



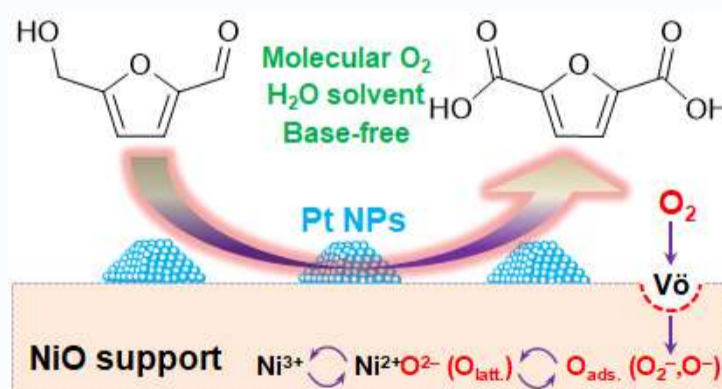
方文浩课题组在可再生工程塑料单体的合成与金属催化剂的定向设计方面取得进展

近日, 上海交通大学携手Science杂志发布了“125个新科学问题”, 其中之一为“*How can we better manage the world's plastic waste?*”。当今社会, 大量难回收、高污染的石油基塑料制品的使用所导致的能源短缺和环境破坏及污染等问题亟待解决。塑料污染已经严重的危害到了我们的海洋、陆地、森林、野生动物乃至人类自身的健康。如何有效地解决塑料污染等问题已经迫在眉睫。

以可再生的木质素生物质为原料, 通过生物炼制的途径制备环境友好、可回收、易降解的生物基工程塑料, 可有效缓解石油基塑料制品所带来的诸多问题。2,5-呋喃二甲酸(FDCA)可由5-羟甲基糠醛(HMF, 木质素生物质的基本结构单元)选择氧化制备得到, 被美国能源部列为21世纪12种高价值的生物基化学品, 可代替石化衍生物对苯二甲酸用于合成可回收、易分解的环境友好型工程塑料PEF, 具有广泛的应用前景。而目前PEF塑料的生产与应用极大地受限于2,5-呋喃二甲酸单体的合成成本和效率。转化HMF制备FDCA是一个多步骤的氧化反应, 其反应中间体多, 氧化副产物多。现今报道的大多数体系往往需要添加可溶性的无机碱、使用有机溶剂以及有机氧化剂等, 这些添加剂的使用导致了副产物多、产物的分离纯化难、生产成本高等问题。因此, 开发可以在无碱添加剂、以水为溶剂、氧气为氧化剂的绿色环保的条件下, 高效氧化HMF制备FDCA的催化体系, 是实现HMF氧化增值、促进生物基工程塑料PEF发展的有效绿色化学途径。

鉴于上述背景, 我院方文浩教授课题组设计合成了一种以Pt⁰为活性中心的介孔NiO负载催化剂。实现了以H₂O为溶剂、O₂为氧化剂、在不添加碱的条件下高效选择氧化HMF制备FDCA。通过调变NiO载体制备过程中的老化温度, 构筑了含有不同Ni²⁺/Ni³⁺和O_{ads.}/O_{latt.}比例的Pt/NiO催化剂。研究发现, Ni³⁺离子有利于促进氧空位的形成, NiO载体表面的氧空位可以将游离的O₂分子吸附活化, 进而将其解离为活性晶格氧。而不同活性氧物种极大地影响着HMF与其反应中间体的氧化速率以及产物分布, 金属态的Pt⁰活性位点与活性氧物种之间的相互作用则决定着催化剂的催化活性。最终, Pt/Ni_{25d}催化剂在100°C、1MPa氧气、12h的反应条件下将HMF计量地氧化为FDCA, 其产率达到22.2 mol_{FDCA} mol_{Pt}⁻¹ h⁻¹, 为目前已公开文献中Pt基催化剂的最高值, 且催化剂表现出优异的循环稳定性。

相关成果以“*Tailoring the Reactive Oxygen Species in Mesoporous NiO for Selectivity-Controlled Aerobic Oxidation of 5-Hydroxymethylfurfural on a Loaded Pt Catalyst*”为题发表在化学领域著名期刊*ACS Sustainable Chemistry & Engineering* (影响因子: 7.63, 中科院化学一区, <https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.1c01398>)。论文的第一作者为我院2019级硕士研究生张浩, 通讯单位为云南大学化工学院。该工作获得了国家自然科学基金、云南省“青千”、“优青”及“后备人才”项目, 以及云南大学“青年英才计划”、第十二届研究生科研项目的资助。



分享到: [+](#) [+](#) [+](#) [+](#) [+](#) [+](#)

点击次数: 523 更新时间: 2021/05/04 09:13:51 【关闭】

上一条: [林欣蓉课题组在Advanced Functional Materials发表聚合物固态电解质研究成果](#)

下一条: [功能食品--皱皮木瓜抗菌活性研究及其作用机制初探](#)

相关文章

无相关文章

