

青岛能源所等开发出亚纳米Fe团簇和单原子协同催化 高效合成亚胺新策略

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/18204.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！

近年来，非贵金属氮掺杂碳基单原子催化剂（M-N-C）因其原子利用率高、结构可调性强、稳定性好等优势，在能源存储与转化、生物医学、有机催化转化等领域被广泛应用。目前高温热解法仍是最为普遍采用的M-N-C催化剂制备方法，但在高温热解过程中不可避免会导致金属纳米颗粒（NPs）或亚纳米团簇（NCs）的形成。在以往研究中，这些NPs或NCs通常被视为原子利用率较低的情性组分而被刻意去除；但在实际操作过程中很难通过后处理方式被完全除去。因此，在研究过程中往往忽视少量共存的NPs或NCs对催化反应活性的贡献。前期，中国科学院青岛生物能源与过程研究所研究员杨勇团队利用廉价可再生含氮生物质竹笋和非贵金属铁盐为原料，通过便捷环保、可放大的直接

热解策略构建了一种具有碳层包覆Fe/Fe₃C纳米颗粒和Fe-N_x

活性位点共存的核壳结构纳米杂化催化剂Fe-Fe₃C@NC-

T（T代表煅烧温度），获益于金属纳米颗粒Fe/

Fe₃C和Fe-N_x

活性位点之间的协同催化作用，实现了温和条件下醛胺氧化偶联制备喹啉及喹啉酮等重要生物活性含氮化合物的绿色高效合成（Chem. Sci., 2019, 10, 10283-10289）。近期，基于对上述多活性位点间协同催化作用机制研究的认识，该团队等研究人员通过控制酸刻蚀条件，开发了可控制备具有亚纳米Fe团簇和单原子位点共存（Fe-NC-SA）和Fe单原子（Fe-SA）炭基纳米结构催化剂（图1），并实现了温和条件下芳香、杂环和脂肪类伯胺类化合物氧化偶联反应合成亚胺类化合物的高效绿色合成（图2）。实验

和理论研究表明，单原子Fe-N₃

位点是主要的催化活性中心，邻

近位共存的亚纳米Fe团簇与Fe-N₃

位点之间存在强烈的相互作用，两者间的“协同”作用不仅利于氧气分子和反应底物胺化合物的吸附，促进了氧气分子的活化并选择性生

成单线态氧（¹O₂

）活性氧物种，进而加速苄胺分子通过掘氢（HAA）路径形成关键亚胺中间体，同时有效降低形成亚胺中间体反应决速步骤的反应能垒，从而实现了催化反应活性的提高。该研究不仅为合成具有重要价值的亚胺类化合物提供了绿色、高效的新反应路径，也为开发高效单原子催化剂（M-N-C）提供了新策略。相关研究成果近期发表在《美国化学会催化杂志》（ACS

Catalysis

）上。相关研究工作得到国家自然科学基金、山东省自然科学基金重点项目、英国皇家学会“牛顿高级学者”基金等项目的支持。[论文链接](#)

