中美科学家合作实现多孔液体催化新突破

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/15935.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！

中美科学家合作实现多孔液体催化新突破。2021年9月22日，南昌大学彭洪根教授、王红明研究员团队与美国橡树岭国家实验室/田纳西大学戴胜教授团队合作在Chem上发表了一篇题为A bifunctional zeolitic porous liquid with incompatible Lewis pairs for antagonistic cascade catalysis的研究成果。

该研究通过在多孔液体中利用位阻效应引入酸-碱双功能活性位点，成功实现了多孔液体在一锅催化反应中的应用并展现出优异的催化反应性能。

论文通讯作者是彭洪根、王红明、戴胜；第一作者是美国橡树岭国家实验室/田纳西大学博士后陈皓博士、Staff Scientist
杨珍珍博士及南昌大学资源环境与化工学院/化学学院彭洪根教授；第一单位是南昌大学。

化工产品生产一般由多个反应步骤才能完成同时亦需要催化剂参与反应过程，中间产物需要经过多步的分离、纯化过程，过程繁琐、能耗过高，亦造成温室气体二氧化碳的过量排放。一锅串联催化反应(A—)B→C⋯)是指将多步反应过程在一锅内同时催化反应得到最终产品，省去了中间体的分离和纯化步骤，显著降低能耗，对我国实现碳达峰-碳中和战略具有积极意义。然而，串联催化反应至少存在两个方面的局限性：（1）串联反应催化剂设计具有挑战性，如需要酸-碱双活性位的催化反应过程，酸-碱活性位点易发生中和反应而失去活性；（2）其次，为了锚定酸-碱等双活性位点，必须采用具有刚性结构、核-壳或蛋黄-壳纳米结构的非均相纳米材料，反应物难以同时接触两类催化反应中心。开发并设计新型双功能酸碱催化剂，实现固体酸/碱活性位点间的有效分隔且反应物能快速扩散至两类反应中心，仍是一锅串联催化反应过程/技术的巨大挑战。

具有永久孔道结构的多孔液体已经成为一类新型多孔材料，是通过将固体空腔分散到液体中而液体不进入空腔，同时具有固体（孔道结构）和液体（流动性）的优点，在气体存储/分离和药物传输等领域具有广阔的应用前景。但多孔液体在催化领域特别是在一锅串联催化反应过程中鲜有文献报道。

近日南昌大学彭洪根教授基于其丰富的串联催化反应经历并结合美国橡树岭国家实验室/田纳西大学戴胜教授在多孔液体领域的开创性工作，赋予多孔液体中的多孔固体和离子液体不同的酸-碱双活性位点，首次将多孔液体用于串联催化反应过程，完美呈现了多孔液体的结构特性。本工作中我们制备得到具有MWW结构的超薄层状MCM-22沸石分子筛并将其与离子液体（三辛基甲基氯化铵(TOMAC)）进行组装，由于MCM-22孔道内具有丰富的酸性位点，而TOMAC具有高浓度的路易斯碱性位点，利用空间位阻效应，成功得到了一种具有稳定酸-碱双功能活性位点的多

孔液体催化剂（MCM-22-PL），并用于deacetalization – Knoevenagel一锅串联催化反应，表现出优异的催化性能及超强的稳定性（固体含量>25%，存放2年以上仍未发生相分离）。

