



太阳能聚光催化CO₂制备碳及其用于析氧反应的性能研究

张魁魁^{1,2}, 杨茗凯², 黄泽皑^{1,2*}, 谭浩², 刘彤², 刘毅², 周莹^{1,2*}

1. 西南石油大学油气藏地质及开发工程全国重点实验室, 成都 610500

2. 西南石油大学新能源与材料学院, 成都 610500

* 联系人, E-mail: zeai.huang@swpu.edu.cn; yzhou@swpu.edu.cn

2026-03-09 收稿, 2026-05-02 修回, 2026-05-06 接受, 2026-05-07 网络版发表

国家杰出青年科学基金(52325401)、国家重点研发计划“政府间国际科技创新合作”重点专项(2025YFE0112700)和国家自然科学基金国际(地区)合作研究与交流项目(W2412080)资助

摘要 从大气中直接捕获并转化二氧化碳(CO₂)是实现碳资源利用的理想途径,但受限于低CO₂分压及高浓度氧气的竞争,现有技术通常依赖高能耗的预富集过程.本研究提出了一种无需预富集的策略,利用太阳能聚光驱动液态金属(Ga-In),实现了在宽浓度范围(从100%至环境空气)内的CO₂直接转化.研究揭示了浓度依赖的产物结构演变机制:在高浓度下主导生成高石墨化碳,而在空气条件下(~400 ppm)形成金属氧化物/碳异质结,且在40~80 ppm区间存在碳沉积与氧化物生成的竞争临界阈值.实验表明,所得碳材料均具有显著的电催化析氧反应(oxygen evolution reaction, OER)活性.其中,在最优条件(100% CO₂)下制备的碳电极在10 mA cm⁻²电流密度下的过电位仅为750 mV,与商业Pt/C催化剂(752 mV)相当;而源自空气的样品虽受氧化物影响导电性可能降低,但仍保持了有效的催化活性.该工作验证了从稀薄空气中直接获取碳资源的可行性,并证明了该技术在不同浓度CO₂源下的广泛适应性,为低成本、全场景的绿色碳循环提供了新思路.

关键词 太阳能聚光, 液态金属, CO₂, 碳材料

自工业革命以来,大气中CO₂浓度从280 ppm攀升至420 ppm以上,加剧了全球气候变化风险^[1,2].在此背景下,仅依靠减少碳排放已不足以遏制温室效应^[3~6],为实现碳中和目标,不仅需要工业源排放的高浓度CO₂(如烟气, >10%)进行源头减排,更迫切需要开发能够直接从环境中移除历史累积碳排放的负排放技术^[7~10].其中,直接空气捕获(direct air capture, DAC)因其能处理分散的大气源CO₂而备受瞩目^[11].然而,从工业高浓度场景过渡到大气低浓度场景,面临着巨大的热力学与动力学跨度挑战.大气中CO₂分压极低(~400 ppm)且伴随高浓度氧气(~21%)的强烈竞争.近期研究表明,面向实际应用的CO₂捕集与转化研究,除

材料性能外,还需关注体系构筑以及不同应用场景下的适配性^[12].但现有技术路线通常依赖高能耗的预富集步骤来弥合这一浓度差距,导致碳捕获成本居高不下.因此,探索无需预富集、能够适应从工业级高浓度到大气级低浓度宽范围CO₂源的直接转化策略,是该领域的重大挑战^[13~15].

近年来,液态金属(liquid metals, LMs)凭借其卓越的流体界面特性和电子传输能力,被证明是驱动CO₂还原的理想介质.特别是镓(Ga)基液态金属,已被用于在热或电驱动下将CO₂转化为固体碳材料,例如炭黑、石墨烯、碳纳米管或金属-碳复合材料等,其具有环境效益显著、产物价值高、市场潜力大等优势^[16~18].Zurairqi

引用格式: 张魁魁, 杨茗凯, 黄泽皑, 等. 太阳能聚光催化CO₂制备碳及其用于析氧反应的性能研究. 科学通报

Zhang K, Yang M, Huang Z, et al. Concentrated solar catalytic conversion of CO₂ to carbon for the oxygen evolution reaction (in Chinese). Chin Sci Bull, doi: 10.1360/CSB-2026-0300

等人^[7]采用EGaIn合金直接将高纯度CO₂(99.99%)分解为固体无定形碳,金属也不会因结焦而失去催化活性.同样的,他们采用Li-Ga合金,在500℃时将高纯度CO₂分解为碳纳米纤维,并进一步将其作为超级电容器的材料^[19].相比于传统的热化学,电催化由于具有较高的能量转换效率,目前也用于液态金属转化高纯度CO₂为固体碳材料中. Esrafilzadeh等人^[8]以液态金属Ga-Ce合金,通过电化学还原CO₂为层状固体碳.同时, Irfan等人^[20]以金属V添加的V-EGaIn合金,在更低的过电位(-0.97 V)下得到了具有石墨化结构的无定形碳.然而,目前的研究大多局限于处理理想的高浓度CO₂,尚未探究该体系在大气环境下,CO₂是否能实现有效转化.

本研究提出一种由太阳能聚光驱动液态金属(Ga-In)实现的CO₂资源化利用策略,不仅实现了大气低浓度CO₂的直接碳捕获与利用,而且在高浓度下同样适用.我们首先证实了太阳能聚光能有效驱动空气浓度CO₂转化为碳材料,随后揭示了光热驱动下的碳生长机理及液态金属表面的演变规律.研究发现,随着CO₂浓度从大气浓度到工业水平,产物结构逐渐从“金属氧化物/碳”异质结转变为高石墨化碳.更重要的是,电化学测试表明,这些直接源自CO₂的碳材料可用作高效的析氧反应(oxygen evolution reaction, OER)电极.本工作不仅证明了太阳能聚光可以驱动液态金属体系对空气浓度CO₂进行有效转化,而且对不同浓度CO₂源的广泛适应性,为构建低成本、全场景的绿色碳循环技术提供了新的思路^[21~24].

1 实验部分

(1) 化学试剂. 金属镓(麦克林, 99.99%)、金属铟(MREDA, 99.99%)、Pt/C催化剂(新铂, 10%),所有化学试剂在使用前均未经过处理,均可以直接使用,无需进一步纯化.

(2) 催化材料制备. 以高纯金属镓(Ga)和铟(In)颗粒为原料合成液态金属(Ga-In),纯度为99.9%. 其中,Ga和In的质量比由电子天平测定,In的量分别为1%、3%、5%、8%和10%. 最后,将称取的Ga和In颗粒,在管式炉中经氩气(Ar)保护,300℃下加热混合60 min,形成液态金属Ga-In.

