FCSE 前沿研究：苯选择性氧化为苯酚的4N调控单原子催化剂的综合机理和微观动力学模型驱动的合理筛选

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/32007.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！

FCSE 前沿研究：苯选择性氧化为苯酚的4N调控单原子催化剂的综合机理和微观动力学模型驱动的合理筛选。论文标题：Comprehensive mechanism and microkinetic model-driven rational screening of 4N-modulated single-atom catalysts for selective oxidation of benzene to phenol

期刊：Frontiers of Chemical Science and Engineering

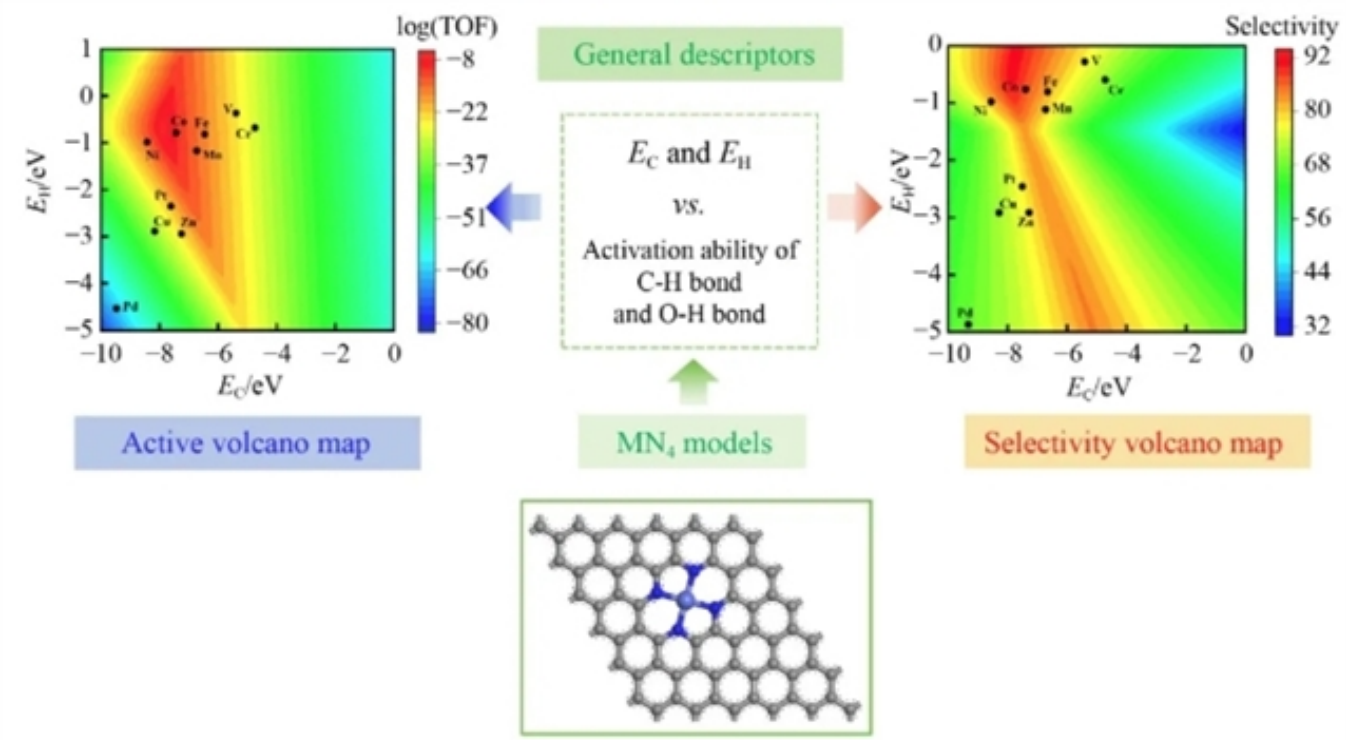
作者：Rong Fan, Jiarong Lu, Hao Yan, Yibin Liu, Xin Zhou, Hui Zhao, Xiang Feng, Xiaobo Chen, Chaohe Yang

发表时间：15 Nov 2024

DOI：10.1007/s11705-024-2488-z

微信链接：点击此处阅读微信文章

阅读原文请点击Comprehensive mechanism and microkinetic model-driven rational screening of 4N-modulated single-atom catalysts for selective oxidation of benzene to phenol



