

二氧化碳加氢合成高碳醇研究获进展

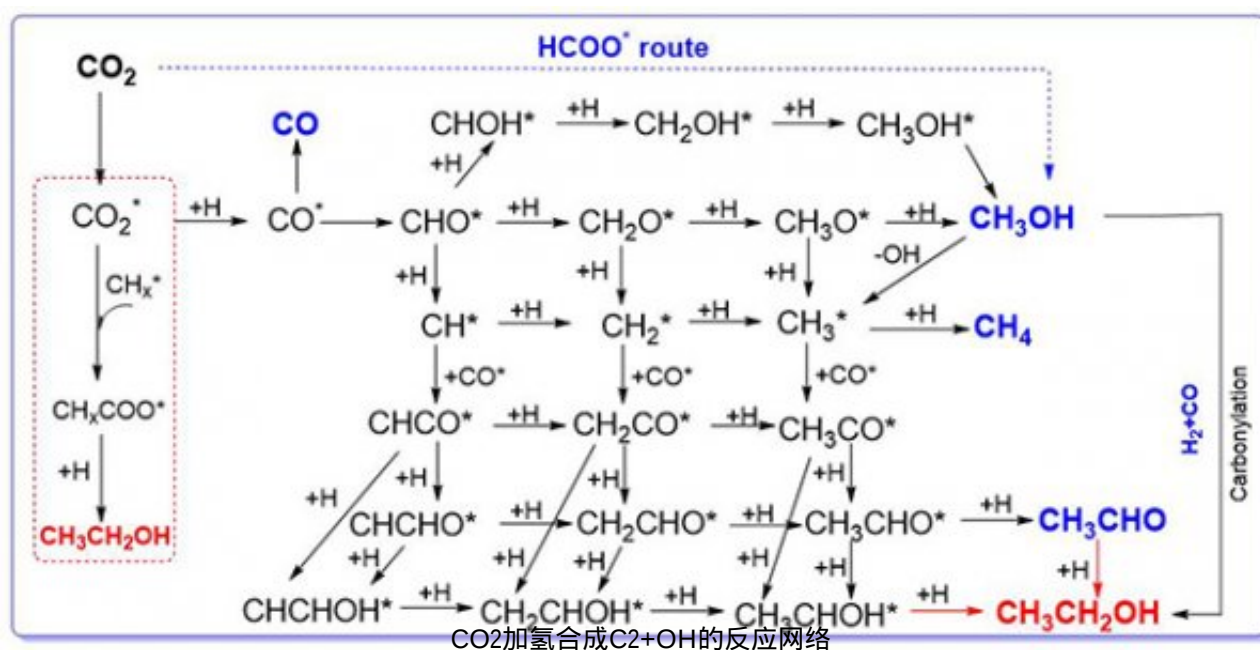
将温室气体CO₂与绿氢耦合并转化为含两个及以上碳原子的高附加值醇(C₂+OH),是实现CO₂减排并满足全球能源与化学品需求的重要途径。然而,这一过程面临多重挑战,如CO₂化学性质惰性、反应网络复杂等问题使精准控制C-C偶联存在较大挑战性。此前,有研究开发出贵金属催化剂、改性费托合成催化剂等多种体系,但目前催化体系C₂+OH时空收率尚未达预期。因此,亟需开发更高效的催化剂或设计新的反应路线。

针对上述问题,中国科学院兰州化学物理研究所科研人员在前期Ni催化CO₂加氢合成C₂+OH和多相催化烯烃氢甲酰化合成醛的研究基础上,构建了Ni-K共修饰的Fe基催化剂(1Ni-4K/Fe),将CO₂加氢生成C₂+OH的时空收率提高到317.0mg/g/h,且能在300h内稳定运行。进一步,研究人员利用接力催化思想,构建了“CO₂加氢-烯烃氢甲酰化-醛氢化”三串联体系,将产物中烯烃转化为醇,C₂+OH时空收率达980.5mg/g/h,选择性达55.0%,且由于氢甲酰化的增碳作用,C₂+OH中C₃+OH的占比可达75.6%,显著提升碳的利用率。

研究表明,在K-Ni共修饰的Fe催化剂中,K-Ni之间协同作用机制显著提升了C₂+OH生成的时空收率,即Ni的引入促进了*CH_x中间体形成,K的存在可抑制*CH_x深度加氢,二者协同增强了*CO-*CH_x偶联。同时,K与Ni的引入能够加速活性相Fe₅C₂生成与原位再碳化。因此,该催化剂表现出高活性与较好的使用稳定性。

为进一步提高碳原子利用率和产物中C₂+OH的选择性,研究人员利用接力催化思想,构建了“CO₂加氢-烯烃氢甲酰化-醛加氢”两段三催化剂的串联体系,将产物中多余的烯烃转化为相应的醛或醇。与单段的1Ni-4K/Fe催化剂相比,该串联催化体系C₂+OH选择性可达55.0%,时空收率可达980.5mg/g/h。同时,得益于氢甲酰化反应的增碳作用,该串联体系中C₃+OH在总醇中占比从单催化剂的41.0%提升至75.6%。

近日,相关研究成果以Catalytic Tandem CO₂ Hydrogenation and Hydroformylation for High-yield Synthesis of C₂+Alcohols为题,发表在ACS Catalysis上。研究工作得到国家自然科学基金委员会、科学技术部、甘肃省等的支持。



原文地址: <http://www.china-nengyuan.com/tech/229250.html>