(3) 材料表征. 拉曼(Raman)光谱采用HORIBA FRANCE SAS的LabRam HR Evolution原位变温高压共聚焦激光显微镜进行,光谱范围为500~3000 nm,光谱分辨率为0.35 cm⁻¹/像素. 使用Thermo Fisher Scientific

的Thermo Scientific K-Alpha XPS仪器进行X射线光电子能谱(X-ray photoelectron spectroscopy, XPS)分析,以确定碳原子与其他金属原子之间的化学键类型. 高分辨透射电子显微镜(transmission electron microscope, TEM)使用Thermo Fisher Scientific的FEI Talos F200S仪器,以观察样品的微观结构和元素分布. X射线衍射(X-ray diffraction, XRD)采用荷兰PANalytical公司的X'Pert Pro X射线衍射仪进行测试分析.

(4) 反应过程. 每次实验采用15 g液态金属Ga-In,反应在300 W氙灯模拟太阳光经聚光装置照射的条件下进行,进气总流量保持在30 sccm(mL min⁻¹). CO₂气体分析仪用于配气/检测CO₂浓度. 同时,100%、20%、10%、1%浓度的CO₂气体由100%浓度的CO₂气体与高纯氩气稀释所得;空气由空气发生器生成,实时浓度为~400 ppm;40~80 ppm由空气与高纯氮气稀释所得.

氙灯采用中教金源(CEL-HFX300)300 W氙灯模拟太阳光,光斑直径为Φ=25 mm,光强采用THORLABS GmbH PM100D光强计测试标定. 采用德国InfraTec GmbH公司的红外热成像仪(VanoCam-HD research980)检测Ga-In液态金属表面的温度,如图S1所示.

在线质谱用于入口/出口CO₂浓度的定量检测,并据此计算CO₂转化率和CO₂消耗量. 同时,也可实时采样监测反应过程中气体演变. 文中CO₂转化率由入口与出口CO₂浓度差所得(式(1)),具体而言,CO₂转化率(X_{CO_2})的公式为

$$X_{\text{CO}_2} = 1 - \frac{A_1}{A_0}, \quad (1)$$

其中,CO₂出口含量占比为 A_1 ,反应前入口CO₂含量占比为 A_0 .

文中CO₂消耗量由入口与出口CO₂浓度差并结合总流量所得,具体而言,CO₂消耗量(单位: μmol/h)计算公式(Y_{CO_2})如下:

$$Y_{\text{CO}_2} = \frac{F_t \times X_{\text{CO}_2}}{22.4 \text{ L/mol}}, \quad (2)$$

其中, F_t 为通入反应器的气体总流量,30 sccm(mL/min).

通过上述公式可以计算出CO₂转化过程中的CO₂转化率和CO₂消耗量.

(5) 电极材料制备. 碳纸被切割成矩形块(1.5 cm×1.0 cm),在丙酮中超声清洗并60℃烘干待用. 称取10 mg碳材料样品,分散在950 μL无水乙醇和50 μL Nafion溶液中. 将此混合物超声处理10分钟,以获得均

匀的分散体。然后,用胶带遮住碳纸,只留出1.0 cm×1.0 cm的区域作为涂覆区域。总共在暴露区域(碳纸的亲水侧)涂覆50 μL催化剂墨水,分五次单独涂覆,每次涂覆之间在60°C的加热台上干燥表面。在沉积过程之后,电极在60°C的烘箱中进一步干燥1小时备用。最终的工作电极催化剂负载量约为0.5 mg cm⁻²。

(6) 电化学活性测试. 本文中所有OER电化学数据所报告电位均为原始实测值,未进行iR补偿。在正式测试前,工作电极先通过循环伏安法进行活化处理:在0.8~2.2 V vs RHE之间以50 mV s⁻¹扫描20个循环,随后再进行线性扫描伏安法(linear sweep voltammetry, LSV)等电化学测试。同时,进行重复性测试保证数据的可重复性(图S4)。电极性能测试实验在三电极系统中进行,其中Hg/HgO和铂电极分别作为参比电极和对

电极。所有电化学实验在25°C下的1 mol/L KOH中进行。所有测量的电位都使用以下方程校准到可逆氢电极(reversible hydrogen electrode, RHE): $E(\text{RHE}) = E(\text{Hg}/\text{HgO}) + 0.098 \text{ V} + 0.0591 \times \text{pH}$ 。极化曲线通过以10 mV s⁻¹的扫描速率进行LSV获得。

2 结果与讨论

图1(a)展示了太阳能聚光驱动该系统进行CO₂转化,并将转化产物用于电催化析氧反应的过程。在太阳聚光照射下, Ga-In液态金属合金吸收光能并转化为局域热能。在含有CO₂的气氛中,液态金属表面作为高活性反应基底,诱导气-液-固界面的还原反应。其中,气相为CO₂/O₂/N₂/Ar等反应气氛,液相为Ga-In液态金属,固相为反应过程中原位生成的碳/金属氧化物沉积层。随

