

Water Oxidation at Neutral pH using a Highly Active Copper-Based Electrocatalyst

مُلخص البحث :

تُعتبر الحركية البطيئة لتفاعل تصاعد الأكسجين (Oxygen Evolution Reaction (OER)) عند الأنود عائقًا كبيرًا أمام إنتاج الهيدروجين عند الكاثود في أجهزة تحليل الماء و بالتالي أمام إنتاج وقود الهيدروجين من مصدر رخيص كالماء و بطريقة نظيفة بيئيًا. فعلى الرغم من أن أنظمة التحفيز الكهربائي القائمة على محفزات النحاس الرخيصة والوفيرة في الأرض قد أظهرت نتائج واعدة لأكسدة الماء في ظل الظروف القلوية، إلا أن عددًا قليلًا جدًا من تلك المركبات يعمل في الأوساط المتعادلة أو الحامضية، كما يتطلب جهودًا كهربائية مرتفعة، على الرغم من أن إنتاج الهيدروجين من التحليل الكهربائي للمياه في الحالة الأخيرة (الحامضية) أسهل بكثير. لذا يُقدم هذا العمل مُحفِّزًا جزيئيًا فعالًا وذا ثبات عالي قائمًا على النحاس $(\text{Cu}(\text{TCA})_2$ ، $\text{HTCA}=1-$ (mesityl-1H-1,2,3-triazole-4-carboxylic acid) والذي يتجمع ذاتيًا كغشاء رقيق من مكوناته الأولية (أيونات النحاس و الليجاند) تحت ظروف أكسدة المياه على سطح قطب الكربون. هذا الفيلم يُحفز تفاعل أكسدة المياه الكهروكيميائي عند جهد منخفض بشكل ملحوظ، كما أنه أثناء عملية التحليل الكهربائي للماء، يمكن الوصول إلى تيار حفزي يبلغ 1.0 مللي أمبير لكل سم² عند 2.0 فولت فقط (مقابل RHE) ولم يلاحظ أي انخفاض في قيمة تيار الحفز حتى بعد التحليل الكهربائي للماء لفترات طويلة. هذا المُحفِّز خواصًا حركية من الرتبة الأولى، ونشاطية عالية بمعدل تكرار (turnover frequency, TOF) يساوي 0.6 ث⁻¹. تكشف حسابات نظرية الكثافة الوظيفية (DFT) أن الخلل الذي يحدث أثناء عملية تكون الفيلم يخلق مواقع Cu^{I} نشطة و التي توفر إمكانية حدوث تفاعل أكسدة الماء عند جهد كهربائي منخفض، و تتضمن آلية التفاعل تكون Cu^{I} ، $\text{Cu}^{\text{II}}-\text{OH}$ ، $\text{Cu}^{\text{III}}=\text{O}$ ، Cu^{II} OOH، و Cu^{II} كمركبات وسيطة والذي بدوره يُمكن من إتمام عملية أكسدة المياه عند جهد زائد بقيمة 0.31 فولت فقط، والذي يتوافق جيدًا مع النتائج العملية.

Published in: *ChemSusChem* (2020), 13 (18), 5088-5099.