
天津大学实现具有电子耦合效应的Pd-Fe原子对催化剂

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/16984.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！

天津大学实现具有电子耦合效应的Pd-Fe原子对催化剂。

2021年12月26日，天津大学邹吉军教授、潘伦特聘研究员团队在J. Am. Chem. Soc.上发表了一篇题为Pd/Fe₂O₃ with Electronic Coupling Single-Site Pd – Fe Pair Sites for Low-Temperature Semihydrogenation of Alkynes的新研究。

课题组通过在赤铁矿特定晶面上负载单位点Pd催化剂，实现了具有电子耦合效应的Pd-Fe原子对催化剂的制备，该催化剂在炔烃的低温选择性加氢反应中表现出超高的活性和选择性。

论文通讯作者是邹吉军、潘伦；第一作者是高睿杰、徐继盛。

石油工业生产的乙烯通常含有微量的乙炔杂质，炔烃选择性加氢制烯烃常用于乙烯提纯，获得聚合级乙烯。Pd系催化剂因能有效活化H₂而被广泛应用于乙炔的选择性加氢反应中，但由于Pd催化剂对乙烯的强吸附，常产生不可逆的过度加氢和聚合产物。打破钯的集团效应，如选择性毒化和覆盖钯的部分位点，可以抑制乙烯吸附，提高选择性，但这通常以牺牲钯的活性和利用效率为代价。此外，由于催化剂表面吸附物种之间的线性比例关系，H₂的活化和解离也受到限制，导致此类反应温度都比较高。因此，开发一种同时具有高选择性和高活性的炔烃低温选择性加氢催化剂具有挑战性。

此前，天津大学的邹吉军、潘伦团队将Pt原子负载在赤铁矿012晶面，成功构建了Pt-Fe原子对，并发现在强电子耦合作用下Fe的电子转移至Pt，部分占据d轨道，能够协同催化O-O解离。在碱性条件下，该催化剂ORR起始电位和半波电位分别为1.15V和1.05V，质量活性达14.9 A mg⁻¹Pt@0.95 V（详见Nat. Energy 2021, 6, 614）。近日，他们通过在赤铁矿特定晶面上负载单位点Pd催化剂，实现了具有电子耦合效应的Pd-Fe原子对催化剂的制备，该催化剂在炔烃的低温选择性加氢反应中表现出超高的活性和选择性。同时，原位表征结果和理论计算结果证明了Pd-Fe原子对继承了Pd颗粒高活性和Pd单原子高选择性的优势，为实验结果提供了强有力的支撑。

该催化剂实现了低温炔烃选择性加氢。在间歇式反应中，炔烃选择性加氢制烯烃的转化率接近100%，选择性>97%。在固定床连续反应精制乙烯中，乙炔在353 K时的转化率为99.6%，选择性为96.7%，在393 K时的转化率为100%，选择性为94.7%，在200小时的持续反应中稳定。

Table 1. Catalytic Performance for Semihydrogenation of Phenylacetylene and Other Substituted Alkynes over Pd₁-Fe/Fe₂O₃(012) and Reference Catalysts^a

Entry	Catalyst	Subs. ^b	Prod. ^c	Time (min)	Temp. (K)	Conv. (%) / Sel. (%) ^d
1	Fe ₂ O ₃ (012)			600	393	n.d.
2	Pd ₅₀₇ /Fe ₂ O ₃ (012)			50	393	100/7.6
3	1%Pd/C			60	393	99.0/5.3
4	Pd ₁ -Fe/Fe ₂ O ₃ (012)			70	303	100/>99.9
5	Pd ₁ -Fe/Fe ₂ O ₃ (012)			50	393	100/99.1
6	Pd ₁ -O/Fe ₂ O ₃			600	303	n.d.
7	Pd ₁ -O/Fe ₂ O ₃			50	393	56.3/>99.9
8	Pd ₁ -Fe/Fe ₂ O ₃ (012)			60	353	100/98.3
9	Pd ₁ -Fe/Fe ₂ O ₃ (012)			60	353	100/97.4
10	Pd ₁ -Fe/Fe ₂ O ₃ (012)			70	353	100/99.0
11	Pd ₁ -Fe/Fe ₂ O ₃ (012)			90	353	100/98.1
12	Pd ₁ -Fe/Fe ₂ O ₃ (012)			80	353	100/97.8

