[Highlight]

doi: 10.3866/PKU.WHXB201704261

www.whxb.pku.edu.cn

界面限域效应增强二氧化碳电催化还原

庄 林

(武汉大学化学与分子科学学院, 武汉 430072)

Enhancing CO₂ Electroreduction with Interfacial Confinement

ZHUANG Lin

(College of Chemistry and Molecular Sciences, Wuhan University, Wuhan 430072, P. R. China)

二氧化碳电催化还原, 以可再生电能或富余核电等洁净电能为能源, 可以在温和的反应条件下将二氧化碳一步转化为一氧化碳、甲酸、碳氢化合物和醇类等高附加值化工原料及化学品, 将二氧化碳“变废为宝”的同时实现了洁净电能的有效存储¹。当前, 设计高效电催化剂来降低过电势和提高反应选择性是二氧化碳电催化还原研究中极具挑战性的热点课题。

中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室杨帆研究员、汪国雄研究员和包信和院士带领的研究团队长期以来致力于二氧化碳的高效电催化转化²⁻⁵以及金属-氧化物界面限域催化效应研究⁶⁻⁸, 已取得了一系列进展。近日, 该团队在金属-氧化物界面增强的二氧化碳电催化还原上取得新进展, 相关研究成果发表在 *Journal of the American Chemical Society* 杂志上⁹。

杨帆、汪国雄和包信和研究团队基于对金属-氧化物界面催化限域效应的充分理解, 以该团队提出的“纳米限域催化”概念为基础, 设计合成了金属-氧化物界面结构的碳载 Au-CeO_x 催化剂, 在

保证不同催化剂中 Au 纳米粒子尺寸和形貌相同的情况下, 研究了 Au-CeO_x 界面与二氧化碳电催化还原性能的内在关联。在 -0.89 V (vs RHE) 时, Au-CeO_x 催化剂上生成一氧化碳的法拉第效率达到 89.1%, 远高于单独的 Au (59.0%) 或 CeO_x 催化剂 (9.8%), 生成一氧化碳的电流密度是 Au 的 1.6 倍。通过构筑 CeO_x/Au(111) 模型催化剂, 利用高分辨扫描隧道显微镜和同步辐射能谱进行原位研究, 发现 Au-CeO_x 界面显著促进了 CO₂ 在 CeO_x 表界面的吸附与活化, 以及水的存在帮助了 CeO_x 表面的还原与表面吸附 CO₂ 物种的稳定。密度泛函理论计算进一步表明在后续的加氢过程中, Au-CeO_x 界面帮助稳定了关键中间物种 *COOH, 从而促进了 CO 的生成和脱附。这种界面增强的二氧化碳电催化还原在 Ag-CeO_x 催化体系上得到了进一步证实, 表明了金属-氧化物界面限域催化体系在二氧化碳电催化还原中的普适性。

该研究成果首次将界面限域催化应用于二氧化碳高效电催化还原, 提供了调控二氧化碳电催化还原性能的新途径, 丰富和拓展了该团队提出

的纳米限域催化概念。

References

- (1) Wu, J.; Sun, S.; Zhou, X. *Nano Energy* **2016**, 27, 225.
doi: 10.1016/j.nanoen.2016.06.028
- (2) Gao, D.; Zhou, H.; Wang, J.; Miao, S.; Yang, F.; Wang, G.; Wang, J.; Bao, X. *J. Am. Chem. Soc.* **2015**, 137, 4288.
doi: 10.1021/jacs.5b00046
- (3) Gao, D.; Zhou, H.; Cai, F.; Wang, D.; Hu, Y.; Jiang, B.; Cai, W.; Chen, X.; Si, R.; Yang, F.; Miao, S.; Wang, J.; Wang, G.; Bao, X. *Nano Res.* **2017**, doi: 10.1007/s12274-017-1514-6
- (4) Cai, F.; Gao, D.; Zhou, H.; Wang, G.; He, T.; Gong, H.; Miao, S.; Yang, F.; Wang, J.; Bao, X. *Chem. Sci.* **2017**, 8, 2569.
doi: 10.1039/c6sc04966d
- (5) Yin, Z.; Gao, D.; Yao, S.; Zhao, B.; Cai, F.; Lin, L.; Tang, B.; Zhai, P.; Wang, G.; Ma, D.; Bao, X. *Nano Energy* **2016**, 27, 35.
doi: 10.1016/j.nanoen.2016.06.035
- (6) Fu, Q.; Li, W.; Yao, Y.; Liu, H.; Su, H.; Ma, D.; Gu, X.; Chen, L.; Wang, Z.; Zhang, H.; Wang, B.; Bao, X. *Science* **2010**, 328, 1141.
doi: 10.1126/science.1188267
- (7) Yang, F.; Deng, D.; Pan, X.; Fu, Q. & Bao, X. *Nat. Sci. Rev.* **2015**, 2, 183-201, doi:10.1093/nsr/nwv024
- (8) Liu, Y.; Yang, F.; Zhang, Y.; Xiao, J.; Yu, L.; Liu, Q.; Ning, Y.; Zhou, Z.; Chen, H.; Huang, W.; Liu, P.; Bao, X. *Nat. Commun.* **2017**, 8, 14459. doi: 10.1038/ncomms14459
- (9) Gao, D.; Zhang, Y.; Zhou, Z.; Cai, F.; Zhao, X.; Huang, W.; Li, Y.; Zhu, J.; Liu, P.; Yang, F.; Wang, G.; Bao, X. *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, doi: 10.1021/jacs.7b00102