[Highlight]

doi: 10.3866/PKU.WHXB201908014

www.whxb.pku.edu.cn

铜配合物衍生铜-氧化亚铜催化剂的原位电合成及其对二氧化碳电还原制备 C₂ 产物催化性能的研究

刘志敏

中国科学院化学研究所, 北京分子科学国家研究中心, 中国科学院胶体、界面与化学热力学重点实验室, 北京 100190

Electroreduction of Carbon Dioxide to C₂ Products over Copper-Cuprous Oxide Prepared from *In Situ* Electrosynthesized Copper Complex

LIU Zhimin

Beijing National Laboratory for Molecular Sciences, Key Laboratory of Colloid and Interface and Thermodynamics, Institute of Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100190, P. R. China.

Email: liuzm@iccas.ac.cn.

Published online: September 3, 2019.

电催化剂制备及CO₂还原过程。

二氧化碳(CO₂)是主要的温室气体,同时也是廉价、无毒、丰富、可再生的C₁资源¹。将CO₂转化为高附加值化学品具有碳资源合理利用和环境保护双重意义,近年来引起国内外的广泛关注。然而,由于CO₂热力学稳定、动力学惰性,其转化利用存在热力学和动力学的双重难题。采用电化学方法将CO₂转化为液体燃料和高附加值化学品,是

具有重要应用前景的技术路线之一²。随着可再生能源发电量不断增加,可以利用可再生能源将CO₂转化为化学品和燃料,符合可持续发展的要求。目前,CO₂电催化还原产物主要为C₁产物,如CO、甲酸、甲醇等³⁻⁵。由于C-C偶联在电催化还原CO₂过程中很难实现等原因,将CO₂转化为C₂产物比转化成C₁产物难度大得多。开发高效的电催化剂,在低

起始电位、低过电位、高电流密度和高法拉第效率下将CO₂转化为C₂产物具有重要意义,但也是一个难题。

近日,中国科学院化学研究所韩布兴课题组在*Nature Communications*上发表题为《铜配合物衍生铜-氧化亚铜催化剂的原位电合成及其电催化转化二氧化碳为C₂产物的研究》的文章⁶。他们首先采用电合成的方法在铜基底上生长铜配合物,在CO₂电还原过程中铜配合物很快原位变成三维树枝状结构的铜-氧化亚铜复合物。这种原位生长的催化剂对于CO₂还原为C₂产物(乙酸和乙醇)具有优异的催化性能。在施加电位为-0.4 V vs RHE条件下,C₂产物的法拉第效率可达到80%,电流密度为11.5 mA·cm⁻²,乙酸和乙醇的过电位仅分别为0.53 V和0.48 V。

他们采用多种手段对催化材料具有优异性能的原因进行深入研究。结果表明,此类催化剂的突出性能主要源于三个方面。一是这种方法制备的电催化剂在铜基底上原位生长,因此催化材料和铜基底之间接触电阻很小,这有利于提高电子的传输,降低过电位和施加的电压;二是原位生成的Cu(I)/Cu(0)具有3D树枝状结构,这种结构有利于充分暴露催化剂的活性位点,因此催化剂的活性很高、过电位低,同时3D结构使得中间产物在催化剂中停留更长的时间,有利于较大分子的生成;

三是Cu(I)/Cu(0)表面之间的协同作用有效促进CO₂活化及C-C偶联,这有利于提高C₂产物的高选择性。这种在基底上原位生成金属络合物,络合物进一步原位电还原演化为催化材料的方法对CO₂电还原高效催化剂设计具有借鉴意义,这一方法可以用于制备一些其他CO₂电还原材料。这一工作得到了国家重点研究计划、国家自然科学基金委等部门的经费支持。

References

- (1) Hu, J. Y.; Liu, H. Z.; Han, B. X. *Sci. China Chem.* **2018**, *61*, 1486. doi: 10.1007/s11426-018-9396-3
- (2) Qiao, J. L.; Liu, Y. Y.; Hong, F.; Zhang, J. J. *Chem. Soc. Rev.* **2014**, *43*, 631. doi: 10.1039/C3CS60323G
- (3) Sun, Z. Y.; Ma, T.; Tao, H. C.; Fan, Q.; Han B. X. *Chem* **2017**, *3*, 560. doi: 10.1016/j.chempr.2017.09.009
- (4) Bai, X. F.; Chen, W.; Wang, B. Y.; Feng, G. H.; Wei, W.; Jiao, Z.; Sun, Y. H. *Acta Phys. -Chim. Sin.* **2017**, *33*, 2388. [白晓芳, 陈为, 王白银, 冯光辉, 魏伟, 焦正, 孙予罕. 物理化学学报, **2017**, *33*, 2388.] doi: 10.3866/PKU.WHXB201706131
- (5) Zhu, D. D.; Liu, J. L.; Qiao, S. Z. *Adv. Mater.* **2016**, *28*, 3423. doi: 10.1002/adma.201504766
- (6) Zhu, Q. G.; Sun, X. F.; Yang, D. X.; Ma, J.; Kang, X. C.; Zheng, L. R.; Zhang, J.; Wu, Z. H.; Han, B. X. *Nat. Commun.* **2019**, *10*, 3851. doi: 10.1038/s41467-019-11599-7