

公示材料

项目名称： 3d 过渡金属基类水滑石材料绿色催化应用基础研究

提名者： 太原理工大学

提名意见：

该项目材料及成果真实有效。项目研究符合国家“打好污染防治攻坚战”和煤基资源高值化利用的重大战略，紧紧契合山西省大气污染控制及精细化工绿色发展需求。吴旭等在掌握研究领域国内外发展前沿的同时，考虑到类水滑石材料在催化领域的应用潜力，依据绿色催化思路，将 3d 过渡金属基类水滑石材料应用于安息香乙醚、糠醛二乙缩醛绿色高效合成（反应物均为液体），糠醛、乙酰丙酸选择性加氢高值化利用（反应物为气体和液体）， NH_3 选择性高效脱除 NO_x （反应物均为气体）三类代表性反应，建立了催化剂表面结构特性与催化性能间的构效关联，明确了水滑石基高性能催化剂的构筑原则。研究通过新催化材料构筑和新机理解析为大气污染控制及精细化工绿色发展提供了重要的技术积累和数据参考，在支撑太原理工大学化工学科“双一流”建设的同时也为山西省煤基资源高值化利用，煤化工过程减碳排污的提档升级作出了积极贡献。项目研究提出的很多重要研究见解到了同行的广泛认可和正面引用，先后得到 7 项国家、省部级基金项目的支持，授权中国发明专利 13 项，出版学术专著 1 部，5 篇代表性论文被 SCI 他引 230 次，代表作论文 3 他引 135 次，入选 ESI 高被引论文。

项目简介:

项目所属科学技术领域、主要研究内容、科学价值及同行引用评价情况

本成果属于绿色催化研究领域。

项目基于类水滑石及其衍生复合氧化物的优异结构及理化性能，围绕安息香乙醚、糠醛二乙缩醛高效合成，糠醛、乙酰丙酸等平台分子高值化利用，污染物 NO_x 高效脱除，依据绿色催化思路，聚焦 3d 过渡金属基类水滑石催化剂开展了系统的设计构筑与性能调控。主要研究内容如下：

1. 借助尿素水热分解法在不同 pH 体系下制备 NiAl-LDHs、NiFe-LDHs，详细考察合成体系 pH 值对合成产物组成结构的影响，探索合成环境对类水滑石活性中心的构建规律，系统阐述制备水滑石催化行为与其结构性质的内在关联，丰富类水滑石基催化剂在安息香乙醚、糠醛二乙缩醛高效合成中的应用。
2. 借助共沉淀法调控制备 CuAl-LDHs、CuCr-LDHs、CuFe-LDHs，协调金属元素比例和焙烧温度衍生构筑性能优异的 CuAl-LDO、CuCr-LDO、CuFe-LDO 催化剂，探究糠醛、乙酰丙酸选择性加氢制糠醇和 2-甲基呋喃，加氢制 γ -戊内酯的应用，揭示协同功能助剂对铜基活性位点吸附氢气解离效率及目标产物选择性的优化机制，明确类水滑石模板强化复合氧化物催化剂金属间的协同作用规律，拓展 2-甲基呋喃， γ -戊内酯的绿色高效合成方法。
3. 借助类水滑石层板阳离子的可搭配性，层间离子的可交换性，精细调控类水滑石组成和结构，协调组装 CNTs 缓减 LDHs 高温焙烧过程中层板的聚积和堆叠，衍生制备 Ni(Mn)Ti-LDO、Co(Mn)Al-LDO、CuAl-LDO/CNTs 催化剂，探究制备催化剂 NH_3 -SCR 应用，建立催化剂表面结构特性与 NH_3/O_2 吸附、活化及低温 SCR 性能间的构效关联，揭示类水滑石模板法对衍生催化剂 SCR 活性及选择性的协同优化机制，发展构筑高性能低温 SCR 催化剂的新方法。

研究成果通过对催化材料合成-结构性质解析-催化性能关联的认识和理解，为精细化工绿色发展及燃煤污染物 NO_x 控制提供重要的技术积累和数据参考。先后授权中国发明专利 13 项，出版学术专著 1 部，5 篇代表性论文被 SCI 他引 230 次，代表作论文 3 他引 135 次，入选 ESI 高被引论文。

代表性论文专著目录:

[1] Fabrication of NiFe layered double hydroxides using urea hydrolysis—Control of interlayer anion and investigation on their catalytic performance; 作者: Wu, X (Wu, Xu); Du, YL (Du, Yali); An, X (An, Xia); Xie, XM (Xie, Xianmei); 来源出版物: CATALYSIS COMMUNICATIONS 卷: 50 期: 5 页: 44-48 出版年: 2014 年 5 月.

[2] Facile synthesis of NiAl-LDHs with tunable establishment of acid-base activity sites; 作者: Wu, X (Wu, Xu); Ci, C (Ci, Chao); Du, YL (Du, Yali); Liu, XZ (Liu, Xuezheng); Li, XJ (Li, Xiaojian); Xie, XM (Xie, Xianmei); 来源出版物: MATERIALS CHEMISTRY AND PHYSICS 卷: 211 期: 1 页: 72-78 出版年: 2018 年 12 月.

[3] A noble-metal free Cu-catalyst derived from hydrotalcite for highly efficient hydrogenation of biomass-derived furfural and levulinic acid; 作者: Yan, K (Yan, Kan); Liao, JY (Liao, Jiayou); Wu, X (Wu, Xu); Xie, XM (Xie, Xianmei); 来源出版物: RSC ADVANCES 卷: 3 期: 12 页: 3853-3856 出版年: 2013 年 3 月.

