合肥研究院在肉桂醛选择性加氢转化研究中获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/11104.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

近期，中国科学院合肥物质科学研究院固体物理研究所纳米材料与器件技术研究部-环境与能源纳米材料中心张海民课题组在肉桂醛选择性加氢催化转化研究中获进展。通过构筑具有高催化活性、选择性及稳定性的Fe-Co合金催化剂，实现肉桂醛的高效催化转化。相关研究成果发表在《德国应用化学》（*Angewandte Chemie International Edition*）上。

肉桂醇是一种重要的化合物和前驱体，在调味品、香水和制药等领域有重要应用。该化合物来源有限，主要通过在有机溶剂中对肉桂醛选择性加氢来实现。但其存在缺点：从热力学角度而言，C=C键更容易被氢化，导致肉桂醇的选择性较低；使用有机溶剂污染环境和增加分离成本。因此，开发能在水相条件下实现高活性及选择性的催化剂是实现肉桂醇应用的关键。目前，提高肉桂醇的选择性主要通过在金属活性位点表面螯合有机配体，或用金属-有机框架化合物在催化剂表面形成空间位阻屏障，调节肉桂醛的空间取向，使肉桂醛的C=O键更容易接触催化活性中心。但该方法抑制反应物在催化剂表面的扩散，导致催化效率降低；另一种有效策略是，诱导贵金属（如Pt）与过渡金属形成合金催化剂产生协同电子效应，使其在热力学上利于氢化肉桂醛分子中的C=O键，在不降低肉桂醛转化效率的同时提高肉桂醇选择性。但该方法需要大量使用稀缺昂贵的贵金属，亦不可取。

研究团队前期工作表明，沸石咪唑酯骨架结构材料（ZIF-67）衍生N掺杂负载的Co纳米颗粒催化剂（Co@NC）在催化加氢含有醛基、酮基、羧基和硝基官能团的生物质基化合物时，表现出优异的催化活性和稳定性（*Adv. Mater.* 2019，31，1808341）。基于此，研究人员以Co@NC催化剂为基础，通过金属离子浸渍法，引入Fe^{3+}并结合程序升温热解，实现N掺杂碳载体上高分散性Fe-Co合金纳米颗粒的可控合成。

催化性能测试表明，在80°C、2h、2MPa以及水相反应条件下，单金属Co@NC实现100%的肉桂醛转化率，但其肉桂醇选择性为0；Fe@NC实现58.7%的肉桂醇选择性，且肉桂醛转化率低至8.9%；Fe-Co合金催化剂能同时得到高催化活性及选择性，并具备良好稳定性。优化后的实验结果显示，$Fe_{0.5}$Co@NC合金催化剂能实现95.1%的肉桂醛转化率及91.7%的肉桂醇选择性，表明Fe-Co合金的电子协同作用是实现优异催化性能的关键。

研究进一步揭示溶剂在反应中扮演重要作用。在不同溶剂下，肉桂醛的转化率分别为：纯水（95.1%）>甲醇（61.6%）>乙醇（12.4%）>异丙醇（1.7%），溶剂极性越高，肉桂醛转换效率越高。虽然肉桂醇的选择性遵循相同的溶剂极性趋势，但是水溶剂对C=O的加氢作用增强，且对C=C的加氢有抑制作用。这是由于水与C=O和催化剂表面位点的电子及氢键相互作用，使通过C=O

键在催化剂表面的选择性吸附成为首选的氢化反应步骤，从而加快反应动力学，提高催化选择性。

该研究为制备具有高效非贵金属基选择性加氢催化材料提供有效途径，对研究选择性催化加氢反应的溶剂效应具有借鉴意义。研究工作得到国家自然科学基金和中国博士后科学基金的资助。