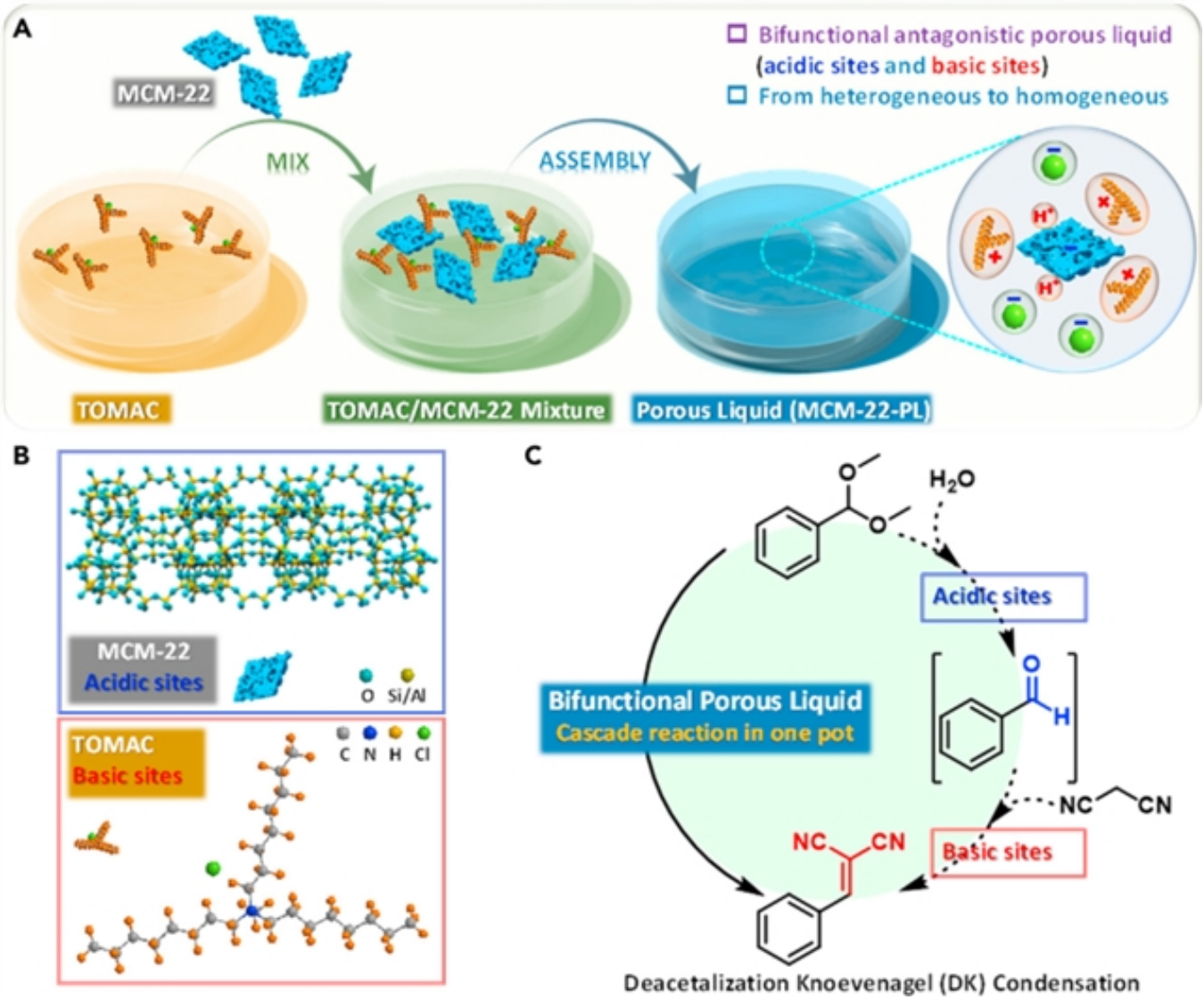


图1：酸碱双功能多孔液体（MCM-22-PL）制备及其催化deacetalization – Knoevenagel一锅反应示意图。

其原因在于：(1)通过控制孔隙率和调节电子性质形成双功能酸碱稳定体系；(2)通过与离子液体组装实现MCM-22由非均相向均相转变；(3)多孔液体结构中的空腔保证快速传质；(4)酸性中心与碱性中心的适当距离可以保证稳定的同时亦具有协同作用。南昌大学高等研究院王红明研究员的DFT理论计算结果表明，此反应除存在传统的苯甲醛反应路径外，还存在以半缩醛为中间体的第二种反应途径并得到了液相原位红外实验的证实。