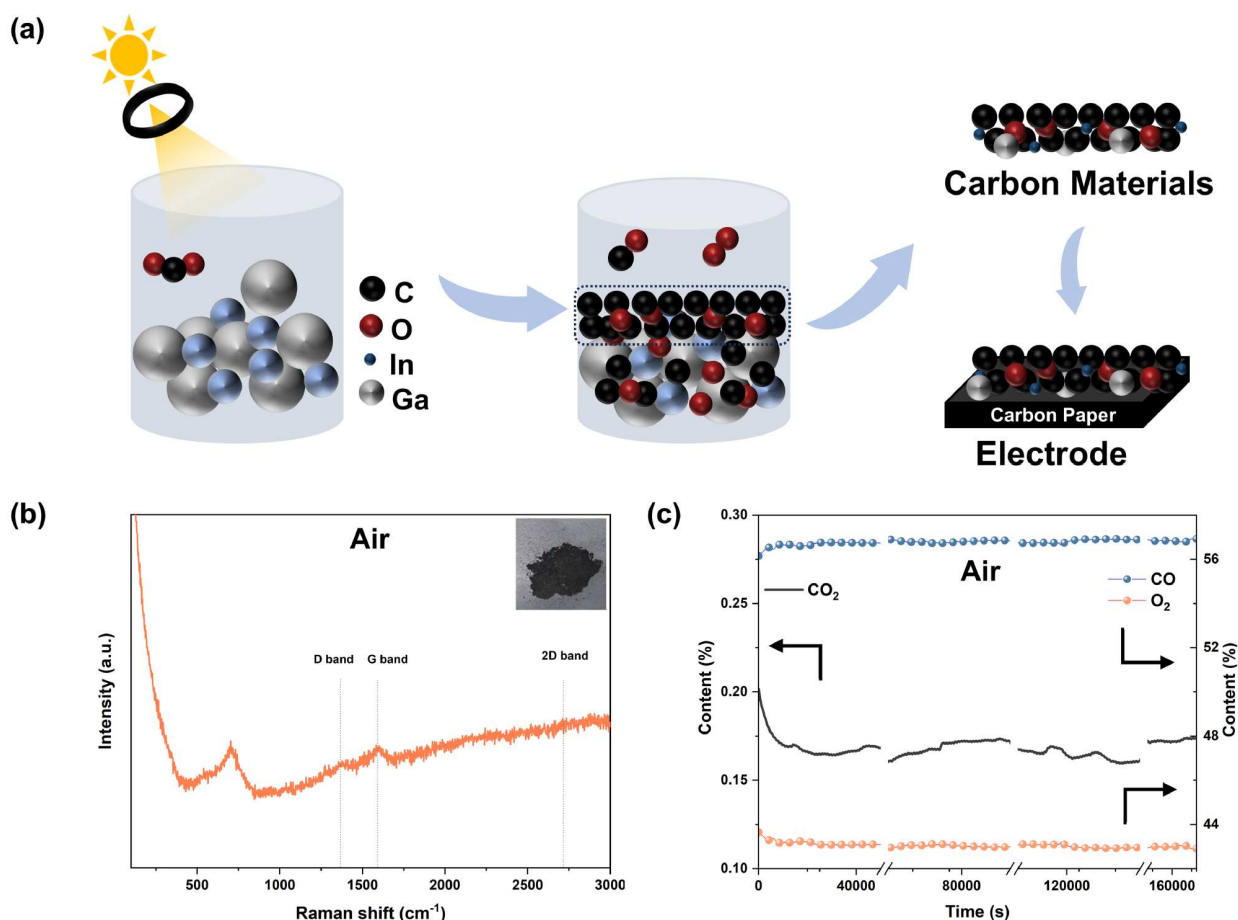


图1 (网络版彩色)(a) 聚光光热驱动CO₂转化机理及其产物应用于电催化析氧反应的示意图; (b) 直接从空气中捕获的固体产物的拉曼光谱; (c) 原位质谱监测空气浓度CO₂的消耗

Figure 1 (Color online) (a) Schematic illustration of concentrated-solar-driven CO₂ conversion and the use of the derived products for electrocatalytic oxygen evolution. (b) Raman spectrum of the solid product harvested directly from ambient air. (c) *In-situ* mass spectrometry profile monitoring the consumption of atmospheric CO₂

着反应进行, CO_2 分子被还原, 碳原子(黑色球)在液态金属表面成核并生长, 最终在金属表面原位形成一层由碳材料与金属氧化物组成的混合异质结覆盖层. 由于液态金属和固体碳本身的液固属性, 且液态金属密度比碳材料密度高, 反应产出的碳基材料漂浮在液态金属上面, 进而可以自动分离出来作为活性物质, 用于电化学OER反应的高效电极.

2.1 太阳能聚光驱动Ga-In合金还原空气浓度 CO_2 为碳基复合材料

为了验证太阳能聚光驱动空气直接捕获(DAC)并转化 CO_2 策略的可行性, 我们将液态金属直接放于环境空气中进行反应. Raman光谱提供了碳材料成功生成的确凿证据, 如图1(b)所示, 空气来源的样品在 1351 cm^{-1} 和 1600 cm^{-1} 处展现出了清晰的D峰和G峰, 分别对应碳原子的缺陷结构和石墨化结构. 此外, Raman谱图低频区($< 800\text{ cm}^{-1}$)出现的氧化物特征峰, 表明在空气捕获过程中金属氧化物与碳的共生现象. 除此之外, 反应结束后在液态金属表面收集到了黑色粉末产物, 图1(b)插图. 这一结果有力地证明了即使在氧气处于绝对优势的空气氛围中($\sim 400\text{ ppm CO}_2$, 含 $\sim 21\% \text{ O}_2$), 液态金属光热体系依然能够克服热力学障碍, 选择性转化 CO_2 为固态碳材料.

进一步地, 我们利用原位质谱实时监测了空气捕获过程中的气体组分演变, 以证实反应的持续性. 如图1(c)所示, 在光照期间, 检测到反应室内空气中的 CO_2 浓度呈现持续下降趋势, 同时伴随着特征产物CO信号的逐渐增强. CO的生成表明 CO_2 经历了不完全还原的中间过程, 这是液态金属还原 CO_2 的典型路径之一^[25,26]. 质谱数据与产物Raman表征结果相互印证, 确认了该系统能够从真实的大气环境中连续、有效地捕获并转化 CO_2 , 实现了太阳能驱动直接空气碳捕获与转化.

2.2 浓度依赖的结构演变机理

为了阐明液态金属表面的动态演变及其潜在反应机理, 我们研究了不同浓度梯度(从100%到环境空气)下的太阳能聚光驱动 CO_2 转化. 采用Raman光谱监测了表面物种的变化, 如图2(a)所示, 随着 CO_2 浓度的降低, 反应体系经历了从碳层主导向氧化物竞争的转变. 在纯 CO_2 (100%)及高浓度稀释组(1%~20%)中, 光谱以强烈的碳特征峰(D峰 $\sim 1350\text{ cm}^{-1}$, G峰 $\sim 1580\text{ cm}^{-1}$)为主导.

这表明在这些条件下, 光热驱动的 CO_2 还原反应速率较快, 迅速在液态金属表面生成碳. 随着 CO_2 分压的降低(100%~1%), 碳峰强度呈现出与浓度正相关的递减趋势, 符合反应动力学受限的特征.

当反应环境引入氧气干扰时(Air和40~80 ppm), 光谱特征揭示了显著不同的竞争机制. 对于空气条件(Air, $\sim 400\text{ ppm CO}_2$, 含 $\sim 21\% \text{ O}_2$), 尽管氧气处于绝对过量状态, 拉曼光谱依然检测到了D峰和G峰, 同时伴随着低频区($< 800\text{ cm}^{-1}$)的氧化物信号, 如图2(a)及图1(b)所示^[27]. 这证明即使在富氧大气中, 光热效应依然能驱动 CO_2 转化为固态碳, 形成金属氧化物与碳共生的表面结构. 这种结构具有自适应性, 氧化层的存在并未完全阻断电子向 CO_2 的转移, 从而实现了DAC的可行性. 然而, 当 CO_2 浓度进一步降低至极低状态(40~80 ppm)时, 平衡被打破, 如图2(a)所示. 此时, 由于碳源极度匮乏, 碳沉积速率已不足以形成有效的碳产物, 氧气对Ga-In表面的氧化作用开始占据主导地位. 因此, 光谱中 $< 800\text{ cm}^{-1}$ 处的金属氧化物振动峰强度急剧增加, 显著高于空气组和稀释组. 这一现象表明, 40~80 ppm是该反应体系的临界竞争区间, 在此浓度之下, 表面物种由碳主导转变为氧化物主导. 综合动力学数据图2(b), CO_2 转化率随浓度降低呈现非线性下降. 虽然空气组的转化率受限于极低的分压, 但其转化证实了该技术在克服热力学障碍和氧气竞争方面的潜力.