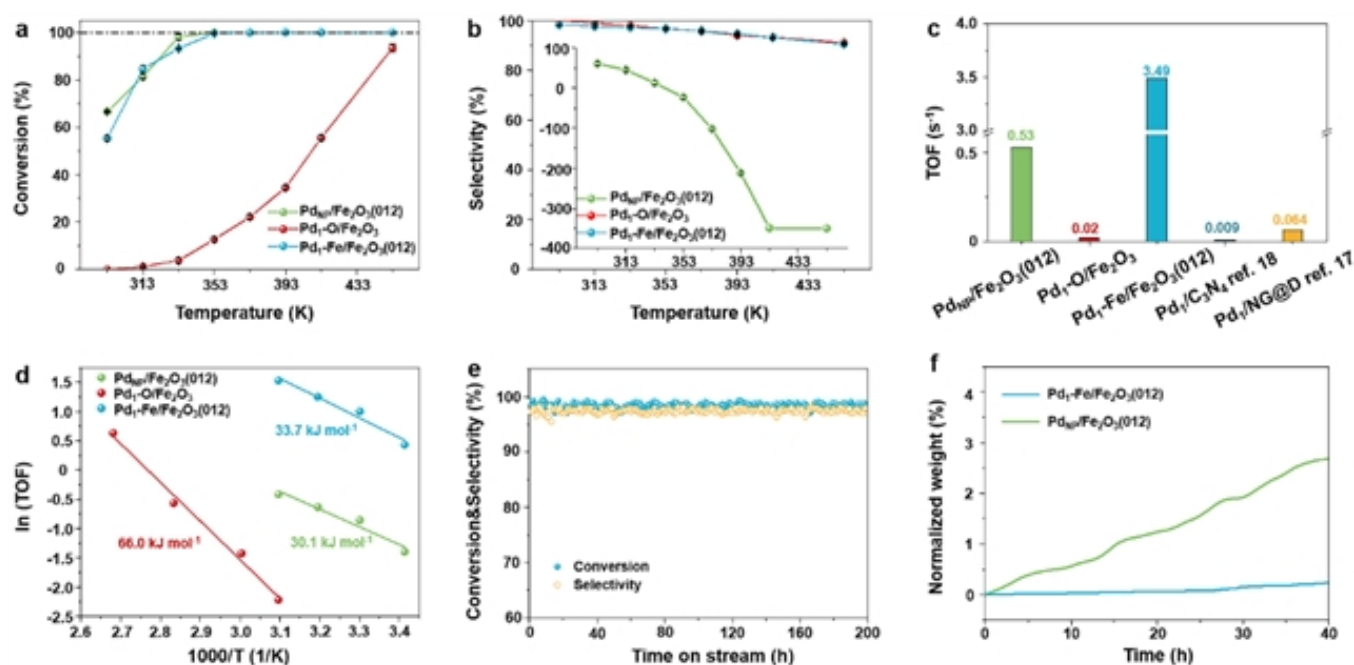


Figure 1. Catalytic performance of acetylene semihydrogenation.

