

当前位置： 首页 (../..)/>重要图片 (../)

端炔与二氧化碳羧化研究取得重要进展

发布时间：2020-08-11

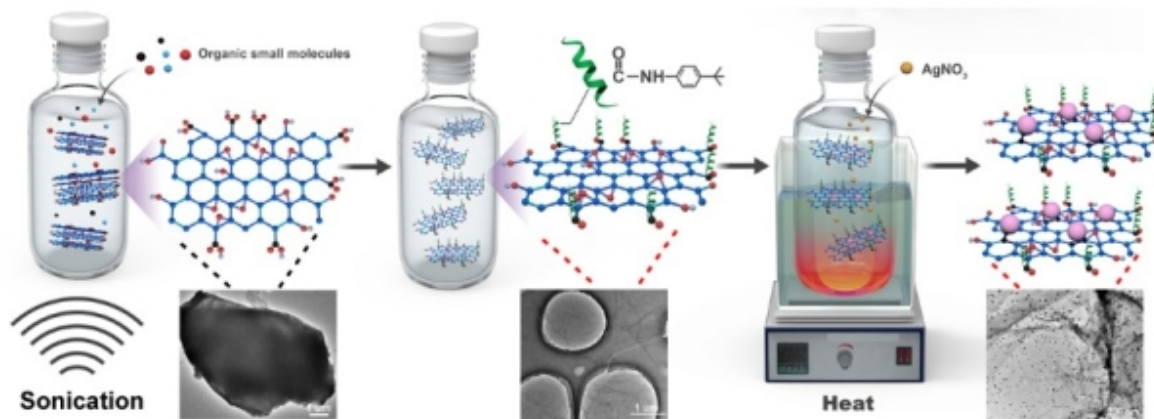
近日，国家纳米科学中心唐智勇研究员课题组在温和条件下催化制备不饱和羧酸方面取得重要进展，通过构筑酰胺键功能化的氧化石墨烯/银复合催化剂实现了端炔类化合物与二氧化碳反应高效生成羧酸，设计的催化剂表现出了优越的循环稳定性。相关研究成果发表在Matter上，
论文链接：<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2590238520303805>
(<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2590238520303805>)。

端炔与CO₂的羧基化反应不仅可以解决二氧化碳排放的问题，而且还可以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，其中一种典型的方法是使用CO₂作为亲电试剂与碳亲核试剂反应。然而，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了困难和挑战。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了较好的催化活性。但仍然存在问题，例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。

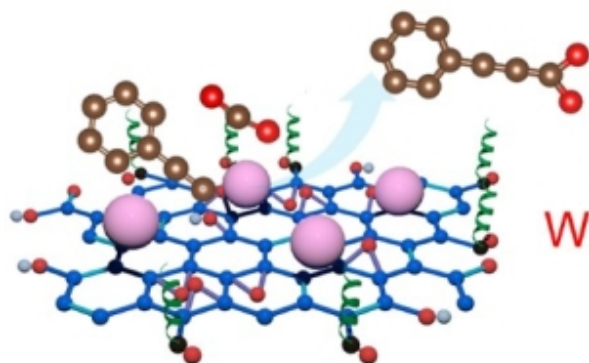
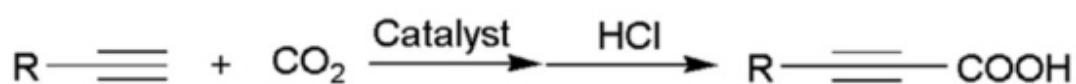
基于二维材料的复合催化剂近来受到极大关注。这些催化剂的优点包括充分暴露的活性位点，增强的物质传递速率，更重要的是具有清晰的表界面。然而，特别是对于廉价易得的氧化石墨粉末，难以制备具有均一形貌可控的二维材料复合催化剂。因此，唐智勇课题组通过在超声过程中加入叔丁基对苯胺分子与氧化石墨（GO）粉末中的羧基反应，成功开发出空间位阻，能够有效剥离以及大量生产超薄ter-GO氧化石墨烯纳米片（见图1）。更重要的是，形成的酰胺键有利于捕捉二氧化碳，氧化石墨烯表面丰富的羟基和环氧基则起到了稳定保护银纳米粒子作用。结果，在40 °C和常压条件下，合成的Ag/ ter-GO在24小时内有效地催化了苯乙炔转化为苯丙酸，转化率达到97.2%，催化剂的转化频率高达3.12 h⁻¹。

该方法具有简单，绿色和高效的特点。可成功制备厚度为4 nm的功能化氧化石墨烯，同时通过改变叔丁基对苯胺的添加量，能够实现氧化石墨烯层间距的可控调节。因此为大规模生产高质量GO纳米片提供了一条有效的途径，并且为开发新一代二维材料复合催化剂带来了更多的机会。

该成果得到了中国科学院战略性先导科技专项 (B) 和国家自然科学基金委等项目的支持，国家纳米科学中心唐智勇研究员为该论文的通讯作者，特别研究助理张小飞博士为第一作者。



Exfoliation of commercial graphite oxide powder by molecular steric hindrance



High activity
Wide spectrum of substrates
Excellent stability

图1: 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

理事单位 (<http://www.nanoctr.cas.cn/lldw2017/>) |

机构设置 (<http://www.nanoctr.cas.cn/jgsz2017/>) |

挂靠单位 (<http://www.nanoctr.cas.cn/gkdw2017/>) |

博士后流动站 (<http://www.nanoctr.cas.cn/bshldz2017/>) |

招生咨询 (<http://edu.nanoctr.cas.cn/zsxx/dsjs/>) |

主任信箱 (<http://www.nanoctr.cas.cn/zrxx2017/>) |

违纪违法举报 (<http://www.nanoctr.cas.cn/xfjb/>) |

友情链接 (<http://www.nanoctr.cas.cn/xglj/yqlj2017/>)



(<http://www.cas.cn/>)

版权所有 © 2017-2018 国家纳米科学中心 京ICP备05064431号-1 (<https://beian.miit.gov.cn/>) 京
公网安备: 110402500013

地址: 北京市海淀区中关村北一条11号 邮编: 100190

电话: 010-62652116 传真: 010-62656765 Email: webmaster@nanoctr.cn

