**2022年度高等学校科学研究优秀成果奖(科学技术)**

**-自然科学奖提名项目公示**

**（一）项目名称**

二氧化碳催化转化

**（二）提名单位**

中国科学技术大学

**（三）项目简介**

二氧化碳高活性、高选择性转化是催化化学领域一项重要挑战。这是因为二氧化碳分子具有非常高的热力学稳定性和化学惰性，很难被活化。此外，二氧化碳转化还存在甲酸盐、反式甲酸盐和逆水汽变换等反应路径，各种反应路径之间也可能交叉形成复杂的反应网络，从而导致难以获得单一产物。围绕二氧化碳催化转化技术，研究团队在催化机理研究和催化剂创制方面取得了重要突破。

**催化机理研究：从原子分子层面揭示二氧化碳还原反应机制。**该团队基于同步辐射光源技术，自主设计原位催化反应池，搭建起同步辐射催化原位表征平台，同时集成X射线光电子能谱、X射线吸收精细结构谱、红外光谱等多种表征技术。该平台可以在原位/工况条件下研究反应物分子在催化剂表面的吸附、断键、成键等过程，并实时追踪催化剂在反应过程中的结构演化。借助该平台，该团队发现了氮化钴催化剂在二氧化碳还原反应中会发生物相重构形成对称性更低的活性物相，这种新的活性物相能够促进二氧化碳活化；揭示出对称破缺活性中心区域的应力场对二氧化碳活化的调控机制；首次揭示出近邻的对称破缺活性中心协同催化作用对二氧化碳还原反应路径的影响。

**催化剂创制：提出“构筑对称破缺活性中心用以活化高对称性小分子”的催化剂设计理念，开发出针对二氧化碳还原反应的高效催化剂。**对称破缺活性中心存在电荷密度梯度，从而形成局域极化场以极化非极性的二氧化碳分子。此外，针对二氧化碳直线型的结构特点，对称破缺活性中心能够双齿吸附二氧化碳，形成局域力矩，提高原子轨道之间的有效重叠程度，从而更易于弯曲线型二氧化碳分子。在这种思路指导下，研究团队构筑了对称破缺的钴-氮-氢活性中心，其二氧化碳还原制甲醇反应中的转化频率为同等条件下钴催化剂的64倍。通过氧空位构筑了对称破缺活性中心，实现了二氧化碳还原制合成气。构筑了对称破缺的铂-硫-氢活性中心，实现二氧化碳高效活化，将二氧化碳转化为甲醇和甲酸。发现活性中心的近邻相互作用能够改变反应路径，从而改变催化选择性。

鉴于其在二氧化碳催化转化领域的成就，**Nature**对第一完成人曾杰教授进行了专访，相关访问发表在**Nature**的亮点专栏。5篇代表性论文分别发表在**Nature Nanotechnol.**（1篇）、**Nature Energy**（1篇）、**Nature Commun.**（1篇）、**Angew. Chem. Int. Ed.**（2篇）国际权威期刊。迄今为止，第一完成人总共发表论文186篇，申请专利64项。入选国家杰出青年科学基金、国家“万人计划”科技创新领军人才，担任国家重点研发计划首席科学家，荣获中国青年科技奖“特别奖”、中国化学会-赢创化学创新奖、侯德榜化工科学技术青年奖、中国新锐科技人物、安徽青年五四奖章等奖项。其中以第一译者身份出版的《见微知著——纳米科学》一书荣获“全国优秀科普作品”等奖项。

