中国科大等在二氧化碳加氢制甲醇研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/4922.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！

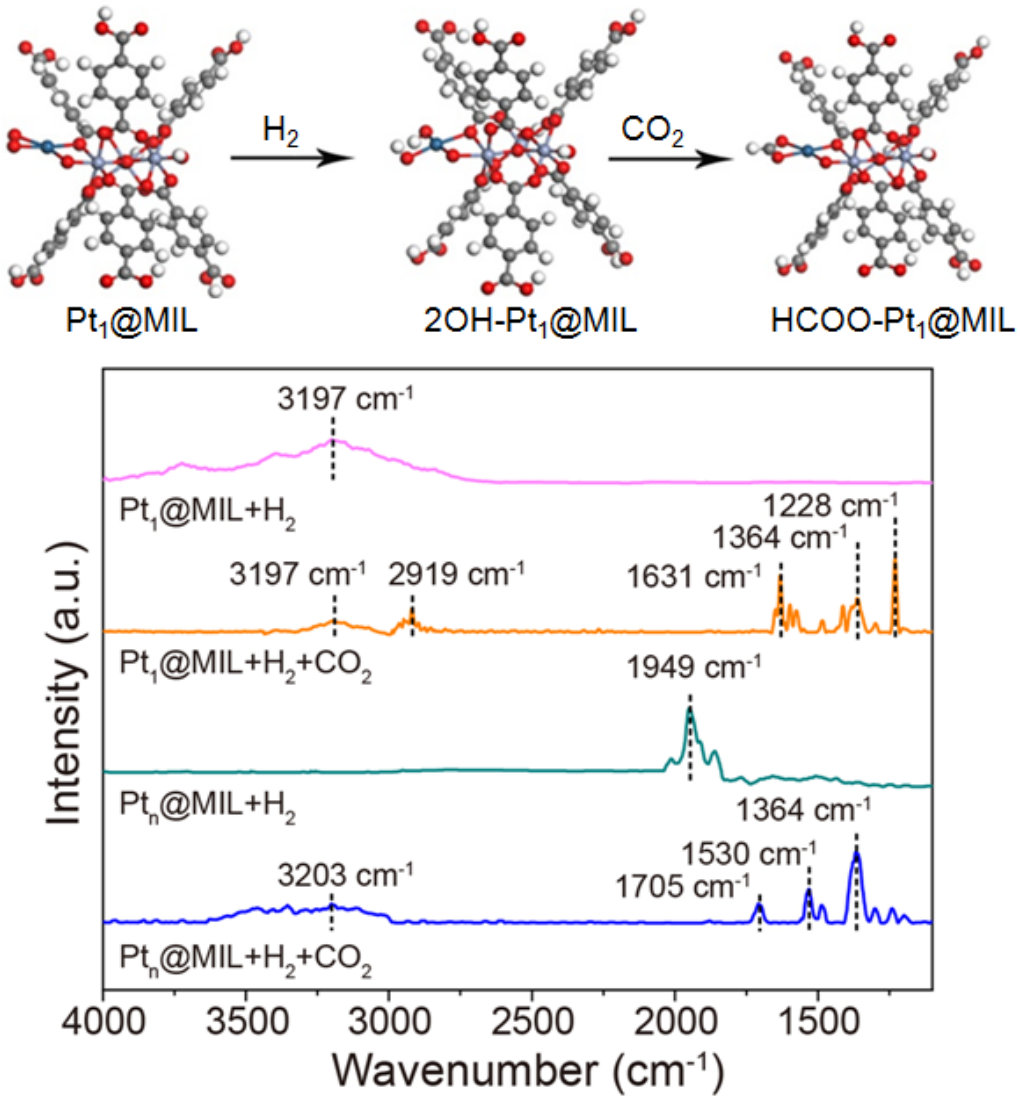
中国科大等在二氧化碳加氢制甲醇研究中取得进展。近日，中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心和化学与材料科学学院教授曾杰研究团队，与上海光源研究员司锐合作，通过构筑负载在金属有机框架MIL-101上的Pt单原子催化剂，揭示出其在CO2加氢反应中的金属-配体相互作用，该相互作用通过调控反应路径提高CO2加氢制甲醇的选择性。该成果以Optimizing Reaction Paths for Methanol Synthesis from CO2Hydrogenation via Metal-ligand Cooperativity为题，发表在《自然-通讯》上(Nature Commun. 2019, 10, 1885)，论文共同第一作者是博士生陈奕臻、李洪良和赵王辉。

当今社会，化石能源枯竭、全球变暖等能源和环境危机是人类面临的重大问题。CO2加氢反应是低碳化学中的重要反应，一方面可以直接减少CO2的排放，缓解温室效应;另一方面可以合成燃料和化学品，实现人工碳循环，缓解化石能源的短缺。在实际催化过程中，各种各样的反应路径可能共同存在，这极大地限制了目标产物的选择性。因此，优化CO2加氢反应路径是调控目标产物选择性和反应活性的重要策略。

针对这一问题，研究人员构筑了负载在金属有机框架MIL-101上的Pt单原子催化剂，发现Pt单原子在CO2加氢反应中会形成Pt-OH活性中心体，该活性中心体中的H原子能够作为氢源直接加成到CO2的C端形成HCOO*中间体。HCOO*中间体不易形成CO，而易于加氢形成甲醇。与之相比，Pt颗粒在CO2加氢反应中会形成Pt-H活性中心体，该活性中心体中的H原子会加成到CO2的O端生成COOH*中间体，而COOH*中间体易于脱羟基形成CO。因此，Pt单原子催化剂在32 bar和150。C的条件下有着高达90.3%的甲醇选择性，远高于相同条件下Pt颗粒对甲醇的选择性(13.3%)。

该工作阐述了金属-配体相互作用在CO2加氢反应中的调控机制，为人们更好地理解单原子催化机理打开了一扇新的大门。同时也为优化CO2加氢路径从而提高制甲醇的活性和选择性这一策略开拓了新的视野。

该项研究得到中科院前沿科学重点研究项目、国家重大科学研究计划、国家自然科学基金等的资助。



图：Pt1@MIL在CO2加氢反应中的路径

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