

研究建立电催化环境下铜基催化剂结构重构模拟新方法

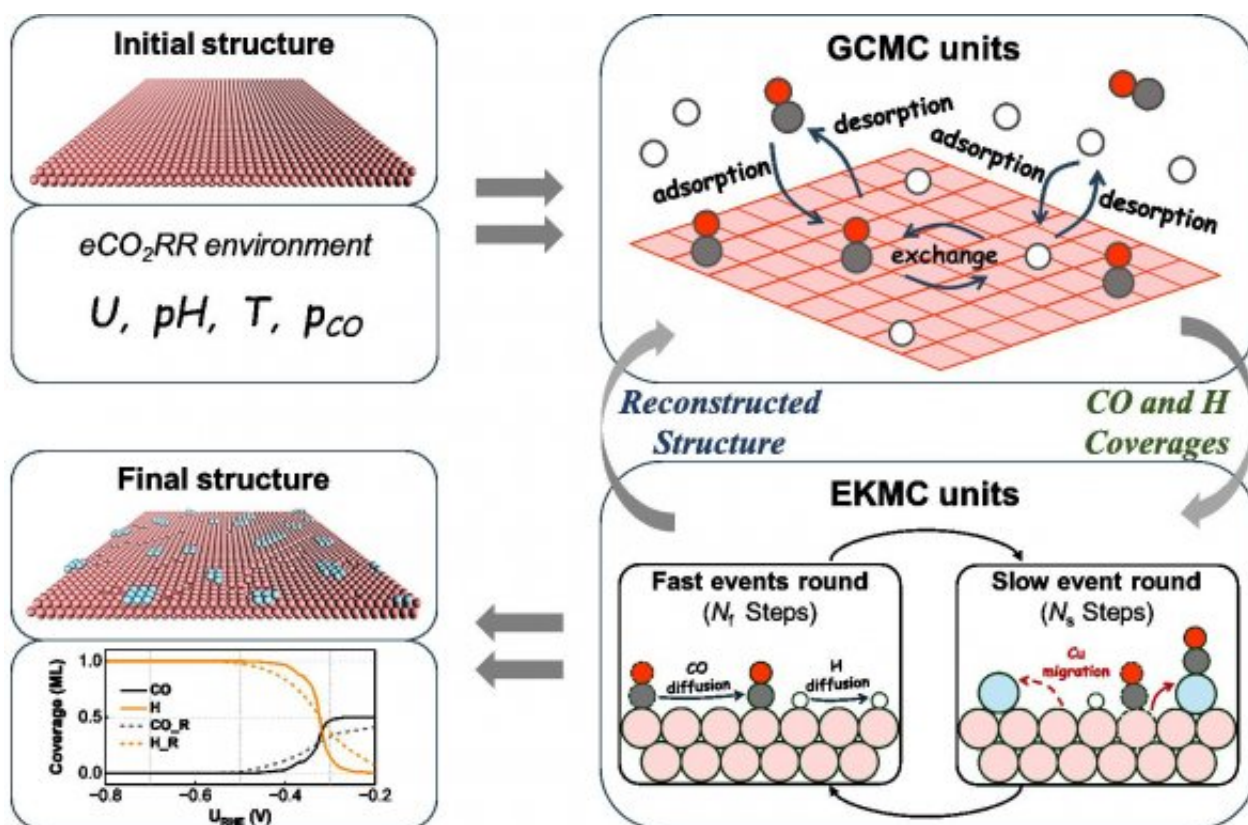
金属铜因具有将二氧化碳还原生成多碳产物的特性，引起学界的广泛关注。但电催化二氧化碳还原反应（eCO₂RR）的产物选择性、铜基催化剂稳定性及能源效率等问题是制约其工业化应用的核心瓶颈。实验结果表明，铜基催化剂的表面形貌在电催化二氧化碳还原反应条件下易发生变化，影响其催化机理和反应活性。因此，深入解析催化剂在反应条件下的微观结构和形貌变化特性，并研究其对反应性能的影响，对催化剂理性设计与优化具有重要意义。

近日，中国科学院上海高等研究院副研究员唐庆丽团队基于反应环境动力学蒙特卡洛模拟方法，结合电势依赖的巨正则蒙特卡洛模拟和密度泛函理论方法，对电催化二氧化碳还原反应的关键中间体诱导铜（100）表面原子级重构机理和重构表面反应性能的影响进行了系统研究。

研究发现，诱导铜（100）局部一氧化碳高覆盖引起了表面原子跳出，并迁移、聚集形成小团簇。在模拟的条件下，重构表面在宽电位范围内展现出长达小时级的结构稳定性。同时，不同还原产物具有位点选择性。

该研究建立了电催化环境下铜基催化剂结构重构模拟新方法，实现了宏观时间尺度（小时级）近万原子铜（100）表面结构重构过程模拟，并揭示了铜（100）表面原子级重构机制。上述成果有助于学界探讨反应驱动的结构演变对铜（100）表面催化eCO₂RR的影响，并为通过调控原位活性位点的形成来提升产物选择性提供理论可能。

相关研究成果以Reaction-Driven Varieties of Active Sites on Cu(100) in Electrochemical CO₂ Reduction Reaction为题，发表在《ACS催化》（ACS Catalysis）上。研究工作得到国家自然科学基金委员会、科学技术部、上海市科学技术委员会等的支持。



该研究建立的巨正则蒙特卡洛和反应环境动力学蒙特卡洛模拟方法迭代流程图

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/225320.html>