通过改变反应条件, 对100% CO_2 浓度下, 太阳能聚光驱动Ga-In转化 CO_2 进行了条件优化, 并对条件优化过程中原位生成的黑色碳材料进行了Raman表征(图3). 结果表明, 随着合金中In含量的增加, 1351 cm^{-1} 处的D峰逐渐增强, 且 I_D 和 I_G 比值升高, 说明所得碳材料的无序度增加, 如图3(a). 相比之下, 图3(b)中不同光强下 I_D/I_G 比值变化较小, 整体接近1, 表明光强对所得碳材料结构的影响相对有限. 随着反应时间的延长, D峰也逐渐增强, I_D/I_G 比值进一步升高, 表明碳材料无序度有所增加, 如图3(c)所示. 这可能与反应过程中碳物种在Ga-In合金表面的持续沉积、不断聚集有关. 聚光前后Ga-In合金表面的TEM对比图也进一步说明了此情况, 如图S2所示. 基于上述结果, 我们综合 CO_2 的转化量(图S3)与Raman结构特征, 最终确定8 wt%的Ga-In合金、 4 W cm^{-2} 光强和24小时为最优的反应条件. 该条件下不仅具有较高的 CO_2 转化量, 同时所得碳材料也表现出较为合适的Raman结构特征(I_D/I_G 比值接近1.0). 此外, 如图2(c)所示, TEM显示最优条件下的产物呈现层状结

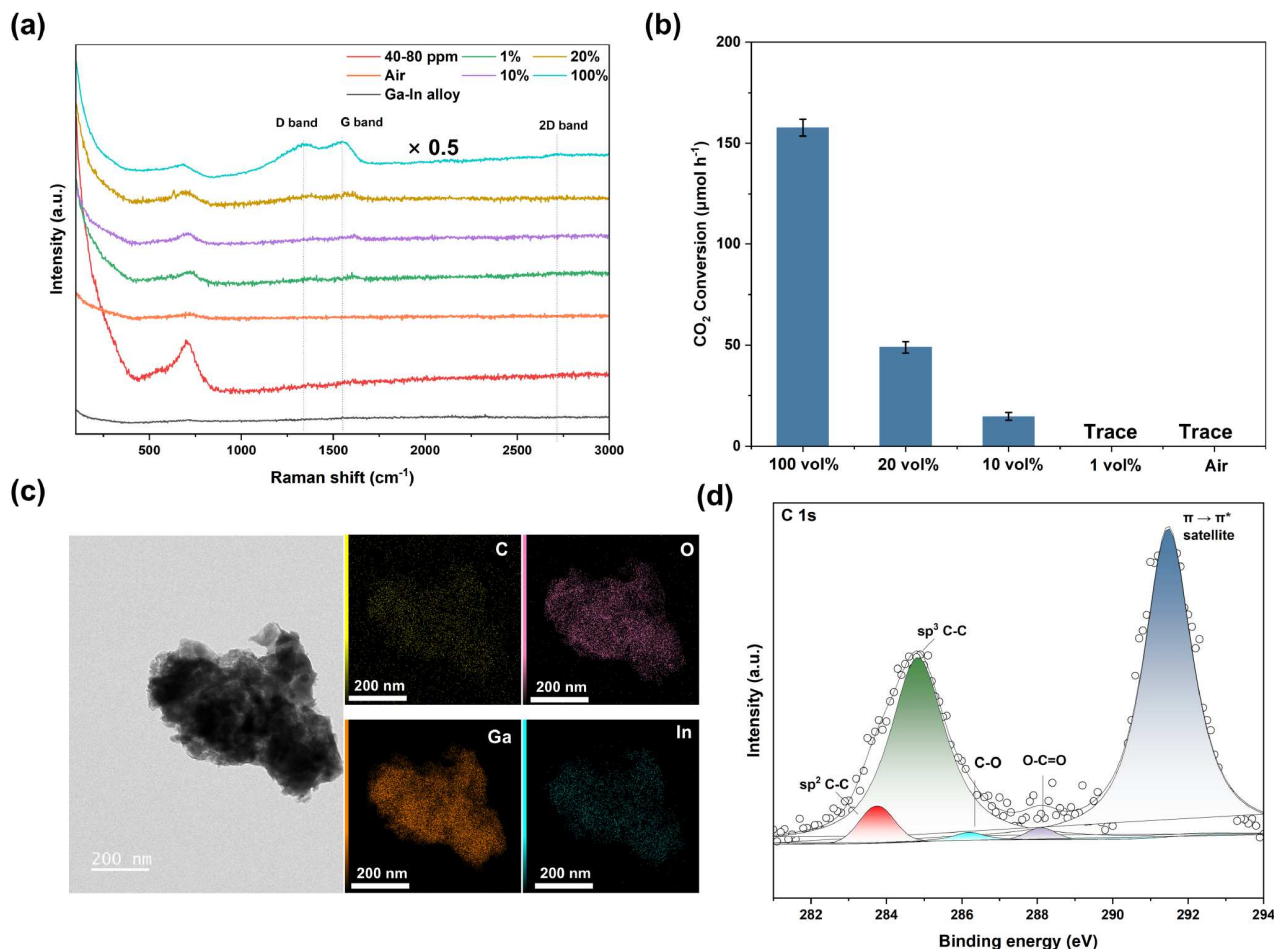


图 2 (网络版彩色)(a) 在不同CO₂浓度(从100%到空气)下合成产物的Raman光谱图; (b) 不同浓度梯度下CO₂消耗量的比较, 反应条件: 8 wt% Ga-In, 4 W cm⁻², 48 h, 30 sccm; (c) 在100% CO₂浓度条件下获得的碳质产物的TEM图像及相应的EDS元素映射; (d) 100% CO₂浓度产物的高分辨率XPS C 1s谱

Figure 2 (Color online) (a) Raman spectra of products obtained under different CO₂ concentrations, ranging from 100% CO₂ to ambient air. (b) Comparison of CO₂ consumption at different concentration gradients. Reaction conditions: 8 wt % Ga-In, 4 W cm⁻², 48 h, 30 sccm. (c) TEM image and corresponding EDS elemental mapping of the carbonaceous product obtained under 100% CO₂ conditions. (d) High-resolution XPS C 1s spectrum of the 100% CO₂ product

