿电还原二氧化碳制乙烯等多碳化学品仍面临严峻挑战。目前，二氧化碳到乙烯的反应路径仍存在争议，一个关键问题是碳-碳键偶联，还是吸附的一氧化碳与水的质子化是决速步仍无定论。阐明以上问题，成为二氧化碳电化学转化制乙烯进一步发展并最终走向产业化亟需解决的关键难题。

研究人员通过等离子体处理策略，在氧化铜纳米片上营造氧空位。密度泛函理论计算预测，氧空位的存在有利于一氧化碳的吸附，促进催化剂还原过程中铜（100）的形成。没有氧空位的氧化铜在还原过程中则倾向生成能量较低的铜（111）晶面。扫描电镜显示，还原处理后的样品保留母体催化剂形貌，高分辨透射电镜及电化学氢氧根吸附实验表明，所致得的两种催化剂表面分别以铜（100）和铜（111）为主。

研究人员在流动池与膜电极体系中对催化剂进行了性能评价，结果表明，在500毫安每平方厘米条件下，铜（100）为主要暴露晶面的催化剂的乙烯法拉第效率达72%，远高于铜（111）为优势晶面的催化剂。

原位光谱及电动力学实验结果显示，在具有不同主体暴露晶面的样品上乙烯的生成具有不同的反应路径。在铜（100）为优势晶面的催化剂上，一氧化碳覆盖度更高、吸附更强且以顶式吸附为主，乙烯转化的决速步是两个吸附的一氧化碳的偶联过程；而在主要暴露晶面为铜（111）的催化剂上，乙烯转化的决速步发生的是吸附的一氧化碳与水分子的质子耦合过程。密度泛函理论计算结果同样佐证了这一实验结果。（来源：中国科学报王敏）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1073/pnas.2400546121>

作者：高敏锐等 来源：《国家科学院院刊》

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