

科研人员光催化合成公斤级氘代化学品

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/38105.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！

科研人员光催化合成公斤级氘代化学品

。近日，中国科学技术大学团队提出了重水中氮杂芳烃发生氢氘交换的纳米光催化合成路线。在室温常压、可见光照射和惰性气体条件下，研究通过原子级钯分散的光催化剂（ Pd_1/TiO_2 ），驱动了公斤级氘代化学品的绿色合成，并揭示了其中关键催化机制。

氘作为氢的稳定同位素，具有重要的应用价值。氘代化合物的合成可以通过还原氘代、脱卤氘代、氢氘交换等方法实现。相比之下，氢同位素交换（HIE）能够以更直接和高效的方式实现分子的一步氘代，且使用相对廉价的同位素试剂重水 D_2O 作为唯一氘源更是广受青睐。然而，现有报道的N-杂芳烃HIE合成策略仍有局限。

研究设计了原子级分散Pd位点的纳米光催化剂，在可见光照射下活化N-杂芳烃的氮邻位C-H键，并与 D_2O 发生氢氘交换反应。与其他催化体系相比，低 D_2O 用量、可循环使用、宽泛的底物范围和公斤级氘代规模，突出了该纳米光催化系统的先进性。

研究以2-氨基嘧啶作为模型底物，在自研光催化反应器平台上考察了催化剂组分、LED光波长、反应时间等参数。结果表明，在室温、常压和1bar Ar 气氛中，可见光照射下， Pd_1/TiO_2 单原子光催化剂可实现2-氨基嘧啶4号位、6号位的99%氘代率。研究通过理化表征技术确定了Pd主要为原子级分散状态。对比试验则表明，该反应的主要活性位点可能来自Pd单原子物种。同时，催化剂的多次循环实验证明了其稳定性。机理研究表明，氮杂芳烃底物会先与纳米光催化剂上的Pd位点进行N原子配位吸附；光照下原位产生的富电子特性 $\text{Pd}^{\delta*}$ 位点，借助可能的氧化加成机制，来活化N邻位的 $\text{C}(\text{sp}^2)-\text{H}$ 键；该中间物种与 D_2O 发生氢氘交换和还原消除步骤，产生了氘代N-杂芳烃。释放的 $\text{Pd}^{\delta*}$ 位点则易被空穴或羟基自由基氧化回单原子 $\text{Pd}^{\delta+}$ 。

为验证该纳米光催化体系的实用性，研究人员进行了一系列放大实验。经LED灯带可见光照射，三轮反应后可获取约40

g氘代产物。通过循环利用重水，整个合成体系中D₂O与反应物的摩尔比可降低至19.7。研究人员在室内搭建了配备30个250mL光反应器的反应架，并批量化复制放大合成反应，最终分离收集了1.157kg氘代产物，证明该光催化合成体系具备良好的可靠性和可操作性。

相关研究成果发表在《自然-合成》（Nature Synthesis）上。《自然-合成》同期以研究简报形式对该工作进行了报道。研究工作国家自然科学基金等的支持。

[论文链接](#)

合成氘代N-杂芳烃的氢氘交换路线

单原子纳米光催化Pd₁/TiO₂-h的微观结构分析和重水中光催化HIE性能研究

氘代N-杂芳烃的光催化放大合成

研究团队单位：中国科学技术大学

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