构, 能谱仪(energy dispersive spectrometer, EDS)元素映射证实了碳元素在微观尺度上的均匀分布, 并且伴随着金属和氧的存在。

XPS进一步揭示了其表面化学状态, 如图2(d)所示, C 1s谱图中主峰位于284.8 eV, 对应于C-C键, 同时, 在291.5 eV存在一个明显的 π - π^* 卫星峰, 该峰属于高度石墨化sp²碳网络的激发特征峰, 说明最优条件能够得到具有共轭结构的石墨化碳材料。同样地, 反应前后Ga-In合金的表面也只检测到Ga、In、C和O元素的存在, 如图4(a)-(c)所示。反应后Ga-In合金表面, In 3d的分峰拟合图4(d)中, 在442.3 eV(449.9 eV)和444.9 eV

(452.4 eV)位置分别代表In⁰和In³⁺物种的峰值, 表明反应后In元素以氧化态和金属态同时存在^[28,29]。研究结果进一步显示, 在太阳能聚光驱动CO₂还原过程中, Ga和In的表面会逐渐氧化, 如图4(e)中的O 1s和图4(f)中的Ga 2p所示。图4(e)中反应前, 合金表面已显示出表面O键的信号(532.3 eV), 这与已知液态金属在空气中形成一层薄、自钝化氧化层的情况一致。反应后, 530.7 eV附近晶格O组分增强, 表面氧物种组成发生变化, 进一步表明聚光转化CO₂过程中合金表面发生了氧化相关的界面演变^[30]。图4(f)中Ga 2p的变化也可表明Ga在反应过程中发生了表面氧化或形成Ga-O相关的物种。

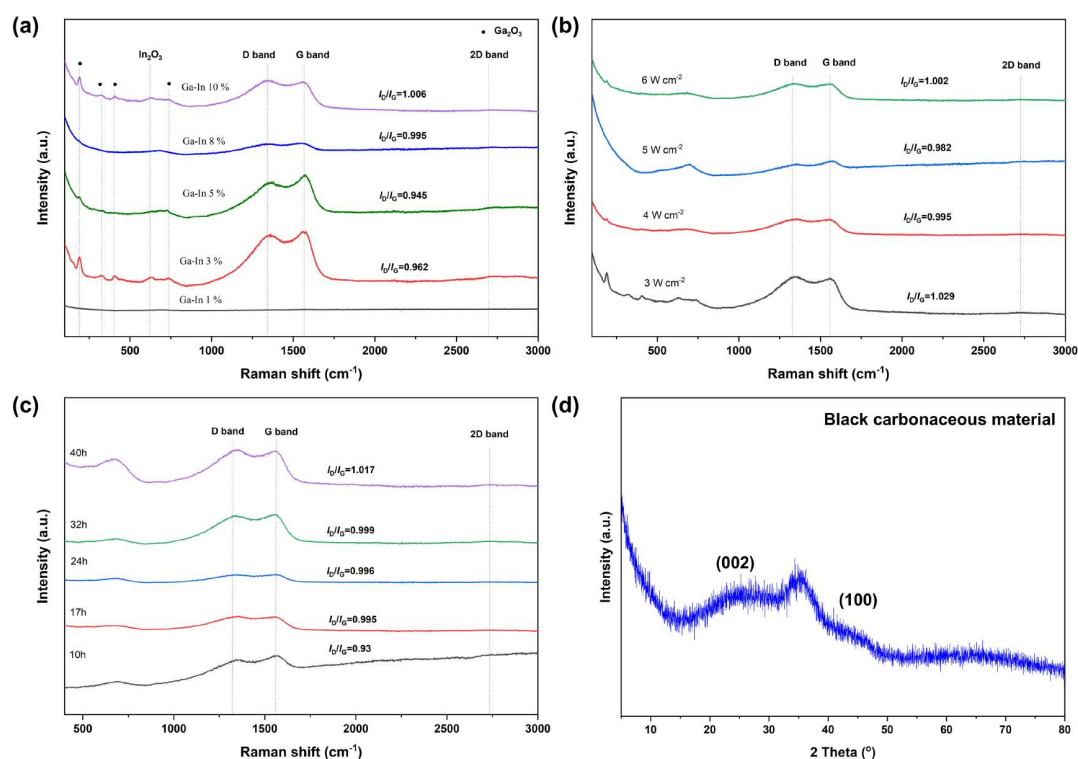


图3 (网络版彩色)100%浓度CO₂的反应条件优化图. Raman测试: (a) 不同Ga-In合金含量, (b) 不同光强, (c) 不同反应时间. 黑色碳材料: (d) XRD; 反应条件: 8 wt% Ga-In, 4 W cm⁻², 24 h, 99.99% CO₂

Figure 3 (Color online) Optimization of reaction conditions under 100% CO₂. Raman analysis: (a) different Ga-In alloy contents, (b) different light intensities, (c) different reaction times. Black carbonaceous material: (d) XRD; reaction conditions: 8 wt% Ga-In, 4 W cm⁻², 24 h, 99.99% CO₂

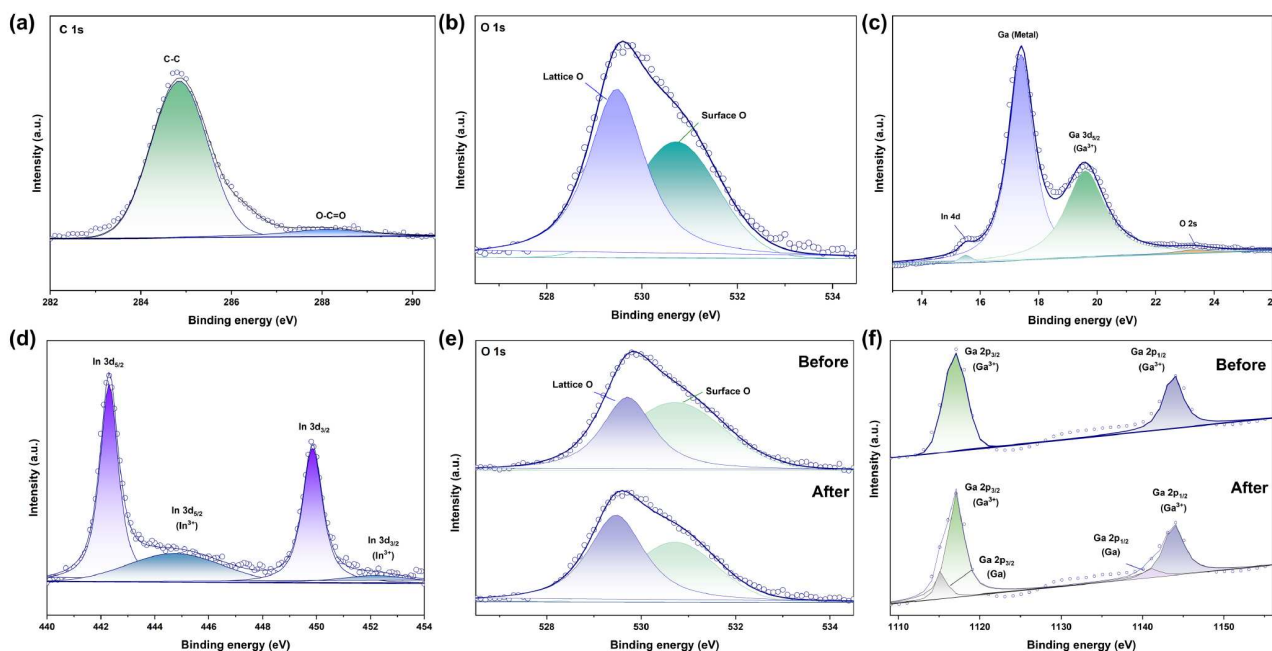


图4 (网络版彩色)100% CO₂浓度下, 聚光后XPS对比图: (a) C 1s, (b) O 1s, (c) Ga 3d, (d) In 3d. 聚光前后对比: (e) O 1s, (f) Ga 2p

