

张荣斌教授课题组在稀土催化低碳小分子转化领域取得进展

近日，南昌大学化学化工学院张荣斌教授课题组在稀土催化 CO_x 小分子领域取得了系列进展，作者通过设计系列氧化铈基金属氧化物负载的 Ni 或者 Cu 催化剂，实现了低温 CO 氧化和 CO_2 加氢反应性能提升。

一氧化碳 (CO) 的催化氧化是净化汽车尾气或在氢气环境中优先氧化 CO 的重要步骤，设计用于低温 CO 氧化的高性能催化剂对于节约能源和保护环境极其重要。作者采用静电纺丝法制备的 10Cu-Ce 纤维状催化剂在低至 90 °C 下实现了 CO 完全氧化 (图 1)。然而通过浸渍法制备的 10Cu/Ce 催化剂需要 110 °C 才能实现 CO 完全氧化。在铜和铈的界面处构建不对称氧空位 (ASOV) 和 $\text{Cu}^+-\text{O}_v-\text{Ce}^{3+}$ 界面，可以强化 CO 的吸附从而加快氧化。使用静电纺丝构筑稀土催化剂的新方法为开发低温和非贵金属基催化剂提供了一种有前景的技术。以上工作发表于 *Inorganic Chemistry* (2024, 63, 4312-4327)，并被选为封面，刘栋等人为论文第一作者。

利用可再生能源电解水产生绿氢，然后与 CO_2 加氢反应生成甲烷、甲醇等产品，是实现碳中和目标的重要举措之一，符合发展新质生产力需求。近日团队与新加坡国立大学 Sibudjing Kawi 教授等人合作，通过在 Ni/CeO₂ 稀土催化剂表面构建受阻路易斯酸碱对 (FLP) 来调控低温 CO_2 加氢制甲烷性能，最优 Ni/(0.06AB)CeO₂ 催化剂在 240 °C 下实现了 67.5% 的 CO_2 转化率和 99.6% 的甲烷选择性 (图 2)，作者从控制晶面来调控催化剂形貌的角度出发，展现了形貌和 FLP 结构的联系，以及影响催化剂表面 FLP 结构丰富度的因素，揭示了 FLP 结构在 CO_2 吸附和活化上的重要作用，同时结合理论计算分析了 CO_2 甲烷化机理；此外，团队与内蒙古大学刘健教授等人合作，通过晶体工程在分子尺度构筑富含 Ce/Zn-O_v-Ce 活性位的 Ce-CuZn 催化剂 (图 3)，在 260 °C 下实现了 CO_2 高效加氢制甲醇，时空收率达到 $400.3 \text{ g kg}_{\text{cat}}^{-1} \text{ h}^{-1}$ ，结合理论计算阐明了在分子尺度设计稀土催化活性位的重要性，助力“液态阳光”工程。以上工作分别发表于 *Chemical Engineering Journal* (2024, 484, 149471) 和 *Nature Communications* (2024, 15, 2159)，论文第一作者分别是陈小寒博士研究生，叶闰平教授等人。

以上研究论文南昌大学均为第一署名单位，该系列工作是我校工业催化学科四十余年在催化新材料领域不断耕耘取得的又一项标志性成果。张荣斌教授是南昌大学化学化工学院应用化学系主任。课题组专注于含碳氢小分子和水分子转化相关的热、光、电催化科学与技术研究工作，主要从事稀土催化材料制备与设计，多相催化过程研究，围绕能源、环境、材料、化工等领域热点问题，已在 *Rare Met.*, *Angew. Chem. Int. Ed.*, *Nat. Commun.*, *Appl. Catal. B*, *Chem. Eng. J.* 等国内外期刊发表学术论文百余篇。课题组所培养研究生获得国家奖学金、省政府奖学金、企业奖学金等奖项。

