

大连化物所二氧化碳高效电催化还原研究取得新进展

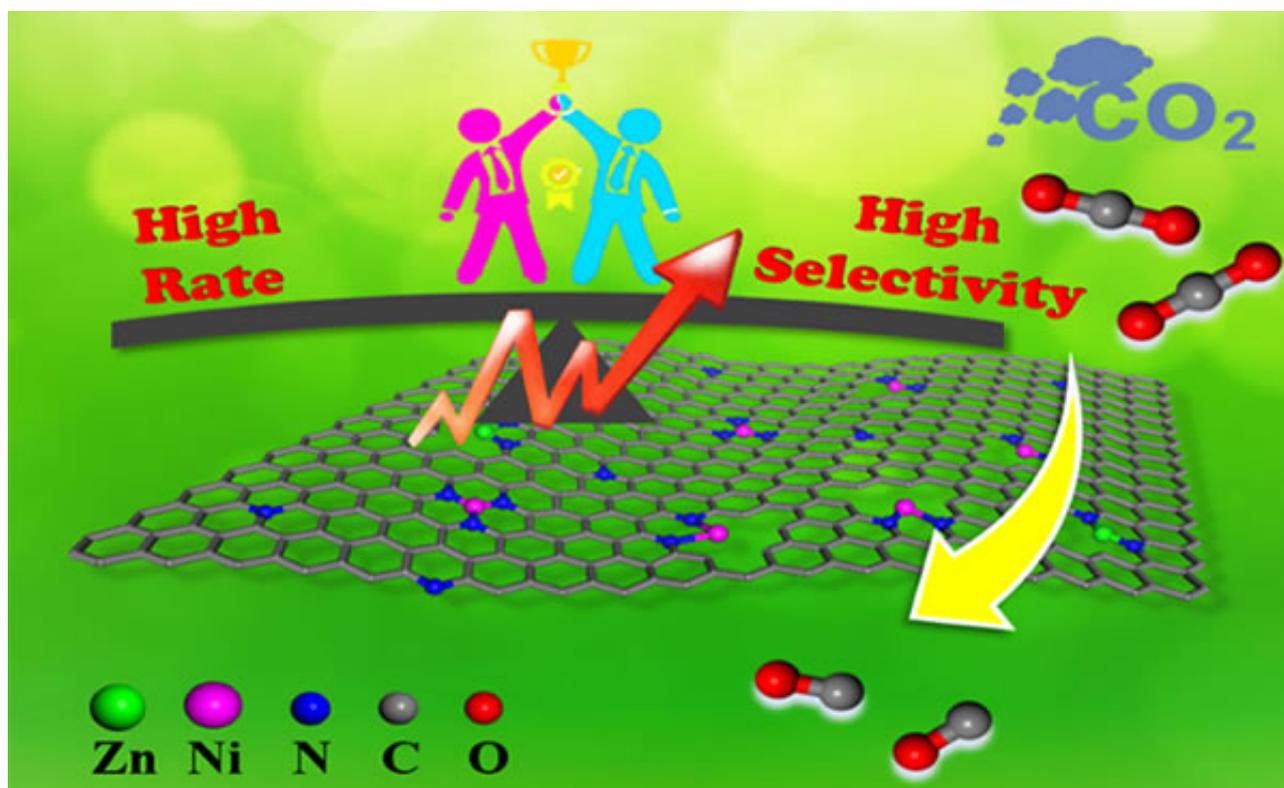
近日，中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室包信和与汪国雄团队在二氧化碳高效电催化研究中取得新进展，相关结果发表在《能源和环境科学》(Energy Environ. Sci.)上。

二氧化碳电催化还原反应(CO₂RR)可同时实现二氧化碳的转化利用和可再生清洁能源的有效存储，利于构建可持续发展的碳资源循环利用网络。近年来，该研究团队从催化基础角度开展了有特色和深入系统的CO₂电催化还原研究，在纳米Pd基催化剂、金属-氧化物界面等方面取得了一系列研究成果，显著提高了CO₂电催化还原的选择性、活性和稳定性(J. Am. Chem. Soc., Chem. Sci., J. Am. Chem. Soc., ACS Catal., Angew. Chem. Int. Ed.)。

过渡金属-氮-碳复合材料是一类有望替代贵金属的电催化材料，该研究团队近期致力于该类材料的可控制备及其电催化性能研究(Energy Environ. Sci., Nano Energy, ACS Catal.)。前期研究表明，过渡金属-氮-碳复合材料可将CO₂电催化还原生成CO，但随着过电势增加，竞争性的析氢反应(HER)电流急剧增大，造成CO法拉第效率迅速下降，很难获得高的CO分电流密度。因此同时获得高的CO₂RR电流密度和法拉第效率是过渡金属-氮-碳复合材料面临的重要挑战。

在该研究中，该研究团队通过热解锌/镍双金属沸石咪唑类骨架材料(ZIF-8)，成功制备出配位不饱和Ni-N位点掺杂的多孔碳材料，其中单分散的Ni物种负载量最高可达5.44wt%。在该Ni-N催化剂上，CO法拉第效率在-0.53V~-1.03V(vs. RHE)宽电势区间内维持在92.0%~98.0%之间，CO电流密度随过电势增加而增加，在-1.03V(vs. RHE)达到71.5±2.9 mA/cm²。表征结果和对比试验表明配位不饱和的Ni-N为活性位点；密度泛函理论计算进一步揭示在NiN₂V₂(V表示空位)位上CO₂RR比HER更容易发生，推测NiN₂V₂可能是CO₂RR的活性位。因此，高载量配位不饱和Ni-N活性位同时实现了CO₂RR的高电流密度和法拉第效率，打破了过渡金属-氮-碳复合材料上CO₂RR选择性和反应速率的“跷跷板”效应限制。

上述研究工作得到了国家自然科学基金、国家重点研发计划、DMTO和中科院先导专项等的资助。



原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/125045.html>