Figure 4 (Color online) XPS spectra of the Ga-In alloy after the concentrated-solar-driven CO₂ conversion under 100% CO₂: (a) C 1s, (b) O 1s, (c) Ga 3d, (d) In 3d; spectral comparison before and after the concentrated-solar-driven for (e) O 1s, (f) Ga 2p

从图3(d)XRD衍射图中可看出黑色碳基材料大多为非晶的无定形碳,而26°和44°左右的两个峰,分别对应石墨结构的(002)及(100)晶面^[31,32],这也表明在理想条件下该体系能高效地将CO₂还原为具有石墨化的碳材料。

2.3 CO₂转化为碳基电极的电催化OER性能

为了评估该聚光策略的应用潜力,我们将转化得到的碳基产物直接负载于碳纸上,制备成工作电极并测试其析氧反应(OER)的性能^[33]。图5(a)展示了样品的线性扫描伏安(LSV)曲线。结果显示,与没有任何催化活性的空白碳纸相比,所有源自CO₂的碳基电极均表现出了显著的OER活性。这表明,即便是从稀薄空气中直接捕获并原位生成的碳材料,依然具备有效的电催化活性位点,成功实现了从温室气体到能源材料的转化。

为了深入探究氧化物掺杂对催化机理的影响,我

们对比了不同样品的反应动力学参数。尽管空气组样品的导电性受限,但其塔费尔斜率(Tafel slope)(433.5 mV dec⁻¹)与100%高纯组(419 mV dec⁻¹)非常接近,如图5(b)所示^[34]。这意味着两者的表面反应动力学机制并无本质差异,也表明原位生成的氧化物并非完全的惰性杂质,它们可能通过与碳层的电子相互作用或提供亲水位点,维持了较高的本征催化活性,从而抵消了部分导电性下降带来的负面影响^[35]。此外,电催化活性面积(electrochemical active surface area, ECSA)的测试结果也进一步佐证了这一点,高浓度的CO₂衍生样品表现出比商用Pt/C更大的电催化活性面积(5.51 mF cm⁻² vs 2.13 mF cm⁻²),为高效催化提供了充足的位点。

电化学阻抗谱(electrochemical impedance spectroscopy, EIS)进一步揭示了结构与性能之间的权衡关系,如图5(c)所示。随着CO₂浓度的降低, Nyquist图中的半

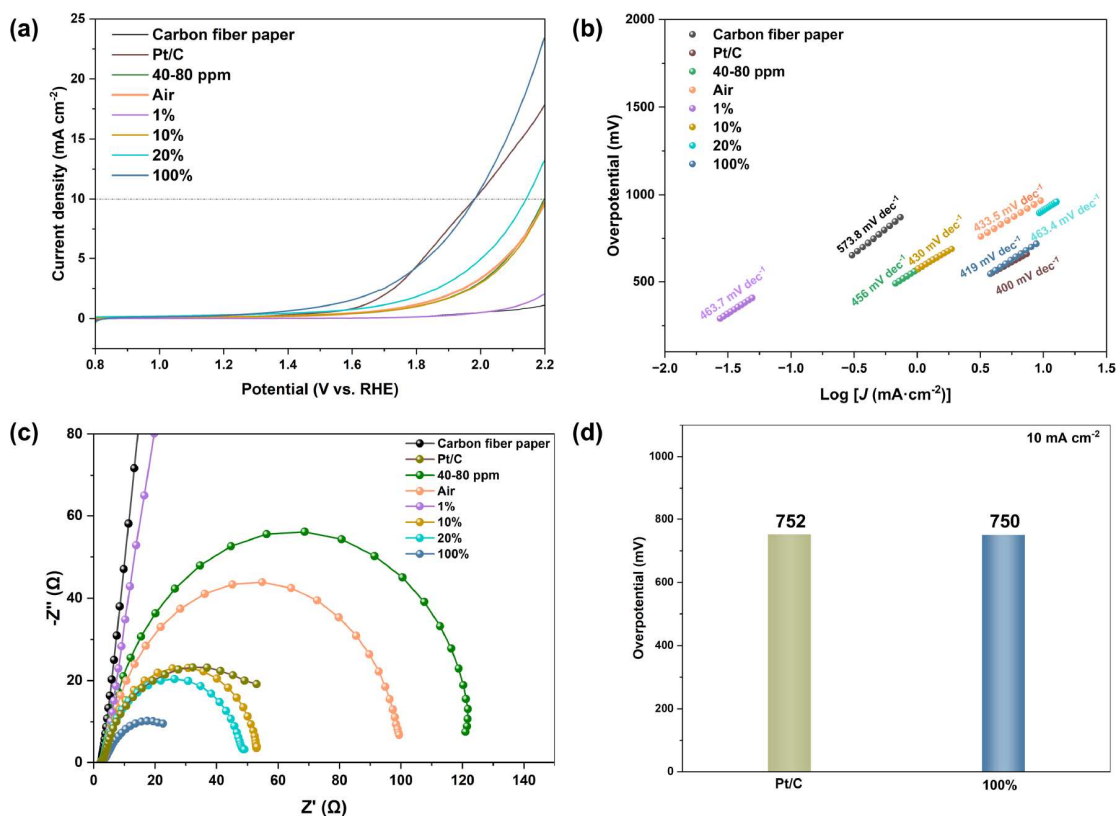


图 5 (网络版彩色)(a) 从100%到空气环境的CO₂源电极的LSV极化曲线; (b) 从LSV极化曲线得到的Tafel图; (c) EIS测量的Nyquist图; (d) 在10 mA cm⁻²下, 从100%浓度CO₂制备的碳电极与商业Pt/C催化剂的超电位对比

Figure 5 (Color online) (a) LSV polarization curves of electrodes derived from CO₂ sources ranging from 100% to ambient air. (b) Tafel plots derived from the LSV curves. (c) Nyquist plots from EIS measurements. (d) Comparison of overpotentials at 10 mA cm⁻² between the 100% CO₂-derived carbon electrode and commercial Pt/C catalyst

圆直径(电荷转移电阻 R_{ct})逐渐增大, 空气组呈现出较大的阻抗值, 这与图2(a)Raman光谱中观察到的氧化物含量增加相一致. 半导体性质的金属氧化物降低了材料的整体导电率, 限制了电子在大电流下的传输效率^[31]. 然而, 即便如此, 空气组的阻抗仍远优于未修饰的基底.