[4] Enhancing DeNO_x performance of CoMnAl mixed metal oxides in low temperature NH₃-SCR by optimizing layered double hydroxides (LDHs) precursor template; 作者: Wu, X (Wu, Xu); Feng, YL (Feng, Yalin); Du, YL (Du, Yali); Liu, XZ (Liu, Xuezheng); Zou, CL (Zou, Chunlei); Li, Z (Li, Zhe); 来源出版物: APPLIED SURFACE SCIENCE 卷: 467-468 期: 15 页: 802-810 出版年: 2019 年 2 月.

[5] Fabrication of Highly Dispersed Cu-Based Oxides as Desirable NH₃-SCR Catalysts via Employing CNTs To Decorate the CuAl Layered Double Hydroxides; 作者: Wu, X (Wu, Xu); Meng, H (Meng, Hao); Du, YL (Du, Yali); Liu, JN (Liu, Jiangning); Hou, BH (Hou, Benhui); Xie, XM (Xie, Xianmei); 来源出版物: ACS APPLIED MATERIALS & INTERFACES 卷: 11 期: 36 页: 32917-32927 出版年: 2019 年 9 月.

客观评价:

(1) 中国科学院兰州物理化学研究所王爱勤教授在其研究论文 (J. Clean. Prod., 2018, 172: 673)中报道了本项目中通过尿素热解制备NiFe-LDHs并控制层间阴离子的研究结果,证实了其论文中APT/C@NiFe-LDHs复合物的构造机理。(代表性论文1)

(2) 山西大学赵永祥教授在其文章 (高等学校化学学报, 2019, 40: 1686)中肯定地评价了本项目中酸碱活性中心可调NiAl-LDHs的制备及应用用于合成糠醛二乙缩醛的研究结果,并为其催化剂的合理设计提供了理论指导。(代表性论文2)

(3) 法国里尔大学 Franck Dumeignil 和 Sebastien Royer 教授在其共同发表的综述文章 (Chem. Rev., 2018, 118: 11023)中详细介绍了本项目含铜类水滑石 (CuAl、CuCr、CuFe)衍生复合金属氧化物用于生物质糠醛选择性加氢制糠醇和 2-甲基咪喃的研究,并作为典型代表阐明了通过添加功能助剂调变 Cu 活性中心电子环境实现加氢目标产物高选择性的理论成果。(代表性论文3)

(4) 北京林业大学王强教授在其综述文章 (J. Haz. Mat., 2020, 400: 123206)中大篇幅介绍了我们通过离子交换/氧化还原法制得 CoAl-MnO₂-LDHs 衍生构筑 MnO₂/CoAl-LDO 脱硝催化剂的研究工作,通过与目前典型催化剂脱硝性能进行列表比较,突显了类水滑石层间阴离子交换性制备 SCR 催化剂的优势。(代表性论文4)

(5) 上海理工大学熊志波博士在其文章 (J. Environ. Chem. Eng., 2021, 9: 106836)中参考了本项目 CNTs 和 CuAl-LDH 的组装方式影响催化剂表面酸性位点进而优化催化剂 NH₃ 吸附活化能力等分析结论,为其脱硝催化剂的优化构建提供了理论指导。(代表性论文5)

主要完成人情况：

第一完成人：吴旭，太原理工大学 教授

第二完成人：安霞 太原理工大学 副教授

第三完成人：杜亚丽 晋中学院 副教授

第四完成人：廖家友 太原理工大学 讲师

第五完成人：谢鲜梅 太原理工大学 教授

完成人合作关系说明：

吴旭：负责项目的整体设计，提出并凝练学术思想。系统研究了 3d 过渡金属基类水滑石绿色催化材料的合成-结构-性能之间的关联规律，发现点 1、3、4、5 的主要完成者。对本项目重要科学发现均有创造性贡献，在提供的 5 篇代表性论文中，是第 1 篇论文的第一作者，是 2、4、5 篇论文的第一及通讯作者。

安霞：对本项目部分科学发现有重要贡献，完成了其中 2 类代表性反应的结构调变与性能调控研究。发现点 1 的主要完成者。在提供的 5 篇代表性论文中，是第 1 篇论文的第三作者。

杜亚丽：对本项目部分科学发现有重要贡献，发现点 3、4、5 的主要完成者。在提供的 5 篇代表性论文中，是第 1 篇论文的第 2 作者，第 2、4、5 篇论文的第三作者。

廖家友：对本项目部分科学发现有重要贡献，发现点 2 的主要完成者。在提供的 5 篇代表性论文中，是第 3 篇论文的第二作者。

谢鲜梅：负责项目部分研究内容的设计，发现点 1、2 主要完成者。在提供的 5 篇代表性论文中，是第 1~3 篇论文的通讯作者。

知情同意证明

本人已知晓并同意项目“3d 过渡金属基类水滑石材料绿色催化应用基础研究”在申报 2022 年度自然科学奖使用到《RSC Advances》, 2013, 3: 3853-3856. 论文“A noble-metal free Cu-catalyst derived from hydrotalcite for highly efficient hydrogenation of biomass-derived furfural and levulinic acid”的内容。并已知晓获奖项目所用论文专著不得再次用于申报山西省自然科学奖、未获奖项目所用论文专著不得连续两年使用。（Kan Yan#, E-mail: yank9@mail.sysu.edu.cn, School of Enviromental Science and Engineering, SUN YAT-SEN University）

本人签字：

The image shows a handwritten signature in black ink that reads '严凯' (Yan Kai). To the right of the signature is a red ink fingerprint, likely from the same person.

2022.4.26