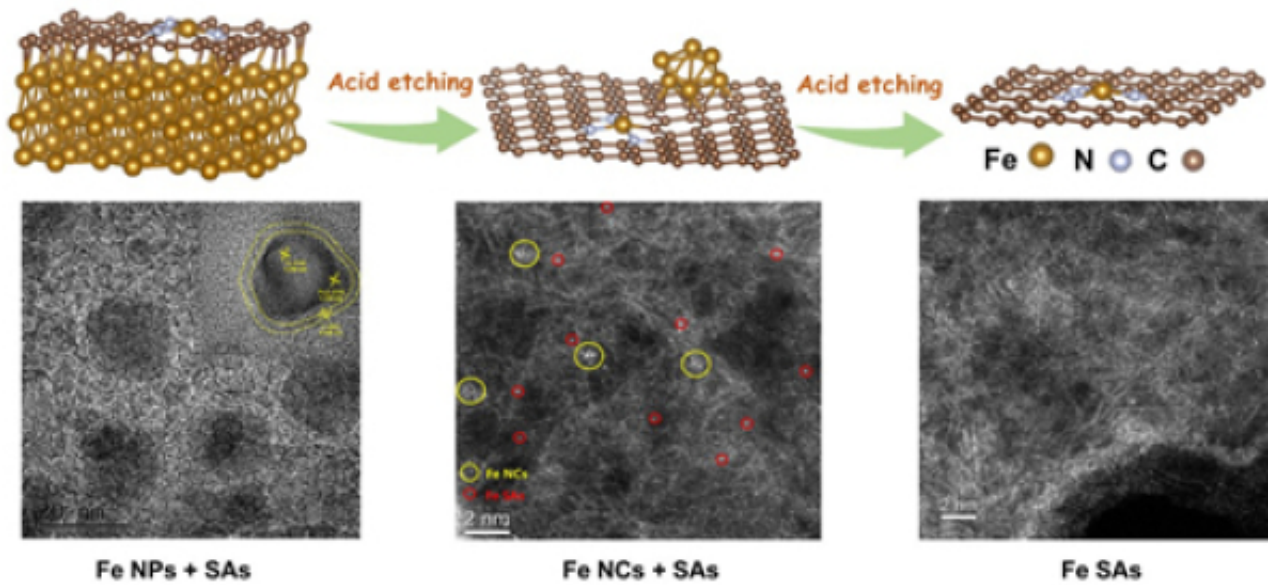


图1 Fe-NP-SA、Fe-NC-SA和 Fe-SA催化剂制备及结构表征

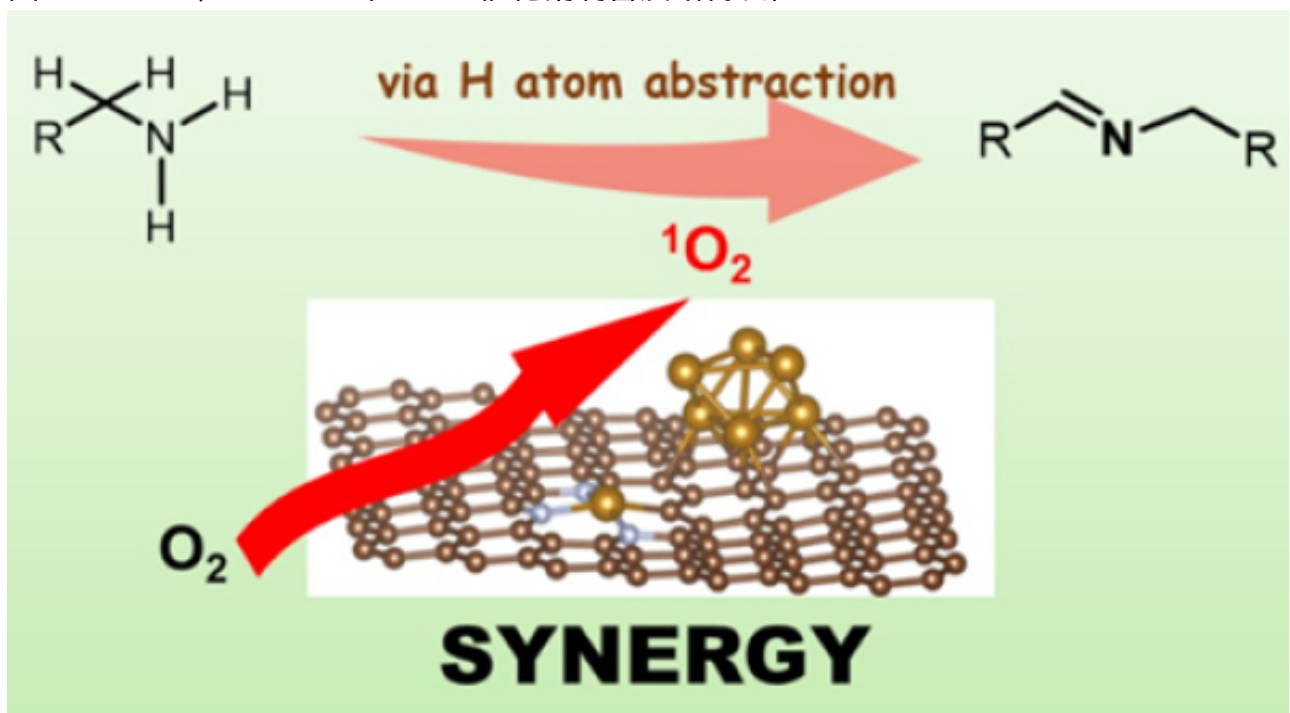


图2 Fe团簇与单原子共存协同催化亚胺化合物合成
研究团队单位：青岛生物能源与过程研究所

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