国家纳米中心在端炔与二氧化碳羧化研究中获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/10744.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

近日，国家纳米科学中心研究员唐智勇课题组在温和条件下催化制备不饱和羧酸研究中获得进展，通过构筑酰胺键功能化的氧化石墨烯/银复合催化剂实现端炔类化合物与二氧化碳反应高效生成羧酸，设计的催化剂表现出循环稳定性。相关研究成果发表在*Matter*上。

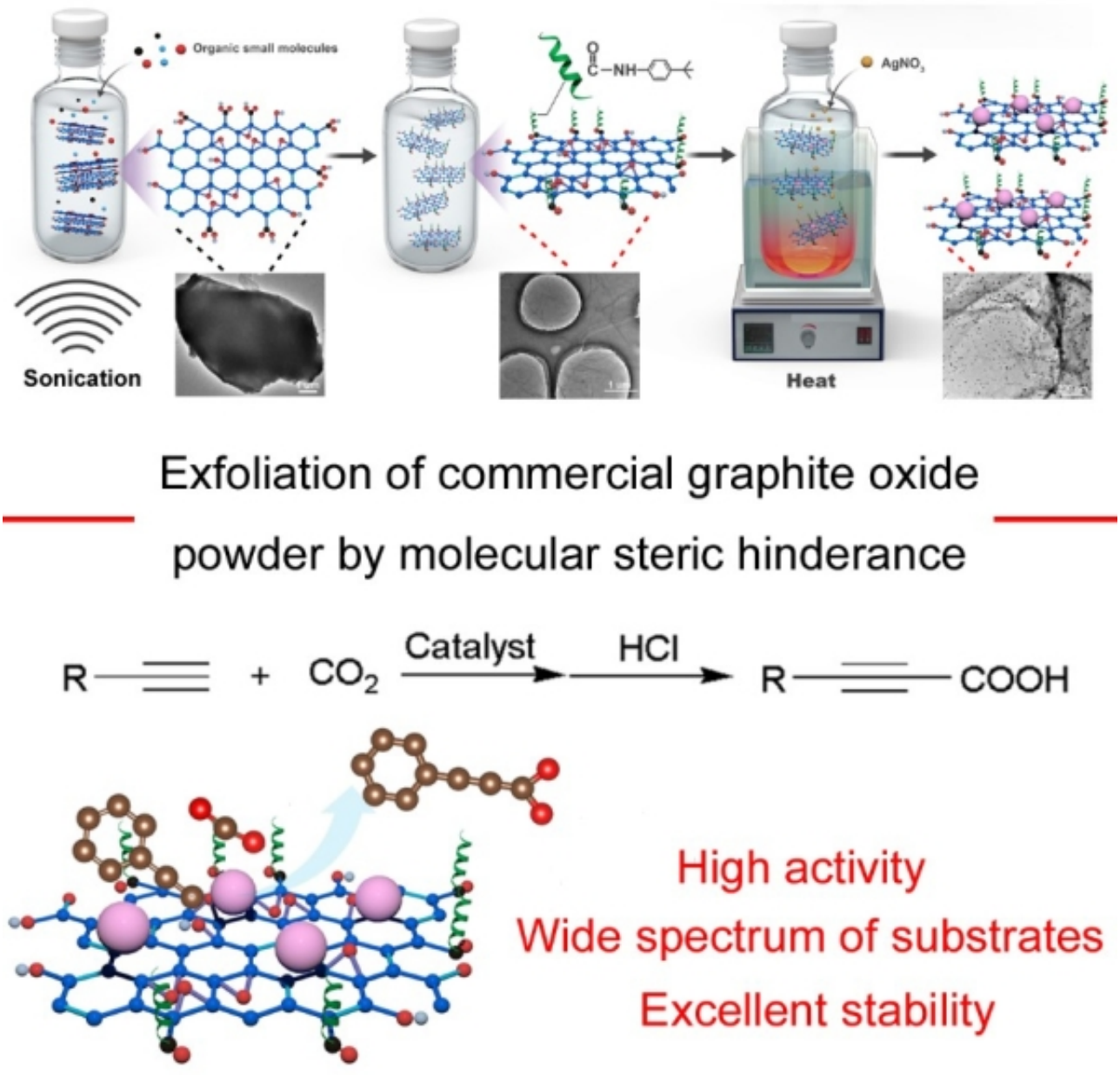
端炔与CO_2的羧基化反应可以解决二氧化碳排放的问题，合成高附加值的重要化学原料不饱和羧酸。对于羧酸类化合物的合成，其中一种方法是使用CO_2作为亲电试剂与碳亲核试剂反应。但该方法需要高度敏感的有机金属试剂，例如强亲核试剂有机锂和格氏试剂，这给大规模生产带来困难和挑战；另一种策略是直接活化C-H键，使末端炔烃与二氧化碳反应生成羧酸。近年来报道基于含铜配位聚合物、银纳米粒子复合催化剂展现出较好的催化活性，仍存在一些问题，如催化位点利用不够充分、苛刻的反应条件、底物普适性差等。

基于二维材料的复合催化剂受到关注。这些催化剂具有充分暴露的活性位点、增强的物质传递速率、清晰的表界面等优点。但对于廉价易得的氧化石墨粉末，难以制备具有均一形貌可控的二维材料复合催化剂。因此，唐智勇课题组通过在超声过程中加入叔丁基对苯胺分子与氧化石墨（GO）粉末中的羧基反应，开发出空间位阻，能够有效剥离及大量生产超薄ter-GO氧化石墨烯纳米片（如图）；形成的酰胺键利于捕捉二氧化碳，氧化石墨烯表面丰富的羟基和环氧基起到稳定保护银纳米粒子作用。研究表明，在40 ℃和常压条件下，合成的Ag/ ter-GO在24小时内有效催化苯乙炔转化为苯丙酸，转化率达到97.2%，催化剂的转化频率高达3.12 h^{-1}。

该方法简单、绿色和高效；可制备厚度为4 nm的功能化氧化石墨烯；通过改变叔丁基对苯胺的添加量，实现对氧化石墨烯层间距的可控调节。这些为大规模生产高质量GO纳米片提供有效途径，为开发新一代二维材料复合催化剂带来更多机会。

研究工作得到中科院战略性先导科技专项（B类）和国家自然科学基金委等项目的支持。国家纳米中心研究员唐智勇为论文通讯作者，特别研究助理、博士生张小飞为论文第一作者。

论文链接



Ag/tert-GO复合催化剂的合成示意图以及端炔二氧化碳羧化路径图

研究团队单位：国家纳米科学中心

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发