

科学家提出“活性锁”新机制实现高效电还原CO₂制多碳醇

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/32230.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！

科学家提出“活性锁”新机制实现高效电还原CO₂制多碳醇。

2025年3月13日，中国科学院化学研究所韩布兴院士、朱庆宫研究员团队，在Nature Synthesis期刊上发表题为 Electrochemical CO₂ hydrogenation to C₂+ alcohols catalysed by Pr-Cu oxide heterointerfaces的研究成果。

该项成果采用稀土-铜异质界面构筑不对称活性位点，实现了电流密度达700mA cm⁻²时，C₂+醇法拉第效率（FE）高达71.3%，C₂+醇/乙烯比例达12:1。首次发现了活性锁调控C₂+醇反应路径的新机制。

论文通讯作者是韩布兴院士、朱庆宫研究员，第一作者是刘霁媛博士。

C₂+醇（如乙醇、正丙醇）因其高能量密度和与现有能源基础设施的兼容性备受关注。利用可再生能源电力将二氧化碳（CO₂）高效转化为C₂+醇备受关注。然而，传统铜基催化剂易促进C-O键断裂生成乙烯，导致乙醇选择性仅为乙烯的1/2-1/3。这是由于在C₂+产物中，乙醇和乙烯同为12电子还原产物，共享C-C偶联步骤及中间体。但乙醇分子结构更饱和，中间体在纯铜表面难以稳定，且需保留中间体的C-O键，存在C-C偶联与C-O键保留的竞争。目前存在的科学难题是，如何突破C-O键保留与反应路径调控瓶颈，提高C₂+醇的选择性。

基于上述挑战，韩布兴院士、朱庆宫研究员团队采用分步沉淀和分步煅烧策略，构建了Pr-Cu氧化物异质界面（Pr₆O₁₁-Cu-SS）。其中，Pr³⁺/Pr⁴⁺动态氧化还原对通过Pr-O-Cu化学键构筑活性锁，在反应中实时稳定Cu^{δ+}/Cu⁰混合价态（Cu平均价态+0.52），形成自修复异质界面。Pr₆O₁₁-Cu-SS对C₂+醇表现优异的产率和法拉第效率（FE）。在相对于可逆氢电极（RHE）为-1.08V时，C₂+醇类物质的电流密度和FE分别达到700mA cm⁻²和71.3%，在此条件下，乙醇和正丙醇的FE分别达到58.6%和12.7%，C₂+醇类物质与C₂H₄的比例高达12:1。

