

金属所在亚纳米尺度原子级分散Pd金属催化加氢材料研究中获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/16409.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！

近日，中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家研究中心研究员刘洪阳等，与北京大学教授马丁、东北大学教授孙宏滨、香港科技大学教授王宁，以及中科院山西煤炭化学研究所研究员温晓东等合作，凭借对亚纳米尺度Pd金属催化材料结构的精准调控，构建出亚纳米尺度下原子级分散全暴露Pd_n团簇和Pd单原子催化材料，并实现对腈类化合物加氢制胺类化合物的高选择性调控。相关研究成果在线发表在《自然-通讯》（Nature Communications）上。

在化学化工行业，尤其在药物合成中，胺类化合物是合成生物活性分子的重要原料，包括伯胺和仲胺。在工业和学术界中，制备胺类化合物的方法较多，如芳卤或醇的胺化、醛或酮的还原胺化、烯烃或炔烃的氢胺化、腈类的氢化、烷基化胺化、碱促进的单烷基化等。腈类化合物的氢化反应因其便于选择性制备相应的胺类和亚胺类而受到关注。然而，由于腈类化合物具有较高的热力学稳定性，使腈类化合物高选择性转化到目标胺类化合物的氢化反应较为困难。因此，寻找合适的催化剂，精确控制氢化产物的选择性，剖析催化加氢机理是催化材料开发中的关键。

近年来，刘洪阳团队致力于亚纳米尺度金属催化材料的设计与应用研究。在前期研究的基础上，科研团队在纳米金刚石-石墨烯杂化载体上构造了亚纳米尺度完全暴露Pd金属团簇和Pd单原子催化材料，并运用球差电镜和X射线吸收谱（图1）对其进行系统表征。结果表明，原子级分散的Pd单原子（Pd₁/ND@G）和完全暴露的Pd_n团簇（Pd_n/ND@G）锚定在富缺陷石墨烯表面。同时，研究还比较了Pd单原子和Pd团簇之间催化苯甲腈加氢的活性和选择性差异（图2）。密度泛函理论（DFT）计算结果表明（图3），苯亚胺（BI）中间体在Pd单原子上具有较长的保留时间，以至于另一份氢分子不能活化，有利于其与苯胺（BA）进一步发生缩合生成二苯胺（DBA）。而在全暴露Pd团簇结构上，氢气分子易在其上面发生解离，有利于苯胺（BA）的生成。亚纳米尺度下Pd单原子与Pd_n金属团簇活性中心结构与苯甲腈高选择性加氢的结构调控关系（图4）显示了在化工、医药等领域的潜在应用价值。目前，刘洪阳团队在与企业合作，应用推广该项加氢技术。

研究工作得到国家重点研发计划“纳米前沿”重点专项青年科学家项目，国家自然科学基金联合基金项目企业创新发展联合基金、碳基能源重大研究计划重点项目、国际合作中港联合基金项目、面上项目，以及辽宁省“兴英才计划”、沈阳材料科学国家研究中心青年人才项目与企业合作项目、上海同步辐射光源的支持。

