

## 用于制备聚氯乙烯的绿色催化剂掺氮碳纳米管研究获进展

文章来源：金属研究所

发布时间：2014-04-28

【字号：小 中 大】

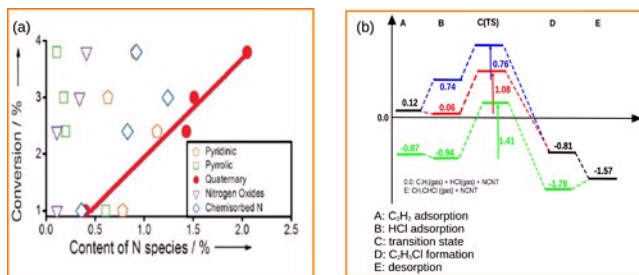
我国是世界上最大的聚氯乙烯生产国，产能达2000万吨/年，占全世界产能的41%。同时我国70%以上的聚氯乙烯是通过氯化汞催化剂催化乙炔氢氯化过程制备的。由于氯化汞对环境的不利影响以及生产过程中的高能耗，寻找一种可以替代汞的环境友好、绿色催化剂材料具有重要意义，是当前研究的一个研究热点。

近期，中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家（联合）实验室催化材料研究部副研究员李波、研究员苏党生和清华大学教授魏飞研究小组合作发现，掺杂氮的纳米碳材料对乙炔氢氯化反应具有显著的催化活性，该工作作为杂志封底文章发表在*ChemSusChem*上（2014, 7, 723-728），同时MaterialsView China对这项研究成果进行了专题报道。

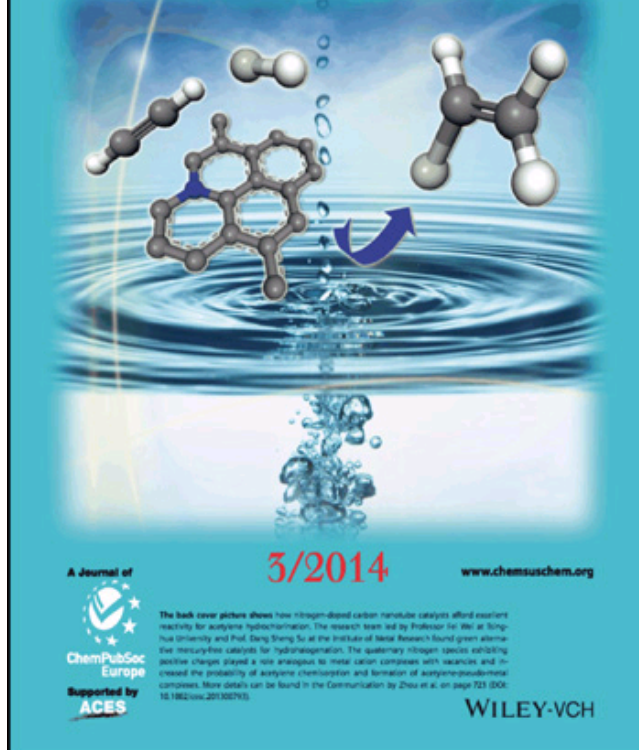
研究表明在碳纳米管催化剂中掺杂氮原子是催化剂优异催化活性的关键。通过氮掺杂，碳纳米管催化剂表现出了和传统金属催化剂（例如铜）相近的催化能力，掺杂氮碳纳米管的反应转换频率高达 $2.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ ，具有很好的工业应用潜力。更为重要的是掺杂氮碳纳米管催化剂还具有优异的稳定性，而在长时间反应条件下大部分金属催化剂都表现出了催化活性的大幅降低，因而碳材料催化剂的稳定性是保证未来工业上应用的关键。通过比较不同氮物种的作用，发现季氮物种的含量和反应活性呈现较好的正比例关系。结合密度泛函理论计算，证明了季氮物种是主要催化活性位点。更进一步的理论计算揭示了在碳材料催化剂上的反应路径，证明乙炔吸附是反应中最重要的步骤，掺杂氮原子增强了乙炔分子在活性位上的吸附，进而提高了催化活性。通过电子结构分析发现了乙炔分子在碳材料上的吸附机理和在金属催化剂上的是截然相反的。这是因为氮掺杂改变了催化剂的酸碱性从而影响了反应分子和催化剂之间的作用形式。这些研究成果表明纳米碳材料作为一类重要的非金属催化剂材料具有广阔的应用前景，并且为高效、绿色生产聚氯乙烯开辟了新的研究方向。

不仅仅是氮原子，纳米碳材料上其他几种杂原子对于调节和控制碳材料催化剂的性质也起着重要作用。催化材料研究部利用理论化学和第一性原理计算研究了在纳米碳材料催化剂上几种不同杂原子包括氧、氮、硼、磷等的氧化-还原能力和酸碱性，并且研究了它们在几种不同化学反应中的作用。相关研究工作分别发表在*J. Phys. Chem. C*（2013, 117, 17485-17492）、*Chem. Asian J.*（2013, 8, 2605-2608）、*J. Mater. Chem. A*（2014, 2, 5287-5294）、*Chem. Eur. J.*（2014, doi: 10.1002/chem.201400347）等国际学术期刊上。

以上工作得到了金属所葛庭燧奖学金、金属所优秀学者和中科院超算集群沈阳分中心的支持。



(a) 氮物种含量和反应转化率之间的关系。(b) 第一性原理计算得到的反应路径。



研究成果作为杂志封底文章发表在*ChemSusChem*上

打印本页

关闭本页