

金属间电子化合物表面自发水解离促进CO₂甲烷化研究获进展

近日，中国科学院山西煤炭化学研究所温晓东团队联合北京大学骆明川团队，在理论-实验-数据一体化研究思路指导下，针对金属间电子化合物（IE）催化CO₂甲烷化的研究取得进展。

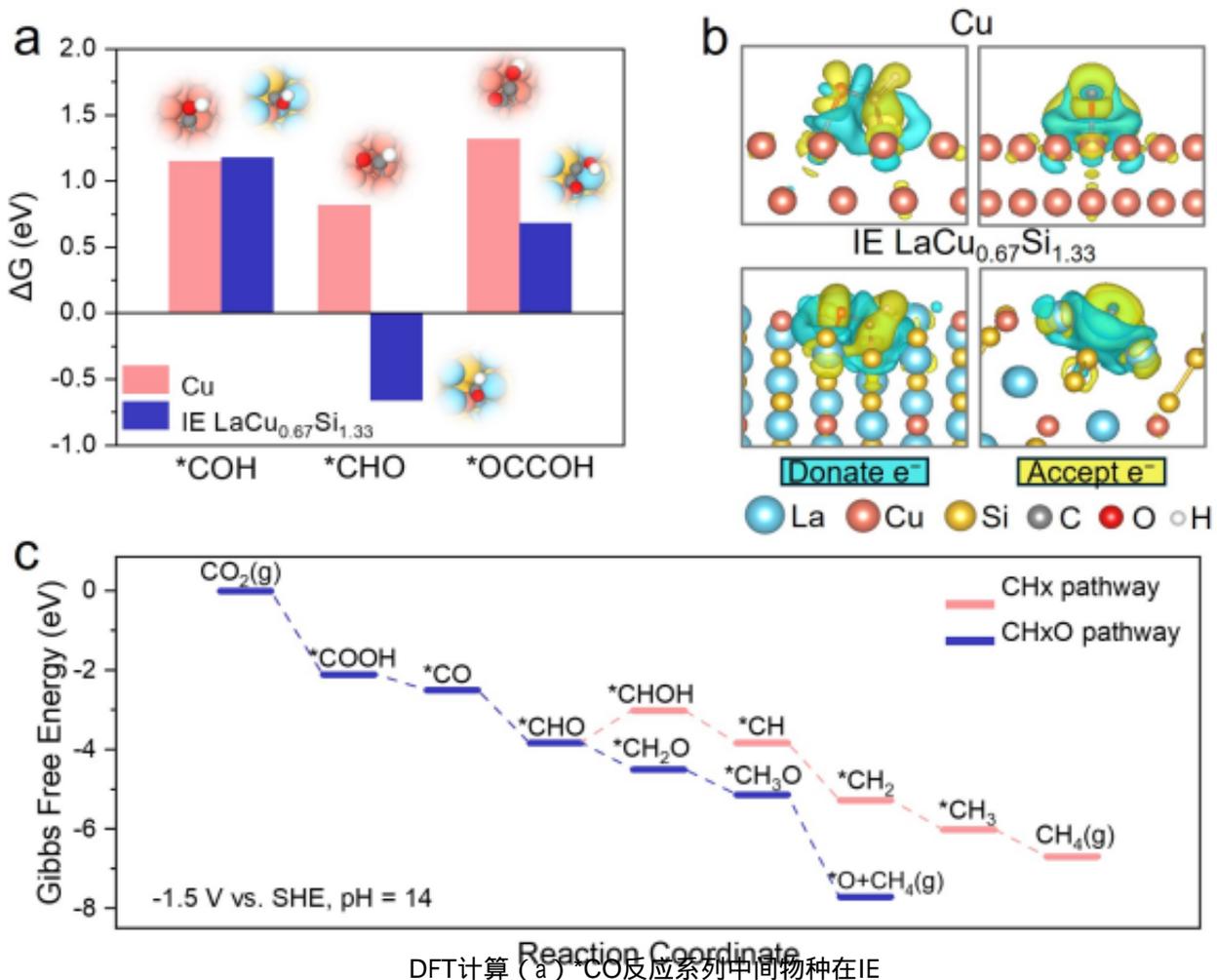
利用可再生电力驱动的CO₂电还原转化为甲烷是可持续的减少对天然气依赖的方法。目前，这一过程受限于效率和耐久性不足等问题，这主要源于现有催化剂上水解离和质子耦合电子转移之间的动力学差异。为提高CO₂电还原为甲烷的效率，研究人员致力于设计更高效的催化剂特别是铜（Cu）基催化剂。但是，如何通过催化剂设计来同步实现高效的水解离和CO₂活化仍是挑战。

该团队基于自研的机器学习加速结构预测方法，结合基于密度泛函理论的高通量计算，揭示了金属间电子化合物材料关键活性位的富电子结构，并预测其具有优异的自发水解离能力。团队结合LaCu_{0.67}Si_{1.33}材料制备，设计表征实验，利用H₂O-程序升温表面反应，证实该金属间电子化合物表面发生显著的自发水解离现象。在碱性流通池中，IE LaCu_{0.67}Si_{1.33}催化剂在相对于可逆氢电极（vs. RHE）-1.21

V的还原电位下表现出72%的甲烷法拉第效率，并在-1.52 V vs. RHE下达到476.7 mA cm⁻²的甲烷偏电流密度。进一步，密度泛函理论计算表明，在IE LaCu_{0.67}Si_{1.33}催化剂上，甲烷化反应路径在热力学/动力学上更为有利。

进一步，该团队通过数据挖掘、结构表征和理论预测，揭示了IE LaCu_{0.67}Si_{1.33}催化剂独特的活性位富电子结构和自发水解离能力，为CO₂电化学甲烷化以及其他可能涉及水解离过程的可再生能源转化，提供了有前景的催化剂体系。

相关研究成果发表在《自然-通讯》（Nature Communications）上。研究工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金、中国科学院前沿科学重点研究项目等的支持。



DFT计算 (a) *CO反应系列中间物种在IE LaCu_{0.67}Si_{1.33}和Cu表面加氢和碳碳耦合反应的吉布斯自由能；(b) *CHO反应中间物种在IE LaCu_{0.67}Si_{1.33}和Cu表面的电荷密度差图；(c) CO₂-CH₄转变不同反应路径中间过程的吉布斯自由能。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/228085.html>