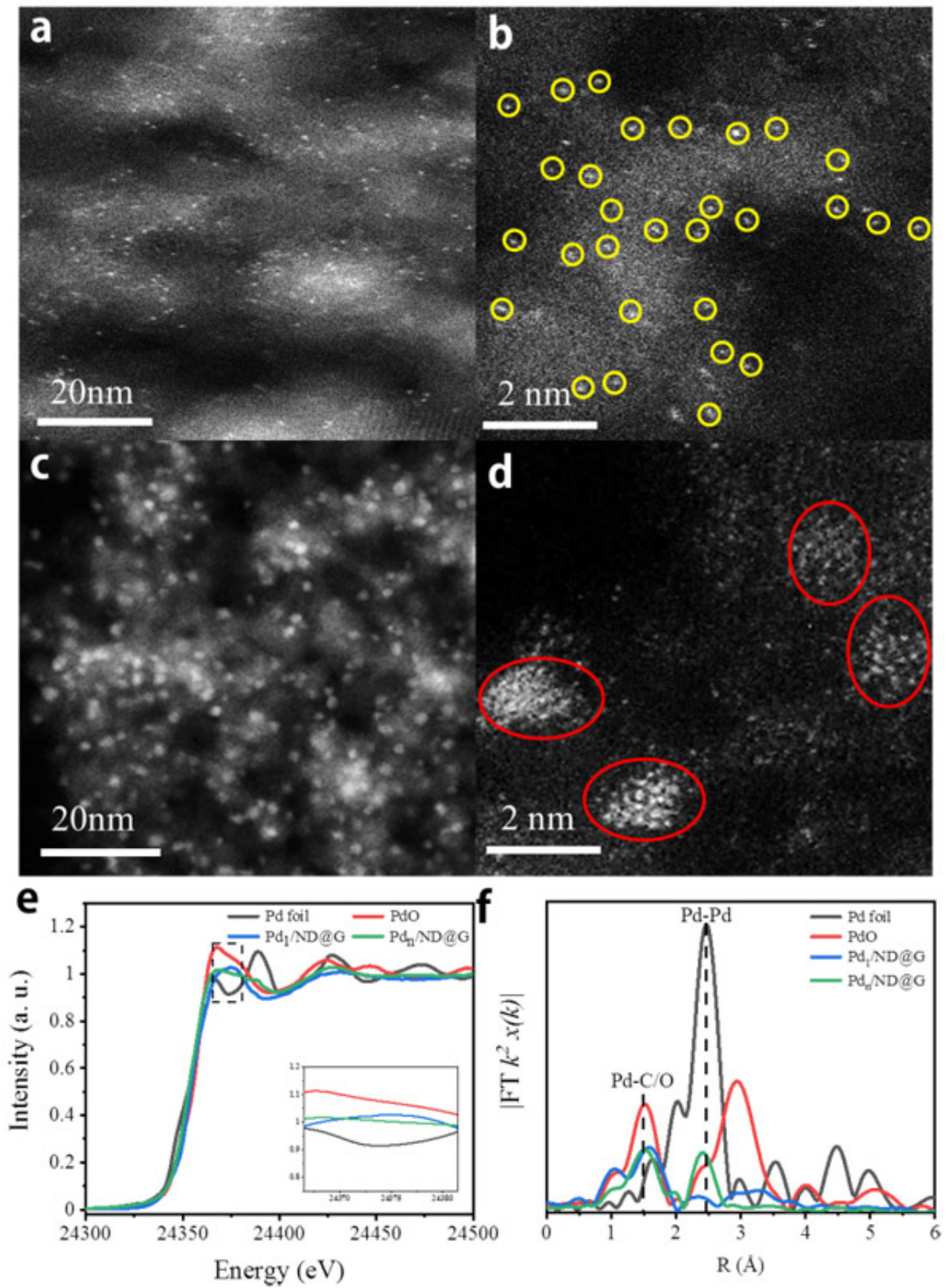


图1. (a、b) 亚纳米尺度Pd单原子 ($\text{Pd}_1/\text{ND@G}$) 的球差电镜表征；(c、d) 亚纳米尺度全暴露 Pd_n 金属团簇 ($\text{Pd}_n/\text{ND@G}$) 的球差电镜表征；(e、f) 催化剂同步辐射 (XAFS) 表征结构