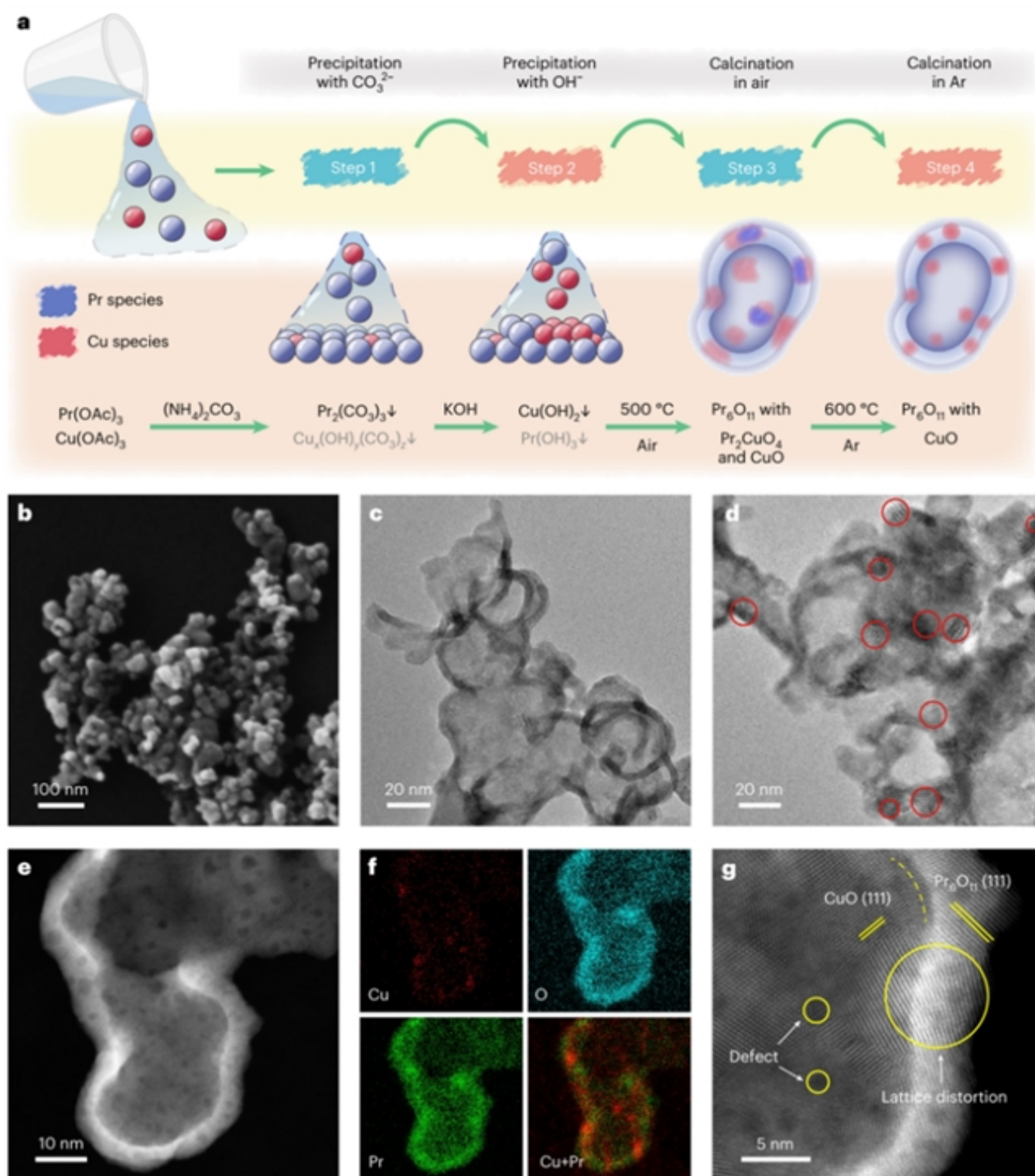


图1：Pr₆O₁₁-Cu-SS催化剂的合成及电子显微镜分析。

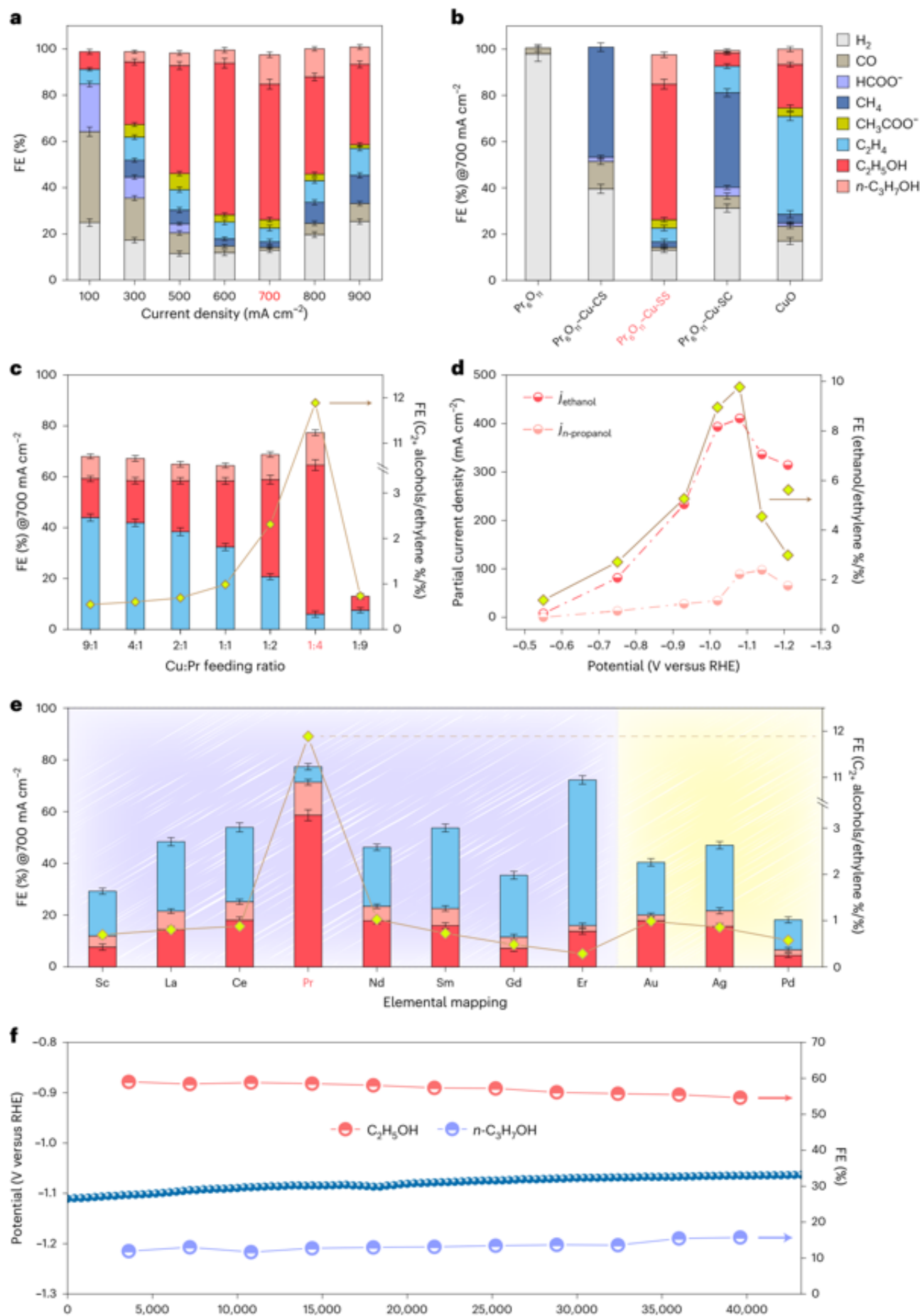


图2：电催化还原二氧化碳的性能数据。

通过原位动态界面追踪结合多尺度理论计算，揭示了活性锁的新机制：①采用逐步沉淀和逐步煅烧法制备的催化材料中，稀土元素的大离子半径诱导复合活性界面产生晶格缺陷、位错及扭曲应变，形成不对称活性位点；② $\text{Pr}^{3+}/\text{Pr}^{4+}$ 动态氧化还原对通过 $\text{Pr}-\text{O}-\text{Cu}$ 化学键，在反应中实时稳定 $\text{Cu}^{\delta+}/\text{Cu}^0$ 混合价态（Cu平均价态+0.52），形成自修复的 $\text{Pr}-\text{O}_{\text{vac}}-\text{Cu}$ 异质界面（图5c）， $^*\text{CO}$ 同时以顶位（Pr端）与桥位（Cu端）混合吸附，形成 $\text{O}-\text{C}-\text{C}-\text{O}$ 中间体；③Pr端富电子区促进 $^*\text{CO}$ 的C端亲核攻击，Cu端缺电子区稳定O端配位，协同实现不对称C-C偶联生成 C_2 +醇。