论文链接

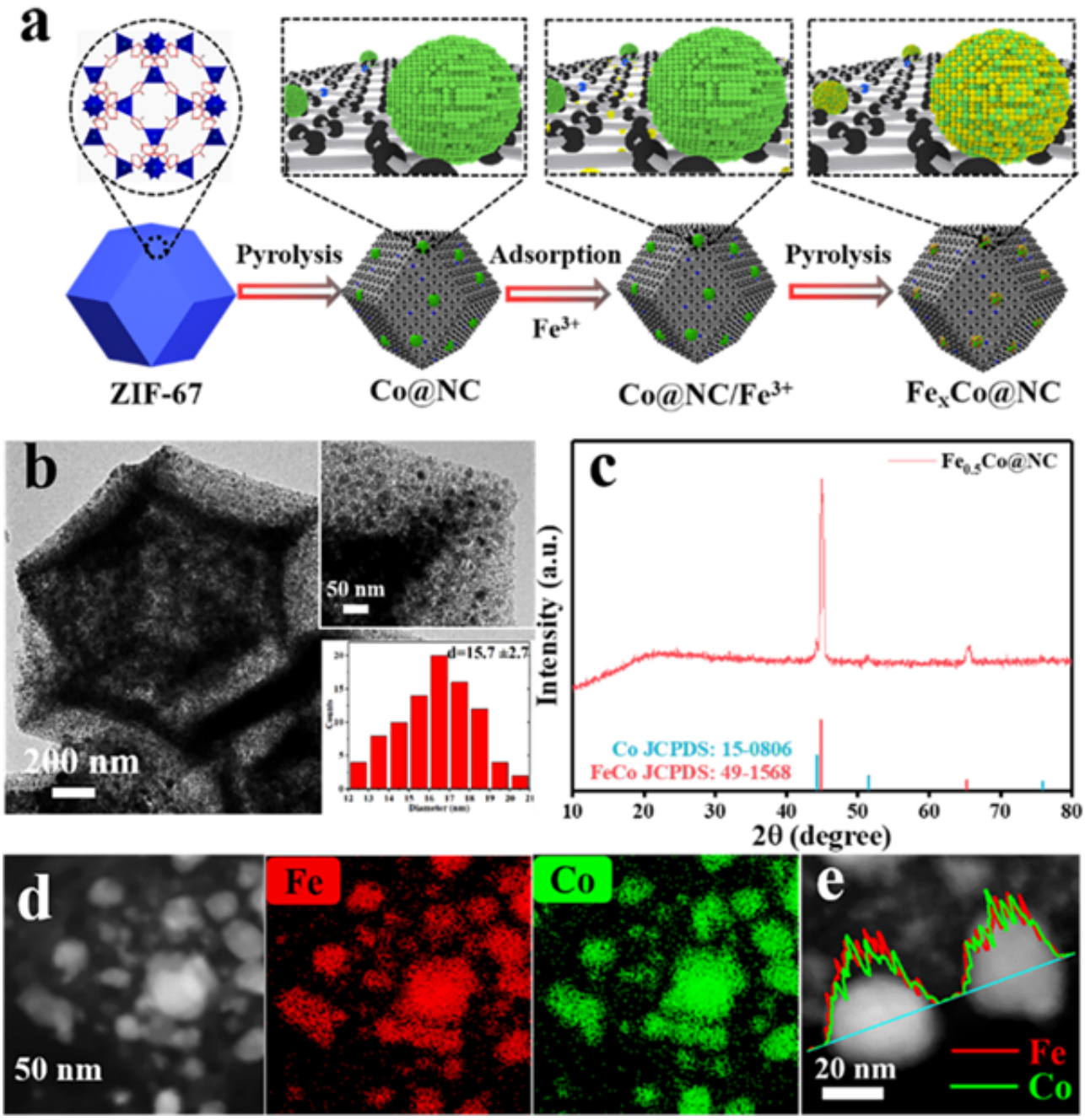


图1.（a）Fe-Co合金催化剂的合成示意图；（b）$Fe_{0.5}Co@NC$催化剂TEM图（插图：高倍率TEM图和Fe-Co NPs尺寸分布）；（c）XRD图；（d）HAADF-STEM图及相应元素mapping图；（e）Fe-Co合金颗粒的线扫图

