大连化物所锰基合成氨催化剂研究取得新进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/2621.html

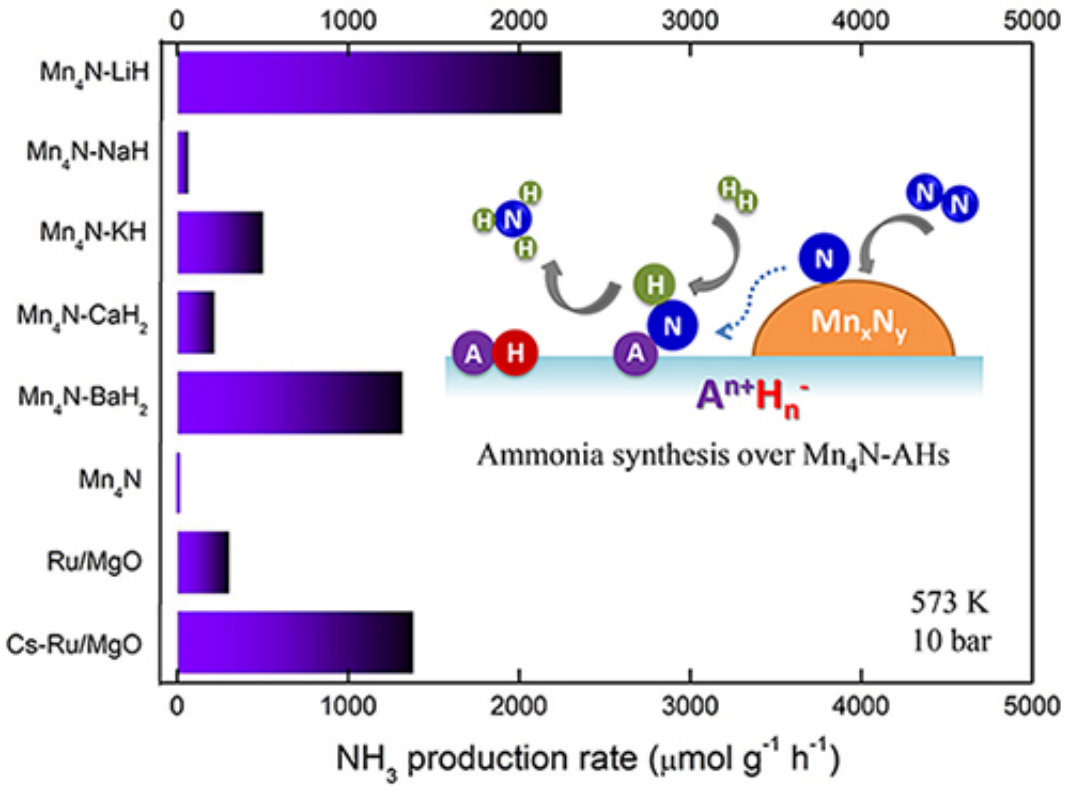
本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

大连化物所锰基合成氨催化剂研究取得新进展。近日，中国科学院大连化学物理研究所复合氢化物材料化学研究组研究员陈萍、副研究员郭建平和博士常菲等在锰基催化剂的合成氨研究方面取得新进展。相关研究结果以全文形式发表在《美国化学会志》(J. Am. Chem. Soc.，DOI: 10.1021/jacs.8b08334)上。

过渡金属上氨的合成是多相催化领域的重要研究课题。钌(Ru)和铁(Fe)因具有较为适中的氮(N)吸附能，表现出优异的合成氨催化性能，被应用于工业合成氨过程中。而钒(V)、铬(Cr)、锰(Mn)等前过渡金属由于对N物种吸附较强，在合成氨反应气氛中易形成稳定的氮化物相，阻碍了后续加氢步骤，展示出较差的合成氨活性，长期以来并未引起研究人员的广泛关注。

针对这一问题，该研究团队在前期工作基础上(Nature Chem.，ACS Catal.，Angew. Chem. Int. Ed.)，选取Mn金属为代表，系统研究了碱(土)金属氢化物(LiH, NaH, KH, BaH2, CaH2)对Mn金属合成氨催化作用的影响。实验结果表明，碱(土)金属氢化物的加入可使Mn的合成氨催化活性提高1至3个数量级，其中Mn-LiH和Mn-BaH2甚至可与贵金属Ru基催化剂相媲美。此外，研究结果也显示了碱(土)金属氢化物对Mn的促进效应顺序与常规碱(土)金属氧化物电子助剂明显不同。热力学分析及表征结果揭示了合成氨反应条件下，碱(土)金属氢化物与亚氨基化合物之间的物相转变，以及其与氮化锰之间的相互作用是其促进效应的本质原因。科研人员通过对Mn-LiH催化体系的构效关系进行深入研究发现，催化剂的活性相及其动力学行为(表观活化能，速控步骤等)强烈依赖于温度、空速等反应条件，这是区别于常规合成氨催化剂的又一特征。这一研究成果或可为“激活”前过渡金属的合成氨催化行为提供一个行之有效的催化剂设计策略。

该研究工作与北京大学教授李星国合作完成。该研究得到国家自然科学基金委、中日政府间合作项目、教育部能源材料化学协同创新中心(iChEM)、大连化物所甲醇转化与煤代油新技术基础研究专项(DICPDMTO)及中科院青促会项目的资助。此外，这也是献礼大连化物所七十周年所庆文章之一。



大连化物所锰基合成氨催化剂研究取得新进展

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