



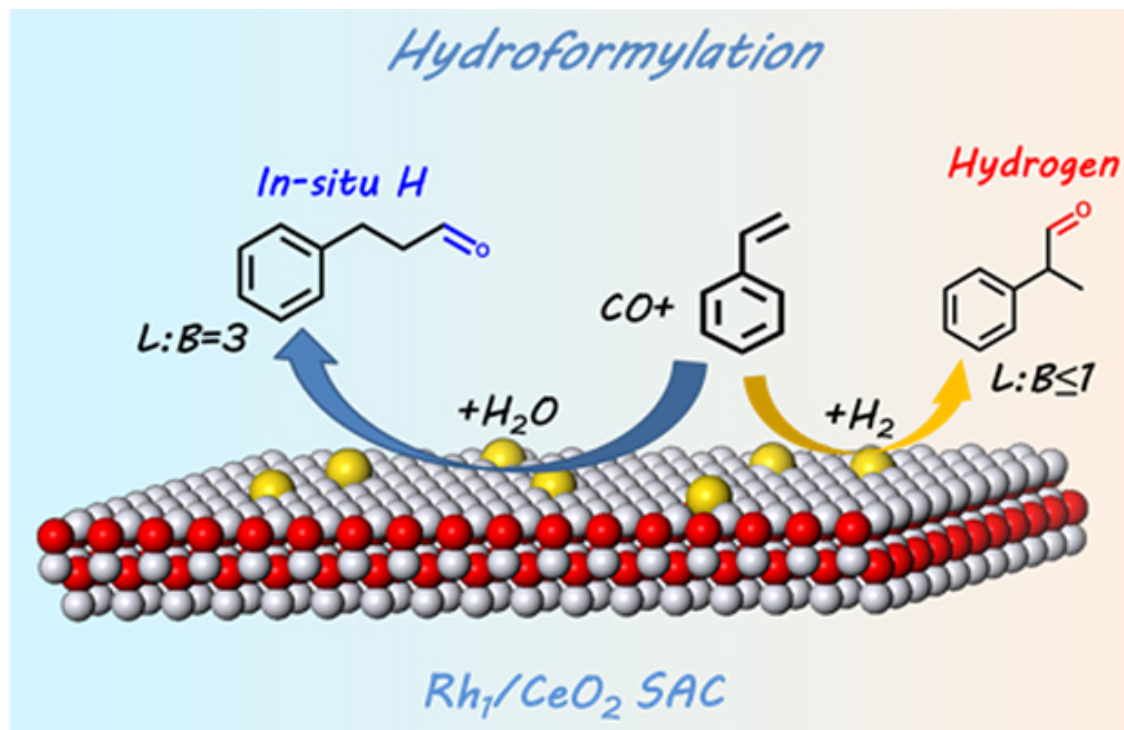
首页 | 概况简介 | 科技布局 | 人才队伍 | 科技动态 | 成果发布 | 规章制度 | 人才招聘 | 新闻动态 | 联系我们

单原子催化剂上芳香烃氢甲酰化实现区域选择性调控

时间：2020年04月27日 14:55 栏目：科技动态 浏览次数：78

近日，大连化物所催化与新材料研究室乔波涛研究员和张涛院士团队在单原子催化氢甲酰化研究方面取得新进展，首次发现通过反应耦合的方式调控产物的区域选择性：在不加任何配体的情况下，通过与水汽变换反应耦合，苯乙烯可高选择性地转化为3-苯基丙醛，正异比高达3：1。

烯烃与合成气通过氢甲酰化反应制备醛类精细化学品，是化工生产中最重要均相催化过程之一。在经典氢甲酰化条件（以氢气作为氢源）下，与链状烯烃相比，苯乙烯类底物由于苯环的电子效应，在氢甲酰化反应中更倾向于生成支链醛。只有在体系中加入结构更为复杂的多齿有机膦配体，才可高区域选择性地获得直链醛产物。该有机膦配体高昂的价格和更为复杂的制备过程限制了其实际应用。因此，针对苯乙烯类底物，探索控制其氢甲酰化反应区域选择性的新方法，具有极大的吸引力和挑战性。



本工作中，研究人员发现以Rh₁/CeO₂ SAC为催化剂，不加任何有机膦配体，在经典氢甲酰化条件下，苯乙烯氢甲酰化的正异比≤1；而当以CO、H₂O和苯乙烯为初始原料，通过水汽变换原位产氢提供氢源时，产物醛的正异比可至3。研究人员通过一系列对照实验，推测这是因为水汽变换产生的原位氢破坏了反应中间体的稳定结构，抑制了趋向于选择性生成异苯丙醛的反应机制，从而造成更高的正异比。另外，与Rh单原子催化剂相比，CeO₂负载的Rh纳米催化剂用于这一串联催化体系时，产物为苯丙醇，并且依然是正构产物为主；而均相Rh催化剂由于催化水汽变换能力较差，导致在这一串联体系中表现出极低的活性。该研究为氢甲酰化区域选择性的控制提供了新思路，也为其他均相催化多相化提供借鉴。

该研究成果发表于《[德国应用化学](#)》(Angew. Chem. Int. Ed.) 上。上述研究工作得到国家自然科学基金项目、中国科学院战略性先导科技专项B类“能源化学转化的本质与调控”、国家重点研发计划“纳米科技”重点专项、洁净能源创新研究院合作基金项目和辽宁省兴辽英才计划项目等资助。(文/图 李天泊、陈芳)



依托单位:



共建单位:



Copyright © 中国科学院洁净能源创新研究院 版权所有. 辽ICP备05000861号-5 Dalian National Laboratory For Clean Energy, CAS. All Rights Reserved.