文章速览

由于缺乏全面的机理和机理驱动方法，探索有效的过渡金属单原子催化剂用于苯选择性氧化成苯酚仍然是一个巨大的挑战。本文通过密度泛函理论和微动力学建模方法系统筛选了嵌入石墨烯的4N配位过渡金属单原子催化剂（TM1-N4/C），以评估其在苯氧化反应中的选择性和活性。我们的研究结果表明，单个金属原子触发H2O2解离形成活性氧物种（O*）。O*的孤电子对特性使O*通过与苯的C原子构建C-O键来激活苯的C-H键，促进了苯酚产物的形成。此外，苯捕获O*形成苯酚后，带正电荷的裸露单金属原子通过与苯酚中的O原子发生电子相互作用，活化苯酚O-H键，诱导苯醌副产物的生成。O-H键的活化过程伴随着H原子落到载体上。在此基础上，我们可以推断C原子在O*上的吸附能（EC）和H原子在TM1-N4/C上的吸附能（EH）分别代表苯C-H键和苯酚O-H键的活化能力，因此它们可以作为描述催化活性和选择性的描述符。此外，基于获得的火山图，适当的EC（-8至-7 eV）和弱化的EH（-1.5至0 eV）有助于优化苯氧化成苯酚的催化性能。本研究为合理设计在烃类氧化过程中表现出良好催化性能的金属单原子催化剂提供了深刻的见解。

引用格式：Rong Fan, Jiarong Lu, Hao Yan, Yibin Liu, Xin Zhou, Hui Zhao, Xiang Feng, Xiaobo Chen, Chaohe Yang. Comprehensive mechanism and microkinetic model-driven rational screening of 4N-modulated single-atom catalysts for selective oxidation of benzene to phenol. Front. Chem. Sci. Eng., 2024, 18(11): 137 https://doi.org/10.1007/s11705-024-2488-z

作者及团队介绍

闫昊副教授（通讯作者），中国石油大学（华东）硕士生导师，主要进行多元醇氧化、氨氧化和胺化以及催化裂化等方向的催化剂研发等相关研究。研究思路为DFT理论计算-催化剂设计-反应动力学-过程模拟放大；以第一/通讯作者在Nat. Comm.、Angew. Chem. Int. Ed.、ACS. Catal.、J. Catal.、AIChE. J.等发表论文40余篇，申请专利16项；主持山东省自然科学基金优秀青年

基金、国家自然科学基金青年基金等8项。

陈小博教授（通讯作者），中国石油大学（华东）博士生导师，主要研究方向为催化反应工程、石油与天然气化工、废塑料资源化利用、过程优化与计算化学。作为负责人承担多项国家级、省部级及横向课题20多项。不仅涉及基础理论研究，也为企业解决很多实际问题；在Science、Nat. Comm.、Angew. Chem. Int. Ed、Chem. Eng. J等发表学术论文100余篇。

团队介绍：

中国石油大学（华东）催化反应工程课题组，秉持守正出奇，同心致远的团队精神，以石油化工为特色，聚焦催化裂化/裂解、新材料与催化剂、重质油转化、生物质转化等方向。课题组内导师有李春义、杨朝合、陈小博、刘熠斌、闫昊等老师。近年来课题组在AIChE J., Angew. Chem. Int. Ed., ACS Catal., J. Catal., Fuel, Chem. Eng. Sci, Int. Ed. Chem. Res等期刊公开发表论文200余篇，参编教材2部；授权专利50多项；在研及完成973子课题2项，国际重大合作项目2项，国家自然科学基金重点项目2项，国家自然科学基金面上及青年项目10项，中石油重大科技攻关项目3项等纵向、横向课题近百项。目前，科研团队荣获国家科技进步奖2项，教育部技术发明一等奖等省部级科技奖励12项。

《前沿》系列英文学术期刊

由教育部主管、高等教育出版社主办的《前沿》（Frontiers）系列英文学术期刊，于2006年正式创刊，以网络版和印刷版向全球发行。系列期刊包括基础科学、生命科学、工程技术和人文社会科学四个主题，是我国覆盖学科最广泛的英文学术期刊群，其中12种被SCI收录，其他也被AHCI、Ei、MEDLINE或相应学科国际权威检索系统收录，具有一定的国际学术影响力。系列期刊采用在线优先出版方。

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