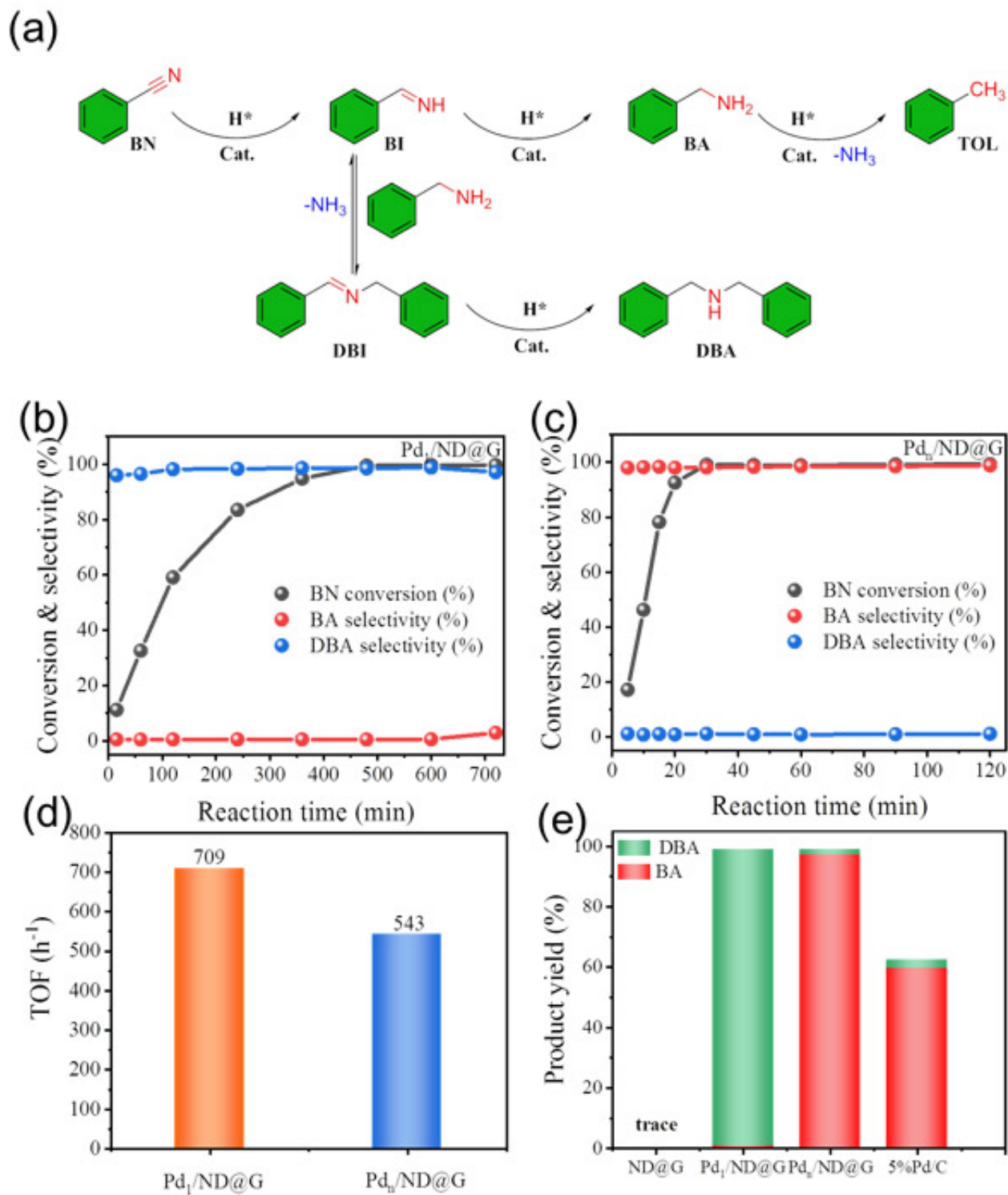


图2. (a) 苯甲腈加氢反应过程示意图；(b-e) 催化剂加氢催化活性

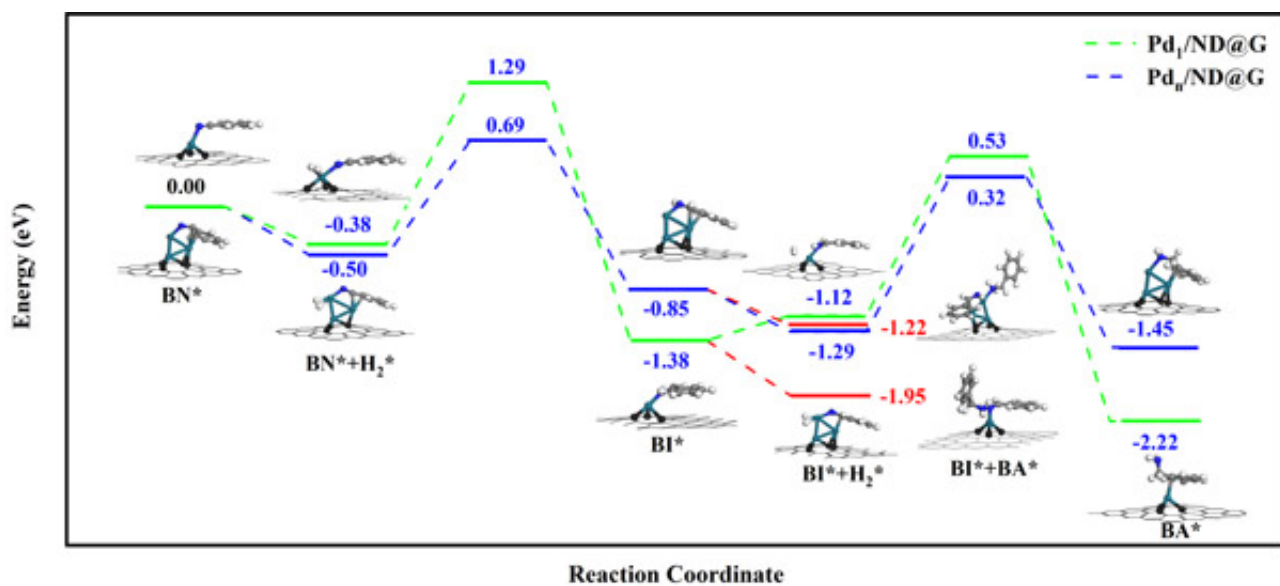


图3. Pd₁-Gr和Pd_n-Gr结构模型上苯甲腈加氢能量变化曲线

