

中国颗粒学会自然科学奖公示内容

(2024 年度)

一、项目名称：硼碳氮催化体系的构建及其烷烃和醇氧化反应中的应用

二、完成单位：福州大学 中国科学院金属研究所

三、提名等级：2024 年度中国颗粒学会自然科学奖一等奖

四、项目简介：

该项目属能源颗粒材料相关研究领域。

非金属催化材料同时具有绿色可再生的特性，不仅开辟了碳氢键选择氧化的新路径，同时符合当前“30•60 双碳”和“美丽中国”的国家和社会需求，受到化学、化工和材料领域研究者的热切关注。本项目致力于研究新一代非金属硼碳氮催化体系在烷烃氧化脱氢和一级醇氧化脱氢等领域的应用，研究硼碳氮材料的结构设计、氧化脱氢活性中心、反应机理和动力学以及构效关系规律，辅以理论计算，精确量化描述和对比硼碳氮和碳催化反应过程的异同，揭示硼碳氮复合材料各组分之间的协同作用规律，建立一条绿色可持续的选择氧化新途径；本项目重点解决化工新材料制备及应用过程中的一些关键技术问题，推动以对反应过程物理化学本质认识为导向的功能硼碳氮催化氧化脱氢反应体系设计的理念创新。同时，致力于非金属催化剂的绿色生产与产学研一体化，破解我国化学品精细化率低、脱氢催化剂高度依赖进口的难题，为非金属催化理论体系的建立以及国内传统化学工业的产业升级奠定基础。

该项目的研究内容：（1）通过超分子预组装和控制热解碳化方法，将边缘活性高、热稳定好的六方氮化硼材料与导电性高、可逆氧化还原能力强的共轭石墨化纳米碳材料结合起来，构建兼具高选择性和抗氧化能力的高效硼碳氮脱氢催化剂，调控硼、碳、氮和氧之间电子结构以达到最优平衡；（2）揭示硼碳氮催化低碳烷烃和一级醇氧化脱氢反应活性中心和反应机理，阐明外围化学环境中掺杂少量分散的碳原子影响活性中心氧原子 $2p$ 轨道态密度的规律；（3）获得若干高性能非金属催化材料，探索出边缘碳掺杂定向可控合成高活性硼碳氮脱氢催化剂的普适性新策略，打通从超分子自组装到纳米硼碳氮催化材料批量制备再到催化反应性能优化和应用的全链条，为高效脱氢催化剂的设计制备提供全新的学术思想和特色研究方法。

该项目在国家人才项目和国家自然科学基金等项目资助下完成,面向非金属催化的前沿课题,将催化材料的创新与反应体系的创新结合起来,构筑了一系列高性能氧化脱氢催化剂。该项目开展期间,获批 10 项国家自然科学基金,该项目相关研究成果在 *Sci. Adv.*、*Nat. Commun.*、*Angew. Chem. Int. Ed.*、*J. Catal.*等国际高水平学术期刊上以通讯作者发表 SCI 收录论文 50 余篇,其中包括影响因子(IF)大于 10 的论文 20 余篇,相关成果被 *Chem. Rev.*、*Nat. Catal.*、*Angew. Chem. Int. Ed.*、*J. Am. Chem. Soc.*等权威期刊广泛引用和评述,所发论文被他引 1000 余次,受到国内外同行的高度评价。授权 5 项发明专利,所获创新性成果具有重要的理论研究意义及应用前景。

五、项目代表性论文和专著

1. Methanol conversion on borocarbonitride catalysts: Identification and quantification of active sites. *Sci. Adv.*, 2020, 6(26), aba5778.
2. Carbon-Doped BN Nanosheets for the Oxidative Dehydrogenation of Ethylbenzene. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2017, 56(28), 8231-8235.
3. Photo-fluorination of nanodiamonds catalyzing oxidative dehydrogenation reaction of ethylbenzene. *Nat. Commun.*, 2021, 12, 6542.
4. A generalized approach to adjust the catalytic activity of borocarbonitride for alkane oxidative dehydrogenation reactions. *J. Catal.*, 2022, 405, 105-115.
5. New insight into structural transformations of borocarbonitride in oxidative dehydrogenation of propane. *Appl. Catal. A-Gen.*, 2021, 628, 118402.
6. Tailored Pd/C Bifunctional Catalysts for Styrene Production under an Ethylbenzene Oxidative Dehydrogenation Assisted Direct Dehydrogenation Scheme. *Appl. Catal. B Environ. Energy*, 2023, 324, 122205.
7. Oxidative Dehydrogenation on Nanocarbon: Insights into the Reaction Mechanism and Kinetics via in-situ Experimental Methods. *Acc. Chem. Res.*, 2018, 51, 640-648.
8. Oxidative Dehydrogenation on Nanocarbon: Identification and Quantification of Active Sites by Chemical Titration. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2013, 52, 14224-14228.
9. Oxidative Dehydrogenation on Nanocarbon: Intrinsic Catalytic Activity and Structure-function Relations. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2015, 54, 13682-13685.
10. Highly Efficient Electro-reforming of 5-Hydroxymethylfurfural on Vertically

Oriented Nickel Nanosheet/Carbon Hybrid Catalysts: Structure-Function Relationships. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2021, 60, 14528-14535.1.

六、主要完成人情况:

谢在来(福州大学), 齐伟(中国科学院金属研究所), 张雪飞(福州大学), 代雪亚(中国科学院金属研究所), 王广明(福州大学), 林森(福州大学), 王心晨(福州大学)