最后, 作为该技术的性能上限展示, 我们对比了100% CO₂衍生电极与商用Pt/C催化剂的性能, 如图5(d)所示. 在10 mA cm⁻²的电流密度下, 100%组的过电位(750 mV)与商用Pt/C(752 mV)相当, 展现出了媲美碳基贵金属催化剂的效率. 进一步采用计时电位法评估了100% CO₂衍生电极的OER稳定性, 结果表明其在1 mol/L KOH电解液中, 以100 mA cm⁻²恒定电流可以稳定运行130 min(图S5). 这一结果构建了一个完整的策略: 在工业高浓度排放场景下, 该技术可制备具有商用水平的高性能电极; 而在极具挑战的大气低浓度场

景下, 该技术则提供了一种零原料成本、无需富集的可行碳捕集、利用与封存(carbon capture, utilization and storage, CCUS)路径.

3 结论

本文提出一种绿色资源化利用CO₂技术, 在太阳能聚光驱动下实现了从环境空气条件下CO₂(~400 ppm)到碳基(OER)电极材料的新路径, 并且在电解水OER反应中展现了较好的催化性能. 特别是100%浓度CO₂(即高浓度CO₂)下得到的碳材料电极, 通过LSV、ECSA、Tafel斜率以及EIS等电化学测试对比发现, 其具有与商业Pt/C电极相当的OER性能. 这一方法展示了将太阳能和CO₂资源化利用以及电解水制氢相结合的独特优势, 为CO₂处理提供了可行的解决路径, 并进一步推动了清洁能源制氢技术的发展.

参考文献

- Deng Z, Zhu B, Davis S J, et al. Global carbon emissions and decarbonization in 2024. *Nat Rev Earth Environ*, 2025, 6: 231–233
- IEA. Global Energy Review 2025. <https://iea.blob.core.windows.net/assets/ff5e4f91-815f-4f48-874d-4c1da760dded/GlobalEnergyReview2025.pdf>
- Rochelle G T. Amine scrubbing for CO₂ capture. *Science*, 2009, 325: 1652–1654
- Cuéllar-Franca R M, Azapagic A. Carbon capture, storage and utilisation technologies: a critical analysis and comparison of their life cycle environmental impacts. *J CO₂ Utilization*, 2015, 9: 82–102
- Yang Y, Zhang H, Wang Y, et al. Integrating enrichment, reduction, and oxidation sites in one system for artificial photosynthetic diluted CO₂ reduction. *Adv Mater*, 2023, 35: 2304170
- Sanz-Pérez E S, Murdock C R, Didas S A, et al. Direct capture of CO₂ from ambient air. *Chem Rev*, 2016, 116: 11840–11876
- Zuraiqi K, Zavabeti A, Clarke-Hannaford J, et al. Direct conversion of CO₂ to solid carbon by Ga-based liquid metals. *Energy Environ Sci*, 2022, 15: 595–600
- Esrafilzadeh D, Zavabeti A, Jalili R, et al. Room temperature CO₂ reduction to solid carbon species on liquid metals featuring atomically thin ceria interfaces. *Nat Commun*, 2019, 10: 865
- Huang Z, Deng R, Zhang R, et al. Interpretable machine learning unravels synergistic effects in photothermal CO₂ methanation. *Chin Chem Lett*, 2025, 111909
- He W, Xi J, He T P, et al. Application of solar-driven inorganic semiconductor-microbe hybrids in carbon dioxide fixation and biomanufacturing (in Chinese). *Chin J Inorg Chem*, 2025, 41: 35–44 [何为, 席京, 贺天培, 等. 太阳能驱动的无机半导体-微生物杂化体系在二氧化碳固定和生物制造中的应用. *无机化学学报*, 2025, 41: 35–44]
- Brinckerhoff P. Accelerating the Uptake of CCS: Industrial Use of Captured Carbon Dioxide. Global CCS Institute, 2011
- Wang X, Chen J, Su Y, et al. Reaction and reactor designs for improving electrochemical CO₂ capture. *Device*, 2025, 3: 100837
- Cao Y, Huang Z, Han C, et al. Product peroxidation inhibition in methane photooxidation into methanol. *Adv Sci*, 2024, 11: 2306891
- Li M, Wu S, Liu D, et al. Engineering spatially adjacent redox sites with synergistic spin polarization effect to boost photocatalytic CO₂ methanation. *J Am Chem Soc*, 2024, 146: 15538–15548
- Cao Y, Guo R, Ma M, et al. Effects of electron density variation of active sites in CO₂ activation and photoreduction: a review. *Acta Physico-Chim Sin*, 2024, 40: 2303029 [曹明晗, 郭瑞, 马敏智, 等. 活性位点电子密度变化对光催化CO₂活化和选择转化的影响. *物理化学学报*, 2024, 40: 2303029]
- Zhang K, Huang Z, Yang M, et al. Recent progress in melt pyrolysis: fabrication and applications of high-value carbon materials from abundant sources. *SusMat*, 2023, 3: 558–580
- Zhou Y, Huang Z, Zhang K, et al. Economic analysis of hydrogen production and refueling station via molten-medium-catalyzed pyrolysis of natural gas process. *Int J Hydrogen Energy*, 2024, 62: 1205–1213

