

[\(../index.htm\)](#)[English \(http://chem.jlu.edu.cn/en/index.htm\)](http://chem.jlu.edu.cn/en/index.htm)[吉林大学 \(https://www.jlu.edu.cn/\)](https://www.jlu.edu.cn/) |当前位置: [首页 \(../index.htm\)](#) > [科学研究 \(../kxyj/kydt.htm\)](#) > [科研动态 \(../kxyj/kydt.htm\)](#) > 正文[科学研究](#)[科研动态 \(../kxyj/kydt.htm\)](#)

李路课题组：光驱动惰性分子室温活化

日期: 2022-01-20 点击数: 799

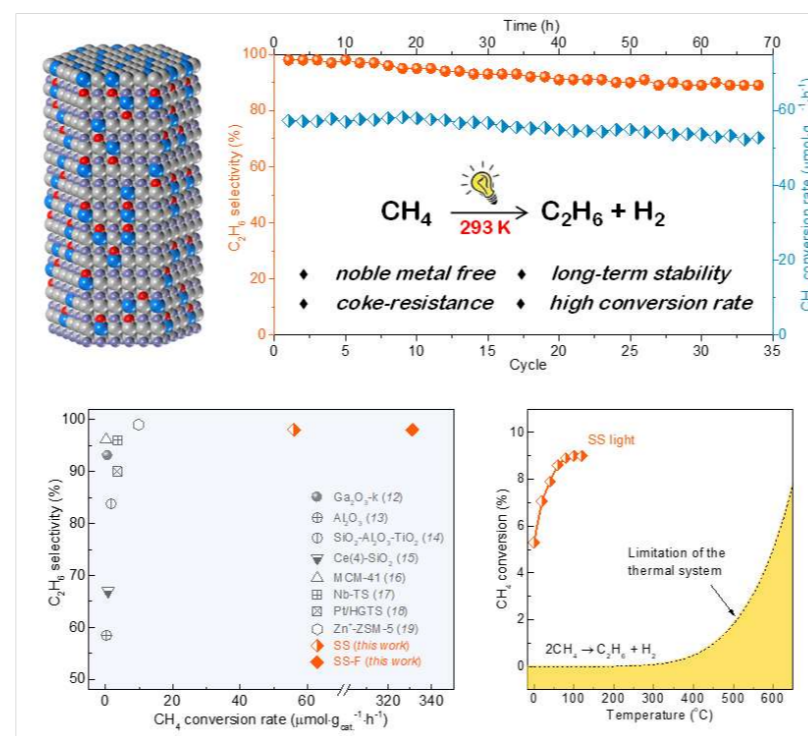
以甲烷或氮气作为初始原料合成基础化工产品，既是当前催化和合成化学的研究热点，但同时也是一个世界性难题，所面临的科学挑战是惰性化学键的活化通常需要高温、超高压等苛刻条件，所带来的成本问题和工艺问题极大地限制了其工程化发展。因此，发展温和条件下的惰性分子低碳转化技术是一个迫切但又极具挑战的课题，一旦取得突破，将会颠覆人们对于催化剂真实“构-效”关系的传统认知，推动惰性分子的绿色转化与应用，对于实现基础化学工业的低碳化绿色转变具有重要意义。

吉林大学李路课题组聚焦上述科学难题，探索性地提出了全新的研究思路，发展温和条件下的光驱动惰性分子直接转化路线。通过设计合成一系列具有特殊电子态及表面局域原子结构的催化材料，首次实现了甲烷的室温无氧脱氢芳构化和高选择性制备C2+烷烃等高价值转化路线；成功利用可见光、红外光驱动惰性N₂键活化，发展了室温绿色合成氨路线 (Angew. Chem. Int. Ed.**2021**,60, 20760; Angew. Chem. Int. Ed.**2021**,60, 11173; J. Mater. Chem. A**2021**,9, 22827; ACS Sustain. Chem. Eng.**2021**,9, 13630; Chem. Commun.**2022**, doi.org/10.1039/D1CC06489D; Appl. Catal. B: Environ.**2020**,262, 118276) 。

近期，该课题组通过高温固相法制备了多种非贵金属氮化物固溶体光催化剂。该类催化剂在室温 (25°C) 光照条件下，展现出前所未有的甲烷无氧脱氢偶联反应活性，能够将甲烷分子转化为化学计量比的乙烷和氢气，极大地降低了甲烷活化温度 (传统反应> 700°C)。优化后的固溶体材料同时具有优异的抗积炭性能、高转化速率和高选择性，创纪录地在连续70个小时，35个循环测试中保持稳定的催化活性 (如下图)。在此基础上，利用还原-氧化-重构的制备策略，在半导体表面成功制备出金属簇合度和几何构型可调的金

属负载型光催化剂，其中金属的存在状态实现单原子/二维亚纳米团簇/三维纳米团簇/纳米颗粒的连续可调。通过多种原位光谱技术并结合第一性原理计算，发现较低氧化态的平面二维亚纳米金属团簇具有极高的抗积炭能力，对于饱和烷烃的C-H键活化展现出前所未有的光催化活性，每个金属催化中心能够催化转化至少100000个惰性C-H键而不失活。研究还发现亚纳米团簇的聚集度对于随后的C-C键的形成与产物选择性至关重要，通过机理分析创新性地提出了涉及卡宾中间体的甲烷室温光活化机制，首次实现了甲烷分子在可见光下的高选择性转化制备C3+碳氢化合物这一重要突破。该研究工作获得基金委重大研究计划培育项目专项支持。

目前该课题组正围绕“甲烷的温和转化利用”这一催化领域的重要课题进行探索，研究工作独具特色，具有很高的科学意义和实际应用潜力，有望为发展绿色低碳化学工业提供变革性技术和全新解决方案。



图：半导体氮化物固溶体材料用于高效甲烷室温无氧脱氢偶联，突破光催化剂不稳定易失活的难题，催化反应速率较之前的记录提高了33倍。

上一条：张越涛课题组：受阻Lewis酸碱对实现聚合物精准合成 (11781.htm)

下一条：冯守华课题组：功能复合固体的化学调控 (11779.htm)

地址：吉林省长春市前进大街2699号 邮编：130012 (<https://ditu.baidu.com/search/%E5%90%89%E6%9E%97%E5%A4%A7%E5%AD%A6-%E5%8C%96%E5%AD%A6%E5%AD%A6%E9%99%A2/@13947202.479156038,5409384.340742469;13948127.51640833,5409854.175128957>)&from=webmap&biz_forward=%7B%22scaler%22:2,%22styles%22:%22pl%22%7D&seckey=c6d9c7e05d7e627c56e
 邮箱：chembg@jlu.edu.cn 电话：0431-85168420
 版权所有：吉林大学化学学院 © 2021



关注化合物语
()



关注化学研究生
()

