核磁共振与分子科学交叉研究院在《JACS》发表最新研究成果：热催化CO2转化

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/39740.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！

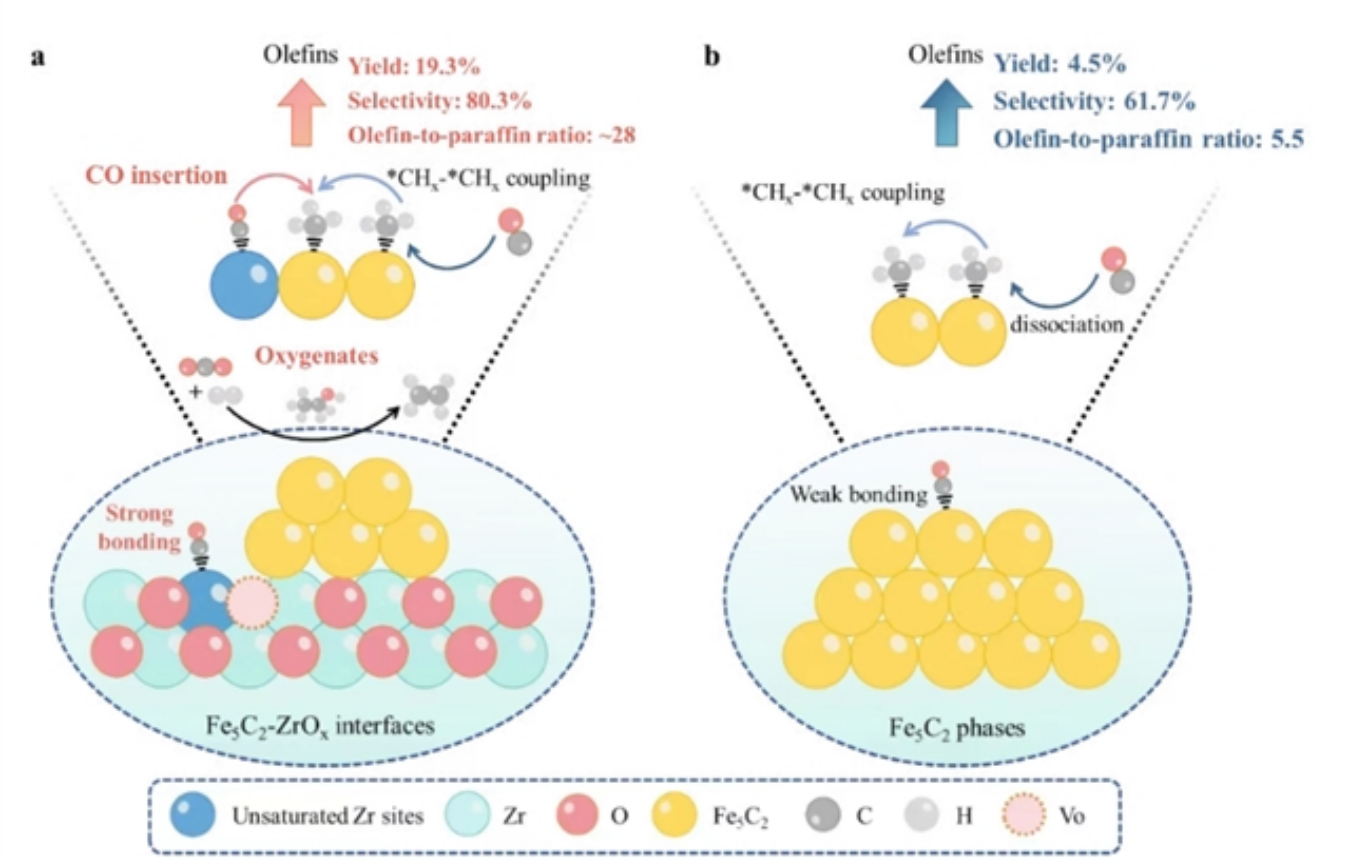
核磁共振与分子科学交叉研究院在《JACS》发表最新研究成果：热催化CO2转化。

近日，化学与化工学院/核磁共振与分子科学交叉研究院郑安民/刘国亮教授团队在《Journal of the American Chemical Society》上发表题为Unsaturated ZrOx sites boost C-C coupling for selective CO2 hydrogenation to olefins的重要研究论文。郑安民教授、刘国亮教授、武汉大学洪昕林教授与香港理工大学李光超教授为共同通讯作者，刘唐康博士为第一作者。

在全球烯烃需求持续增长、石油资源日益紧缺的背景下，利用可再生资源将CO2直接加氢制烯烃，已成为实现温室气体资源化利用的关键路径。目前，CO2制烯烃主要包括CO2改性费托合成（CO2-FTS）和甲醇介导的氧化物-分子筛串联催化两条技术路线。其中，后者普遍存在CO选择性高（30~50%）、CO2转化率低的问题；而铁基CO2-FTS催化剂虽成本低、单程转化率高，但易过度生成甲烷与烷烃，烯烃/烷烃（O/P）比例通常仅为2~10。现有碱金属、Zn、Cu等改性手段虽能在一定程度上降低烷烃选择性，但仍难以同时抑制CO和甲烷的生成。因此，开发一种兼具低C1副产物、高烯烃收率与超高O/P比的稳定催化体系，仍是亟待解决的核心挑战。

针对上述难题，研究团队从不饱和位点协同催化的全新视角出发，成功开发出高效的Na-Fe/a-ZrO2催化剂。在320 ° C、1 MPa条件下，该催化剂实现了80.3%的烯烃选择性，烯烃/烷烃（O/P）比高达约28，CO+CH4总选择性低于25%，并在162小时连续运行中保持良好稳定性。研究表明，不饱和ZrOx位点可通过强金属-载体相互作用，促使活性Fe物种完全转化为高活性的χ-Fe5C2相，从而构建丰富的Fe5C0-ZrOx界面。在该界面微环境中，不饱和ZrOx位点对CO分子表现出更强的非解离吸附亲和力，能够优先将非解离活化的CO物种富集于界面区域；随后，这些CO分子选择性插入到邻近χ-Fe5C2位点上的烷基物种中，实现高效的C-C偶联反应。催化剂表面丰富的不饱和ZrOx位点显著加速了经由C2+含氧化合物中间体的烯烃合成过程，将烯烃合成速率与选择性分别从传统Fe基催化剂的4.5%和61.7%大幅提升至19.3%和80.3%。在实验方法上，本研究首次将原位同步辐射光电离质谱技术与原位红外二维相关光谱相结合，从分子层面直接观测并解析了由不饱和ZrOx位点诱导的CO插入机制。

该研究首次证实了不饱和ZrOx位点强化CO2加氢制烯烃的催化机制，开辟了通过缺陷工程理性设计高效CO2加氢制烯烃催化剂的新策略，对CO2资源化利用及工业催化的发展具有重要科学意义。



本研究获得了国家重点研发计划、国家自然科学基金、湖北省自然科学基金以及武汉市自然科学基金等项目的大力支持。

来源：武科大核磁共振交叉研究院

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