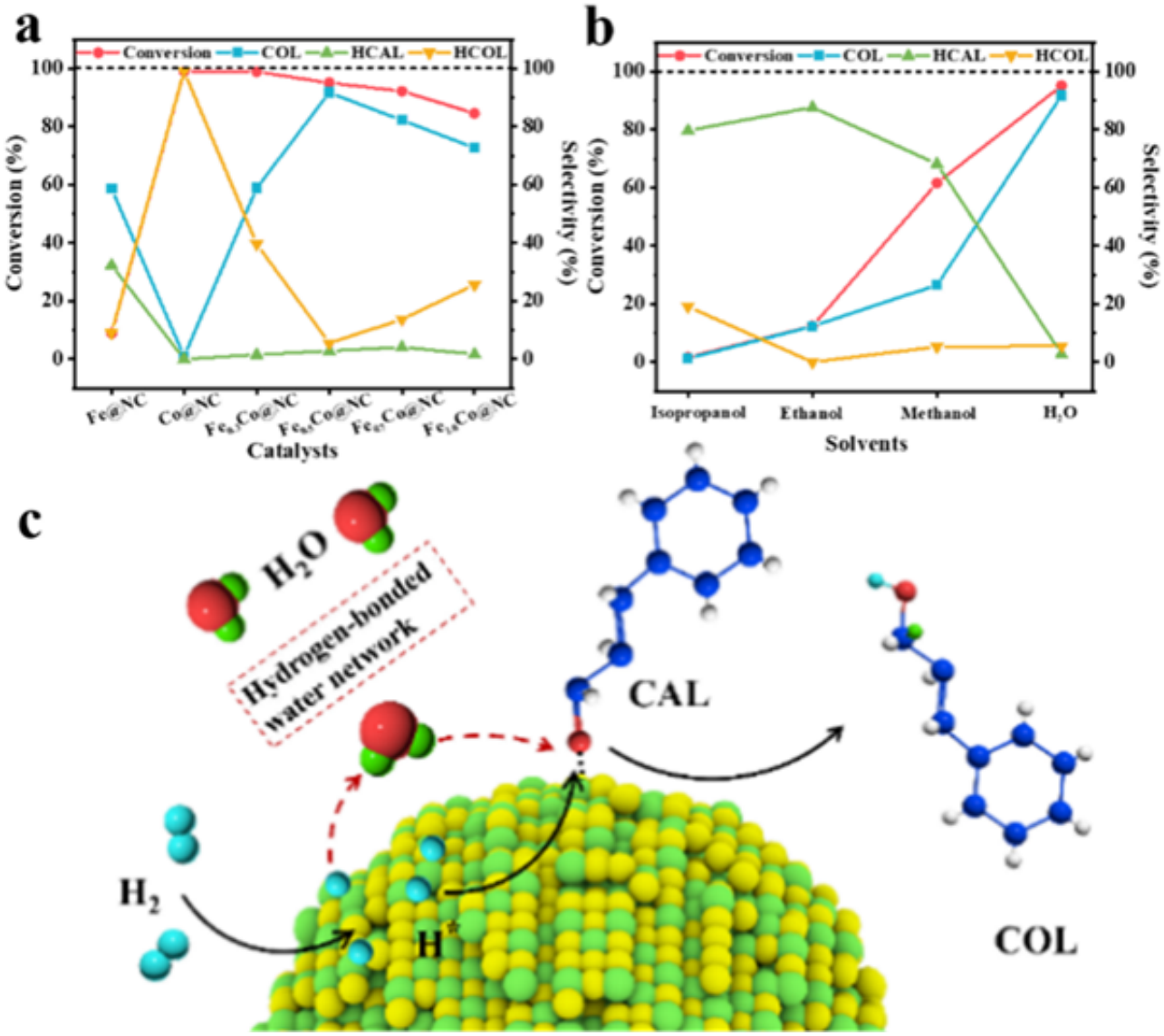


图2.（a）Fe@NC，Co@NC以及Fe-Co合金催化剂催化肉桂醛加氢的催化性能（80°C，2h，2MPa，H_2O）；（b）不同溶剂下$Fe_{0.5}Co@NC$催化肉桂醛加氢性能对比（80°C，2h，2MPa）；（c）肉桂醛水相加氢反应示意图

研究团队单位：合肥物质科学研究院

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发