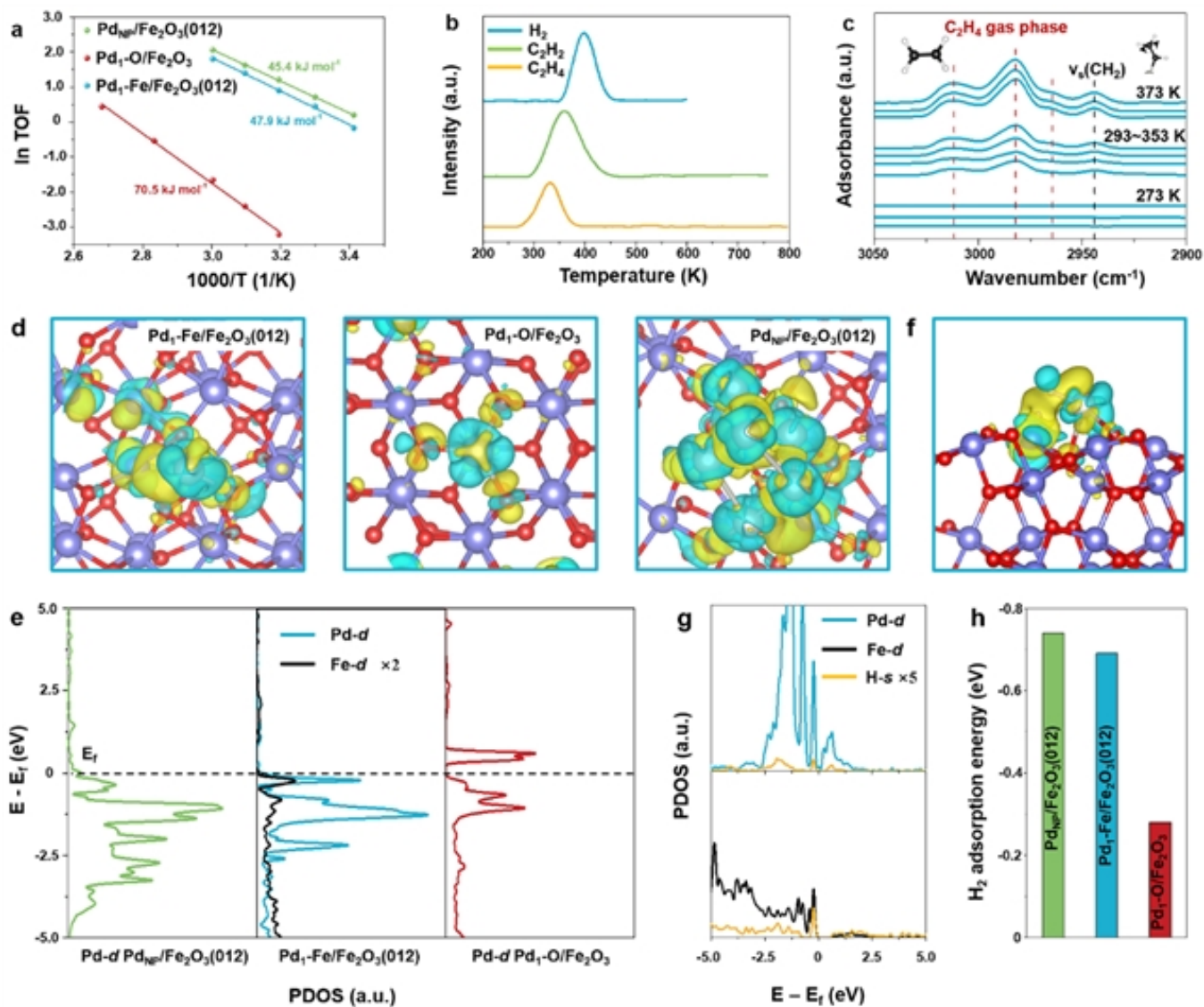


Figure 2. H₂ adsorption and activation over sing-site Pd-Fe pairs by spectroscopic and DFT investigations.