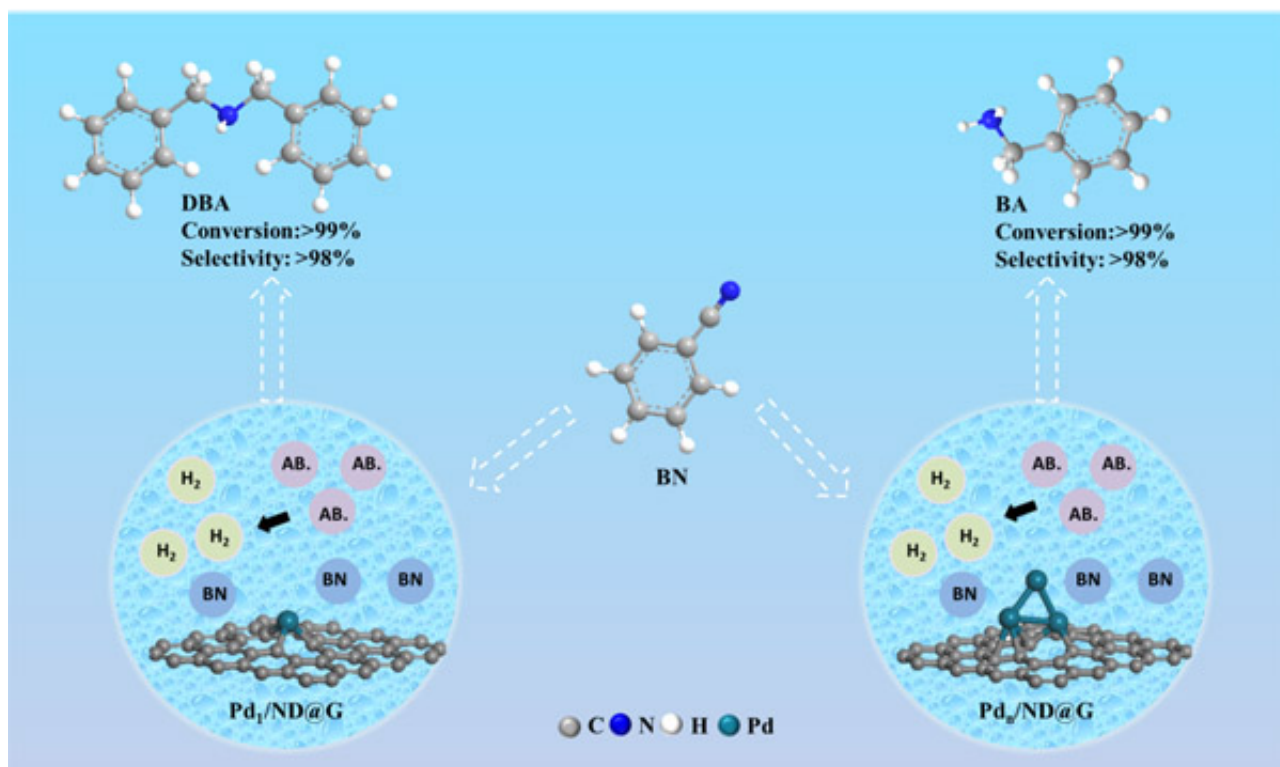


图4. 亚纳米尺度下Pd单原子与全暴露Pd_n金属团簇活性中心结构与苯甲腈加氢示意图

研究团队单位：金属研究所

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](http://iikx.com)转发