- 18 Yang M, Huang Z, Zhou Y, et al. Co-production of few-layer graphene and hydrogen from methane pyrolysis based on Cu and metal oxide-KCl molten medium (in Chinese). *J Inorg Mater*, 2025, 40: 473–480 [杨茗凯, 黄泽皓, 周芸霄, 等. 基于Cu与金属氧化物-KCl熔融介质的甲烷热解制备少层石墨烯与氢气联产研究. *无机材料学报*, 2025, 40: 473–480]
- 19 Ye L, Syed N, Wang D, et al. CO₂ reduction on the Li–Ga liquid metal surface. *J Mater Chem A*, 2023, 11: 8809–8816
- 20 Irfan M, Zuraiqi K, Nguyen C K, et al. Liquid metal-based catalysts for the electroreduction of carbon dioxide into solid carbon. *J Mater Chem A*, 2023, 11: 14990–14996
- 21 Wang X, Su Y, Chen J, et al. Revisiting Pt foil catalysts for formamide electrosynthesis achieved at industrial-level current densities. *Nat Commun*, 2025, 16: 8040
- 22 Gong S, Han X, Li W, et al. Paired electrolysis for efficient coproduction of CO and S₈ with techno-economic analysis. *Chem Eng J*, 2025, 507: 160286
- 23 Alli Y A, Ejeromedoghene O, Dembaremba T O, et al. Perspectives on the status and future of sustainable CO₂ conversion processes and their implementation. *Carbon Capture Sci Tech*, 2025, 16: 100496
- 24 Xia Q, Zhang K, Zheng T, et al. Integration of CO₂ capture and electrochemical conversion. *ACS Energy Lett*, 2023, 8: 2840–2857
- 25 Gu J, Zhang Y, Zhang Y, et al. Dynamic interface catalysis and carbon dioxide reduction of liquid metals. *Dalton Trans*, 2025, 54: 14990–15008
- 26 Ruffman C, Steenberg K G, Gaston N. An atomic-scale explanation for the high selectivity towards carbon dioxide reduction observed on liquid metal catalysts. *Angew Chem Int Ed*, 2024, 63: e202407124
- 27 Berengue O M, Rodrigues A D, Dalmaschio C J, et al. Structural characterization of indium oxide nanostructures: a Raman analysis. *J Phys D-Appl Phys*, 2010, 43: 045401
- 28 Huang C, Yang X, Gong S, et al. Hierarchical-structured RGO@EGaIn composites as advanced self-healing anode for room-temperature liquid metal battery. *Adv Mater*, 2025, 37: 2419060
- 29 Duan L, Zhou T, Mu W, et al. Liquid-metal molecular scissors. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2024, 16: 4212–4221
- 30 Zhang Y, He Q, Yang H, et al. Liquid-metal-based spin-coating exfoliation for atomically thin metal oxide synthesis. *Nano Lett*, 2024, 24: 6247–6254
- 31 Luo H, Zhang L, Yang H, et al. Spontaneous phase transition and multistage interfacial mechanical friction of liquid metals induced CO₂ reduction at room temperature. *Adv Funct Mater*, 2025, 35: 2413156
- 32 Huang C, Guo B, Wang X, et al. Alkali-ion batteries by carbon encapsulation of liquid metal anode. *Adv Mater*, 2024, 36: 2309732
- 33 Han M, Shi M, Wang J, et al. Efficient bifunctional Co/N dual-doped carbon electrocatalysts for oxygen reduction and evolution reaction. *Carbon*, 2019, 153: 575–584
- 34 Zhang Q, Han W, Xu Z, et al. Hollow waxberry-like cobalt–nickel oxide/S,N-codoped carbon nanospheres as a trifunctional electrocatalyst for OER, ORR, and HER. *RSC Adv*, 2020, 10: 27788–27793
- 35 Coleman E J, Chowdhury M H, Co A C. Insights into the oxygen reduction reaction activity of Pt/C and PtCu/C catalysts. *ACS Catal*, 2015, 5: 1245–1253

补充材料

图S1 红外热成像仪检测Ga-In液态金属表面的温度

图S2 100% CO₂浓度下, 太阳能聚光前后Ga-In合金表面的TEM-EDS对比图

图S3 100%浓度CO₂下反应条件优化过程中CO₂转化的量

图S4 以LSV测试为例, 样品的重复性测试结果

图S5 100% CO₂衍生电极在100 mA cm⁻²恒电流下的稳定性测试

本文以上补充材料见网络版csb.scichina.com. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

Summary for “太阳能聚光催化CO₂制备碳及其用于析氧反应的性能研究”

Concentrated solar catalytic conversion of CO₂ to carbon for the oxygen evolution reaction

Kuikui Zhang^{1,2}, Mingkai Yang², Zeai Huang^{1,2*}, Hao Tan², Tong Liu², Yi Liu² & Ying Zhou^{1,2*}

¹ State Key Laboratory of Oil and Gas Reservoir Geology and Exploitation, Southwest Petroleum University, Chengdu 610500, China

² School of New Energy and Materials, Southwest Petroleum University, Chengdu 610500, China

* Corresponding authors, E-mail: zeai.huang@swpu.edu.cn; yzhou@swpu.edu.cn

Direct capture and conversion of carbon dioxide (CO₂) from ambient air is an attractive pathway for carbon resource utilization. However, its practical implementation remains highly challenging because of the extremely low partial pressure of CO₂ and the overwhelming presence of oxygen. As a result, most current approaches still rely on energy-intensive pre-enrichment before conversion. Here, we report a pre-enrichment-free strategy for direct CO₂ conversion over a wide concentration range, from pure CO₂ to ambient air (~400 ppm), using a Ga-In liquid metal system in a concentrated-solar-driven process.

In this concentrated-solar-driven system, the Ga-In alloy functions as both a broadband light absorber and a thermally responsive interfacial medium. The absorbed solar energy is converted into localized heat, which promotes interfacial reactions at the gas-liquid boundary and induces the formation of solid carbon-based products on the liquid metal surface. The experimental results reveal a clear concentration-dependent evolution of product structure. At high CO₂ concentrations, the products are dominated by carbon phases with a relatively high degree of graphitization. As the CO₂ concentration decreases and the competitive effect of oxygen becomes more pronounced, the products gradually evolve into metal oxide/carbon composite structures. In particular, a critical transition region is observed in the 40–80 ppm range, where the competition between carbon deposition and oxide formation becomes especially evident.

The products obtained under different gas compositions were characterized by Raman, XPS, TEM-EDS, and XRD. These results collectively indicate that high CO₂ concentrations favor the formation of graphitized carbon, whereas under air conditions, the products consist of carbonaceous species coexisting with metal oxides at the interface.

To evaluate their application potential, the as-obtained carbon-based products were directly loaded onto carbon paper and tested as working electrodes for the oxygen evolution reaction (OER). All CO₂-derived samples exhibited measurable OER activity. Among them, the sample prepared under 100% CO₂ showed the best performance, delivering an overpotential of 750 mV at 10 mA cm⁻², which is comparable to that of commercial Pt/C (752 mV). Although the air-derived sample showed somewhat reduced conductivity because of its higher oxide content, it still maintained effective electrocatalytic activity.

Overall, this work demonstrates the feasibility of directly converting dilute atmospheric CO₂ into functional carbon-based materials without pre-enrichment and further shows that the derived products can be directly applied to OER electrocatalysis. These findings highlight the broad adaptability of the concentrated-solar-driven liquid-metal system to CO₂ sources ranging from high concentrations to ambient air and provide a new perspective for low-cost, green, and scenario-flexible carbon cycling.

concentrated solar, liquid metal, CO₂, carbon-based materials

doi: [10.1360/CSB-2026-0300](https://doi.org/10.1360/CSB-2026-0300)