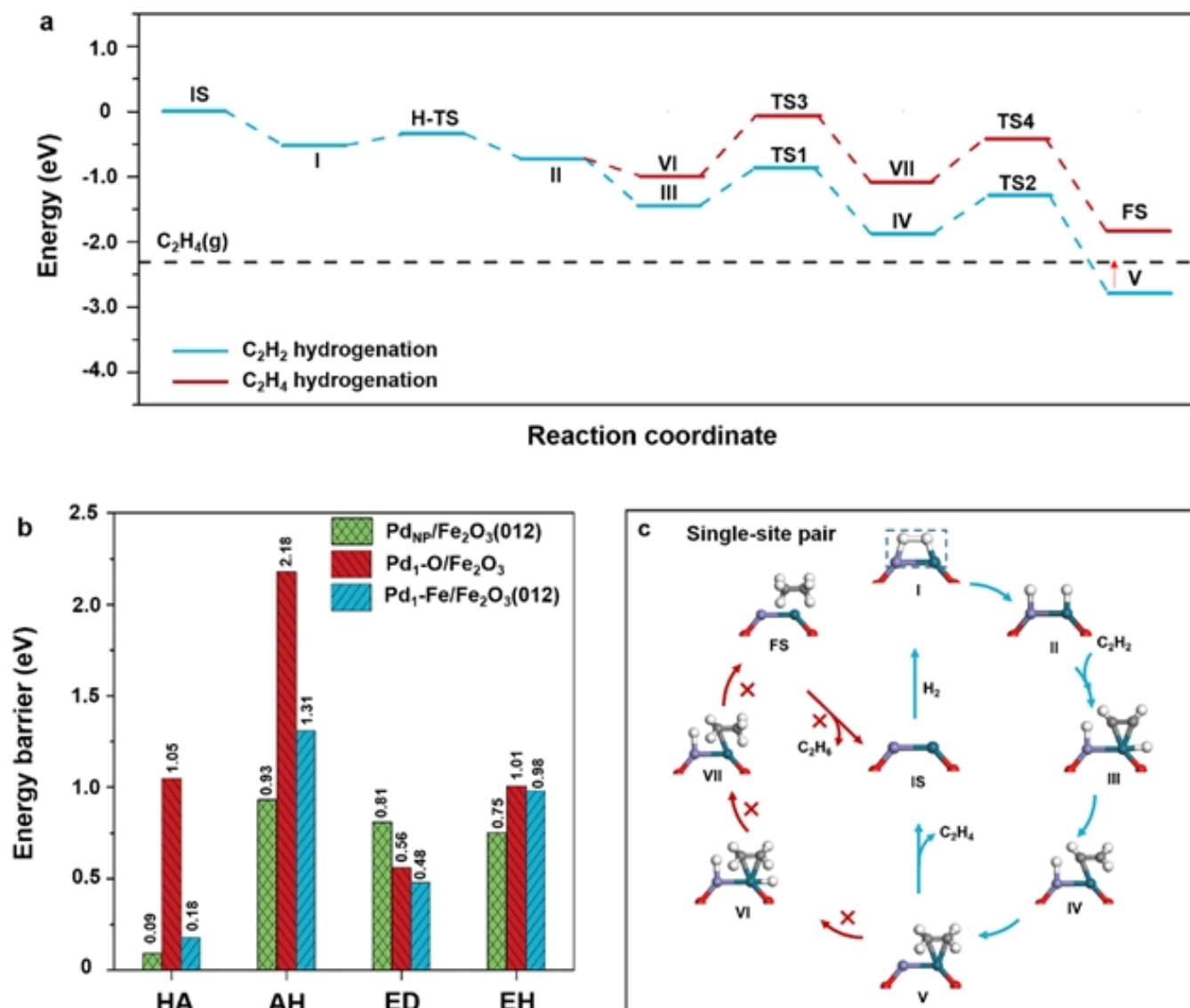


Figure 3. Semihydrogenation mechanism and energies over single-site Pd-Fe pairs by DFT calculation.

近期研究成果将单位点催化剂扩展为原子对催化剂，克服了单位点催化剂的缺点，为小分子活化反应提供了一种很有前景的低成本高效催化剂，并为新型原子对催化剂的设计提供了新的思路。

（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1021/jacs.1c11740>

作者：邹吉军等 来源：《美国化学会志》

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

本文版权归作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](http://iikx.com)转发