论文图片：

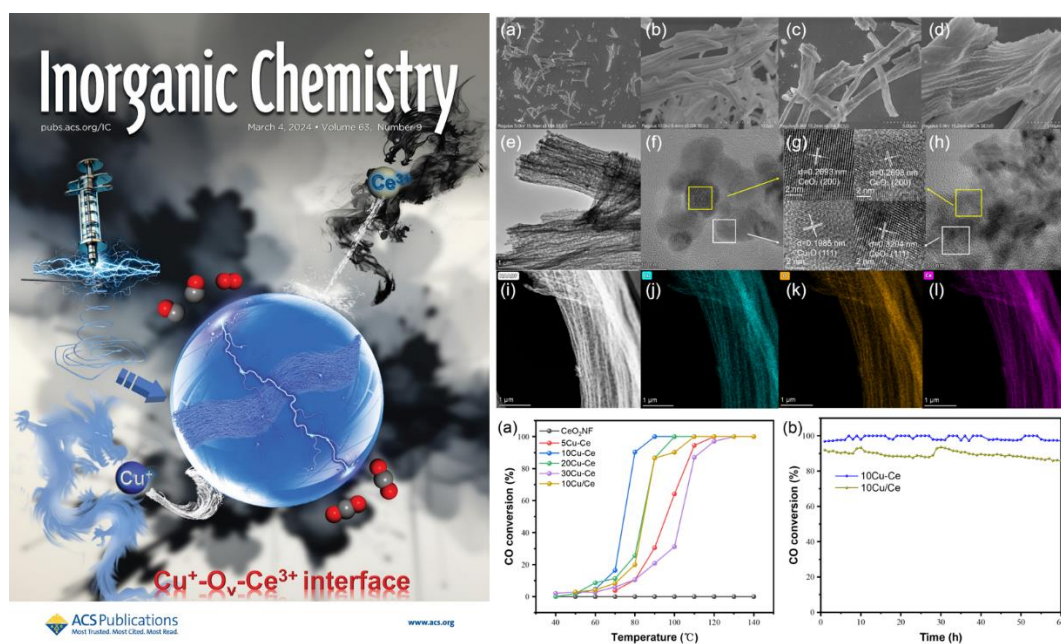


图 1. 静电纺丝法构建 $\text{Cu}^+-\text{O}_v-\text{Ce}^{3+}$ 界面增强 CO 吸附低温催化氧化 CO

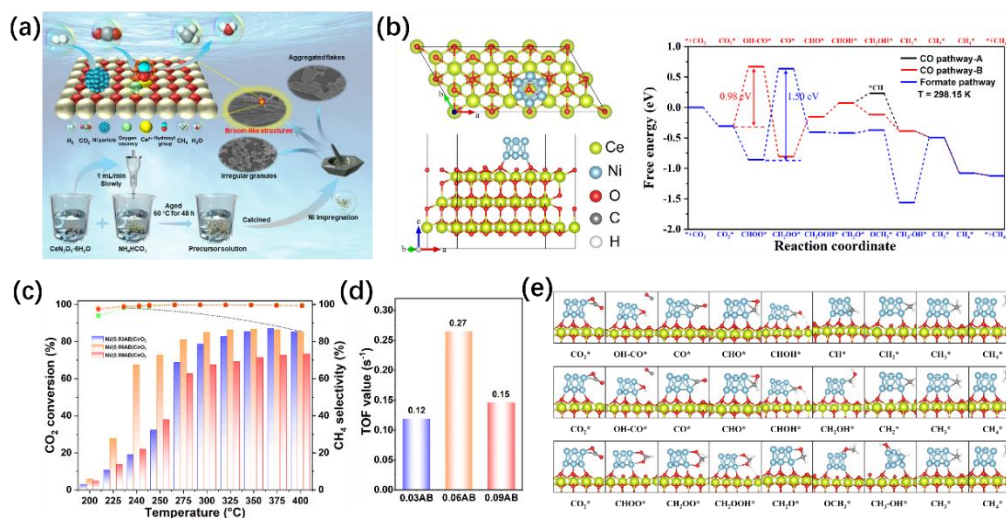


图 2. 通过在稀土催化剂表面构建受阻路易斯酸碱对调控低温 CO_2 加氢制甲烷性能

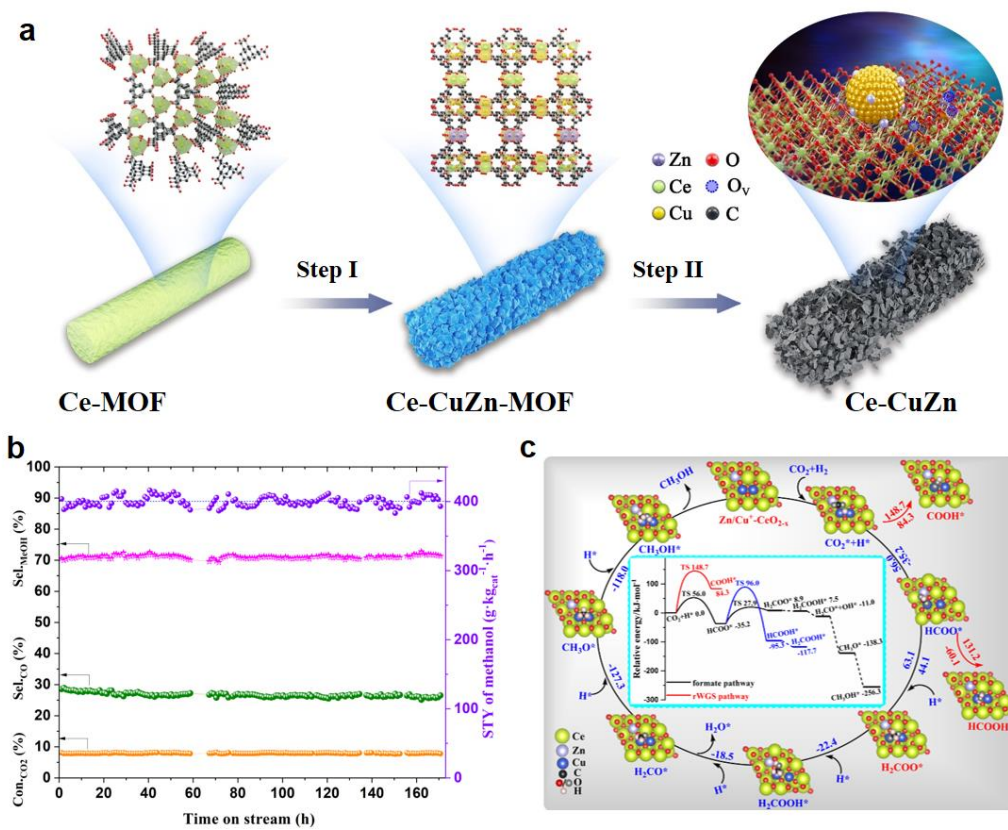


图 3. 通过晶体工程在分子尺度构筑富含氧空位的 Ce-CuZn 催化剂及其 CO₂ 加氢制甲醇

论文连接:

<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1385894724009562>

<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acs.inorgchem.3c04453>

<https://www.nature.com/articles/s41467-024-46513-3>

供稿人: 叶闰平