
研究揭示多相烯烃氢甲酰化区域选择性动态调控机制

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/29043.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！

研究揭示多相烯烃氢甲酰化区域选择性动态调控机制。 近日，中国科学院大连化学物理研究所研究员严丽和研究员丁云杰团队在丙烯多相氢甲酰化区域选择性动态调控机制方面取得新进展。相关成果发表在《自然-通讯》上。

烯烃氢甲酰化是目前化工行业体量最大的均相催化过程之一，全球每年通过烯烃氢甲酰化及其加氢技术生产的醛和醇的总产能已经达到了2500万吨，其中丙烯氢甲酰化生产丁辛醇的产量更是高达1600万吨。该反应主要使用均相铑膦络合物催化剂，存在产物分离困难及贵金属流失等问题，且相关核心技术被外国公司垄断。

严丽、丁云杰团队多年来致力于氢甲酰化均相催化多相化技术的研究，开发出高活性、高稳定性的多孔有机聚合物负载型铑基单原子催化剂（Rh-POPs），并应用于乙烯多相氢甲酰化反应，解决了传统技术贵金属和配体流失的难题。2020年8月，该技术实现全球首套5万吨/年乙烯多相氢甲酰化及其加氢制正丙醇技术的工业化应用，至今工业装置已平稳运行4年。随着研究的深入，将丙烯氢甲酰化技术推向多相工业化应用的新阶段，不仅要求催化剂保持良好的活性和稳定性，还需精细调控产物醛的区域选择性，以满足更加复杂多变的化工生产需求。鉴于此，深入剖析并明确丙烯氢甲酰化过程中区域选择性的调控机制，成为推动该技术发展的关键所在。

为揭示区域选择性动态调控机制，研究团队结合多种原位及准原位谱学技术深入探究工业应用的Rh-POPs催化剂活性中心的精准结构，以及其在真实反应条件下的动态演变过程。研究发现，在氢甲酰化过程中，客体分子在多重Rh-P配位活性中心上的吸附、活化、反应及脱附伴随着Rh-P半稳定配位键的断裂及重新键合。这一过程使得Rh-P活性中心在open和closed的配位状态中动态变化，进而形成不同的空间位阻来调控产物醛的区域选择性。

该工作有助于理解多相催化中半配位效应如何影响金属活性中心的电子状态及几何构型，进而影响催化剂的活性及区域选择性，同时也为高效氢甲酰化催化剂的理性设计提供了新的思路。（来源：中国科学报 孙丹宁）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41467-024-51281-1>

作者：严丽等 来源：《自然—通讯》

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](https://www.iikx.com)转发