**（四）主要完成人情况**（包括：排名、姓名、技术职称、工作单位、完成单位、对本项目重要科学发现的贡献）

|  |  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- | --- |
| 排名 | 姓名 | 技术职称 | 工作单位 | 完成单位 | 对本项目重要科学发现的贡献 |
| 1 | 曾杰 | 教授 | 中国科学技术大学 | 中国科学技术大学 | 曾杰是该项目第一完成人，总体学术思路和研究方案的提出者。他负责项目的规划和实施，是所有重要科学发现的核心贡献者，所有代表性论文的（共同）通讯作者。他首次揭示出近邻对称破缺活性中心的协同催化机制，围绕二氧化碳催化转化技术，在催化机理研究和催化剂创制方面取得了重要突破。 |
| 2 | 司锐 | 教授 | 中山大学 | 中国科学院上海应用物理研究所 | 司锐是该项目的第二完成人，负责项目的具体实施。他是代表性论文1的主要贡献者之一，是代表性论文3的（共同）通讯作者。他与曾杰教授合作，构筑了对称破缺的铂-硫-氢、铂-氧-氢活性中心，实现二氧化碳高效活化，将二氧化碳转化为甲醇。 |
| 3 | 汪国雄 | 研究员 | 中国科学院大连化学物理研究所 | 中国科学院大连化学物理研究所 | 汪国雄是该项目的第三完成人，负责项目的具体实施，是代表性论文4的（共同）通讯作者。他与曾杰教授合作，通过氧空位构筑了对称破缺活性中心，实现了二氧化碳还原制合成气。 |
| 4 | 张文华 | 副教授 | 中国科学技术大学 | 中国科学技术大学 | 张文华是该项目的第四完成人，负责项目的具体实施。他是代表性论文3的主要贡献者之一，是代表性论文1的（共同）通讯作者。她与曾杰教授合作，构筑了用于二氧化碳加氢制甲醇/甲酸的铂-硫-氢活性中心，揭示出单原子催化体系中存在近邻原子协同催化机制。 |
| 5 | 杨金龙 | 教授 | 中国科学技术大学 | 中国科学技术大学 | 杨金龙是该项目的第五完成人，负责项目的具体实施。他是代表性论文5的（共同）通讯作者。他与曾杰教授合作，基于模型催化体系揭示出对称破缺活性中心区域的应力场对二氧化碳活化的调控机制。 |

**（五）主要完成单位**

中国科学技术大学、中国科学院大连化学物理研究所、中国科学院上海应用物理研究所

**（六）代表性论文（专著）目录**（包括：论文（专著）名称/刊名/作者）

|  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- |
| 序号 | 论文（专著）名称 | 刊名 | 作者 |
| 1 | Synergetic interaction between neighbouring platinum monomers in CO2 hydrogenation | Nature Nanotechnology | Hongliang Li, Liangbing Wang, Yizhou Dai, Zhengtian Pu, Zhuohan Lao, Yawei Chen, Menglin Wang, Xusheng Zheng, Junfa Zhu, Wenhua Zhang, Rui Si, Chao Ma, Jie Zeng |
| 2 | Incorporating nitrogen atoms into cobalt nanosheets as a strategy to boost catalytic activity toward CO2 hydrogenation | Nature Energy | Liangbing Wang, Wenbo Zhang, Xusheng Zheng, Yizhen Chen, Wenlong Wu, Jiangxiang Qiu, Xiangchen Zhao, Xiao Zhao, Yizhou Dai, Jie Zeng |
| 3 | Optimizing reaction paths for methanol synthesis from CO2 hydrogenation via metal-ligand cooperativity | Nature Communication | Yizhen Chen, Hongliang Li, Wanghui Zhao, Wenbo Zhang, Jiawei Li, Wei Li, Xusheng Zheng, Wensheng Yan, Wenhua Zhang, Junfa Zhu, Rui Si, Jie Zeng |
| 4 | Oxygen Vacancies in ZnO nanosheets enhance CO2 electrochemical reduction to CO | Angew. Chem. Int. Ed. | Zhigang Geng, Xiangdong Kong, Weiwei Chen, Hongyang Su, Yan Liu, Fan Cai, Guoxiong Wang, Jie Zeng |
| 5 | Understanding of strain effect in electrochemical reduction of CO2: using Pd nanostructures as an ideal platform | Angew. Chem. Int. Ed. | Hongwen Huang, Huanhua Jia, Zhao Liu, Pengfei Gao, Jiangtao Zhao, Zhenlin Luo, Jinlong Yang, Jie Zeng |