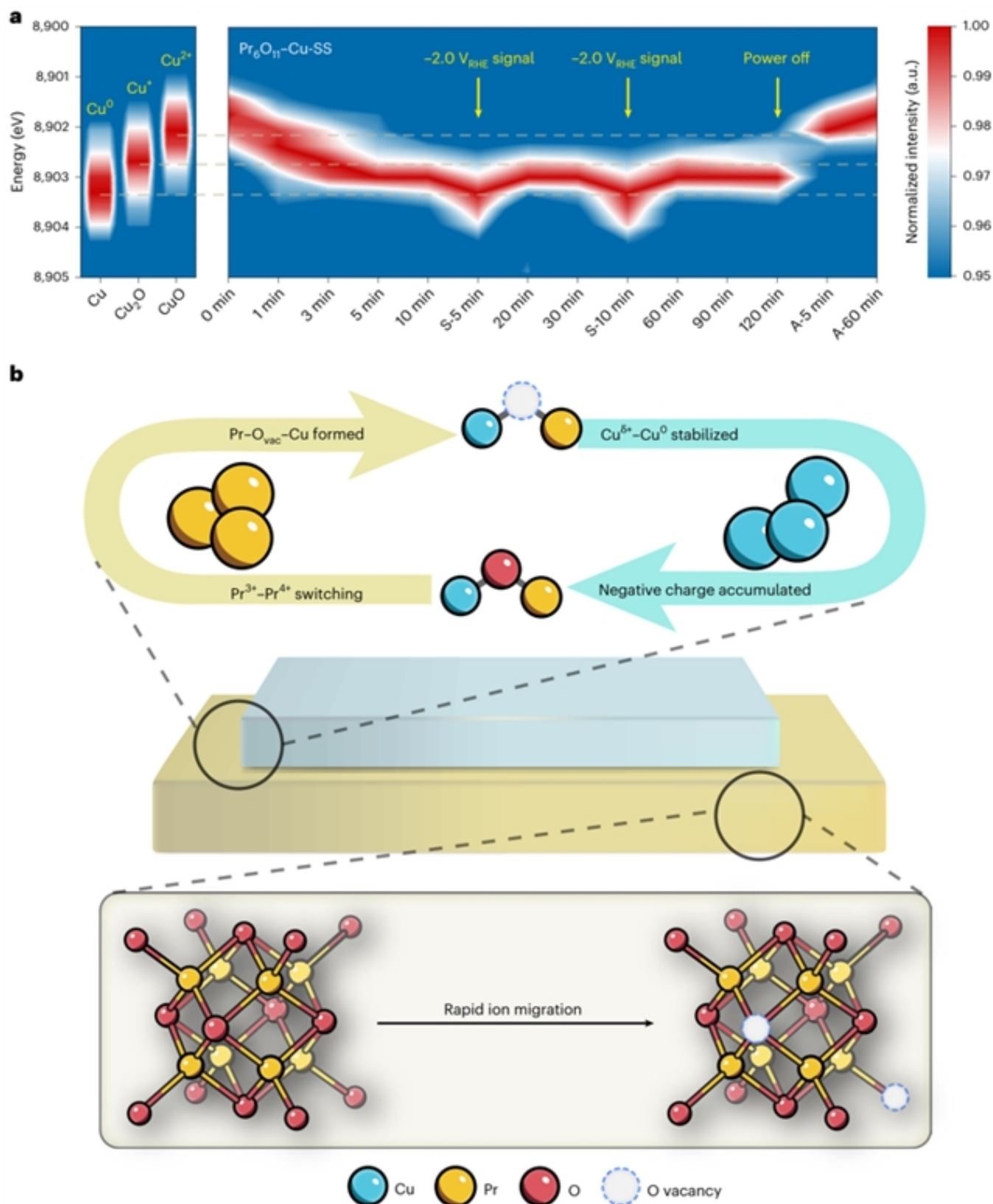


图3：CO₂RR过程中Pr₆O₁₁-Cu-SS催化剂的结构演变。

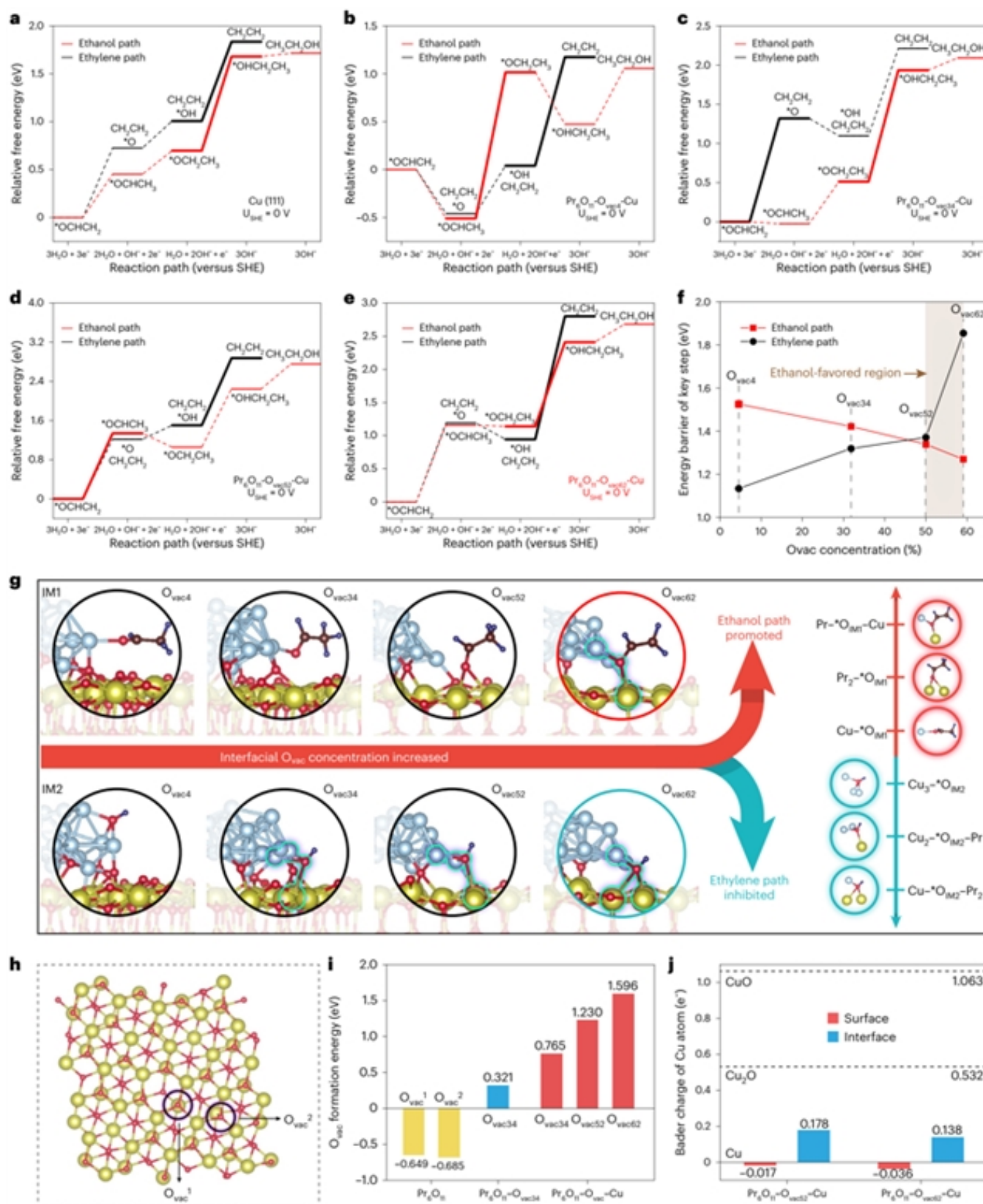


图4：DFT计算的机理解析。

该催化体系在工业电流密度下制C2+醇的优异性能，为CO₂的规模化转化奠定了基础。此外，该策略可推广至其他稀土-过渡金属体系，助力碳中和技术发展。该研究成果得到此研究得到国家

自然科学基金、科技部国家重点研发计划、中国科学院基础研究领域优秀青年团队等项目的支持。
(来源：科学网)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s44160-025-00752-4>

作者：韩布兴等 来源：《自然-合成》

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