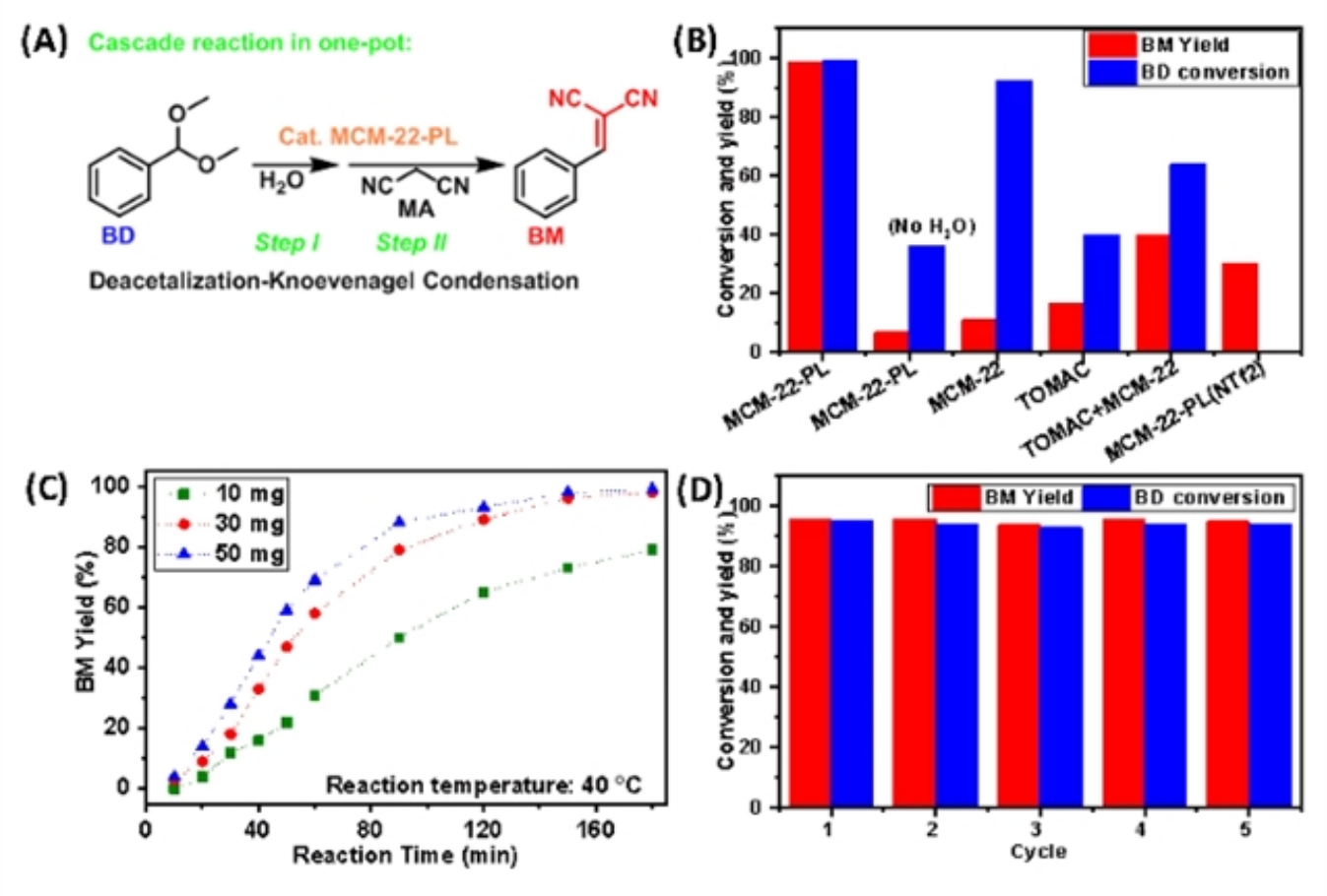


图2：MCM-22-PL催化deacetalization – Knoevenagel一锅反应性能。

爱科学
iikx.com

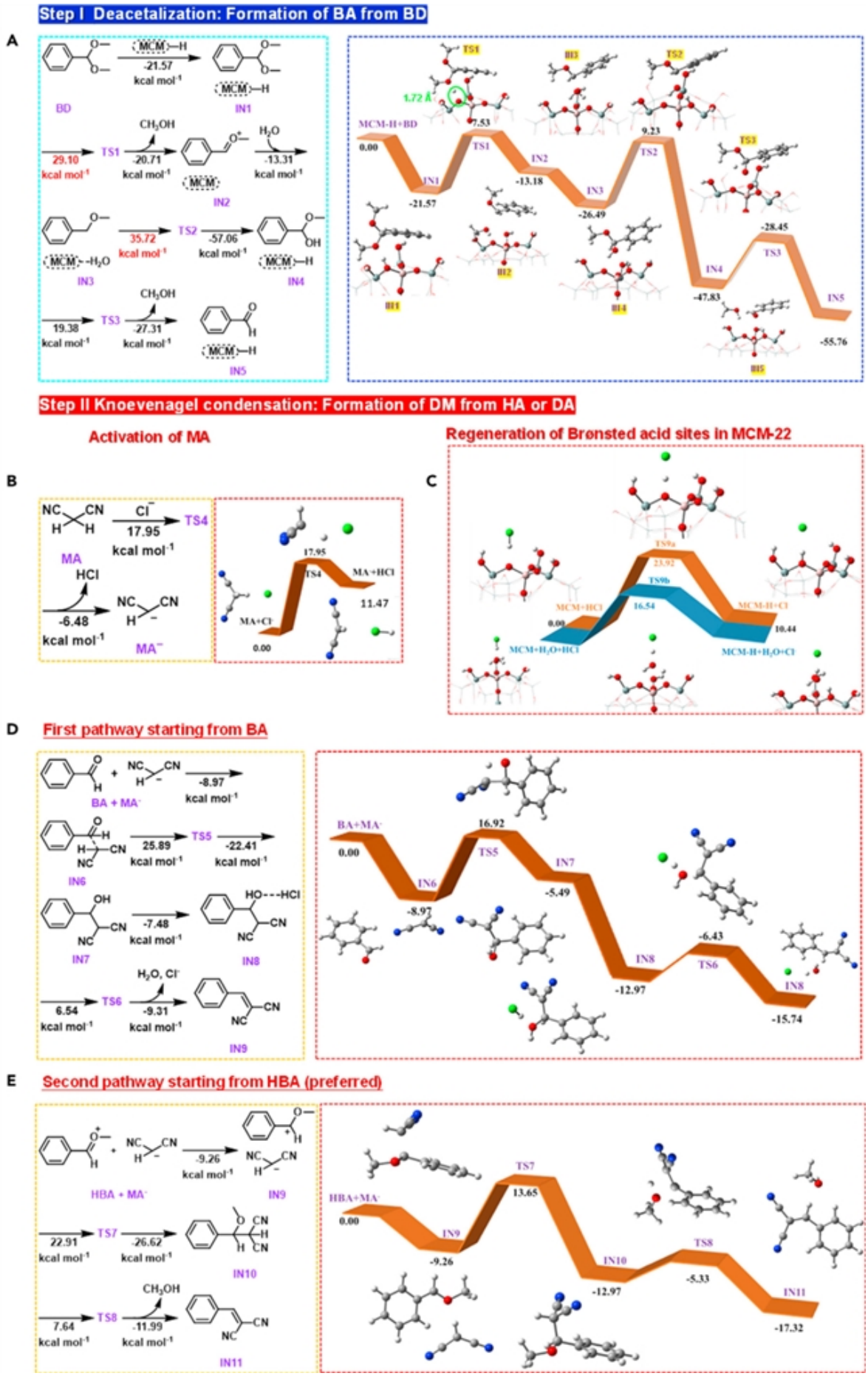

Step I Deacetalization: Formation of BA from BD
A
BD
IN1
TS1
IN2
IN3
TS2
IN4
TS3
IN5
Step II Knoevenagel condensation: Formation of DM from HA or DA
Activation of MA
B
MA
MA⁻
TS4
Regeneration of Brønsted acid sites in MCM-22
C
TS9a
TS9b
D
First pathway starting from BA
BA + MA⁻
IN6
TS5
IN7
IN8
TS6
IN9
E
Second pathway starting from HBA (preferred)
HBA + MA⁻
IN9
TS7
IN10
TS8
IN11

图3：DFT理论计算研究。

（来源：科学网）

相关论文信息：https://doi.org/10.1016/j.chempr.2021.08.022

作者：彭洪根等 来源：《化学》

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