

锐意创新 协力攻坚
严谨治学 追求一流

请输入关键字

[首页](#) (</> </>) > [新闻动态](#) (</> </>) > [科研进展](#) (</> </>)

我所实现单原子Ru催化醛/酮还原胺化制备伯胺

发布时间: 2021-06-07 | 供稿部门: 1502组 | [【放大】](#) [【缩小】](#) | [【打印】](#) [【关闭】](#)

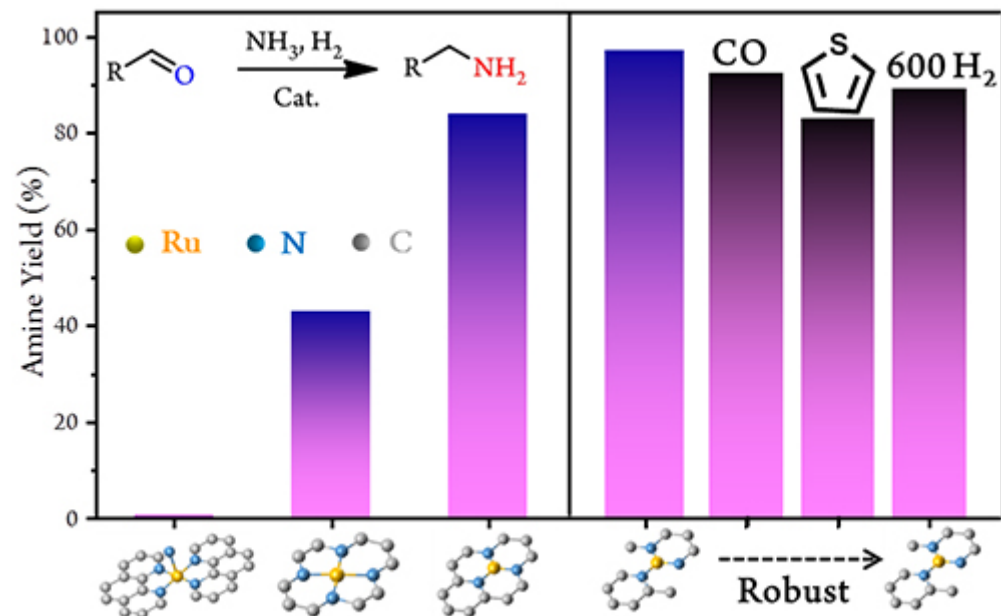
近日, 我所催化与新材料研究室王爱琴研究员和张涛院士团队, 发展了一种Ru单原子催化剂用于生物质基醛/酮的还原胺化反应, 在不改变单原子分散的前提下, 通过精细调控Ru单原子的配位环境, 实现了催化剂的高活性、高选择性和高稳定性, 并建立了单原子配位环境、电子结构和还原胺化催化性能之间的关系。



2011年, 张涛等在国际上首次报道了Pt₁/FeO_x单原子催化剂, 并在此基础上提出了“单原子催化”的概念 ([Nat. Chem. \(https://www.nature.com/articles/nchem.1095\)](https://www.nature.com/articles/nchem.1095), 2011)。此后, 该概念迅速成为催化领域的研究前沿 ([Nat. Rev. Chem. \(https://www.nature.com/articles/s41570-018-0010-1\)](https://www.nature.com/articles/s41570-018-0010-1), 2018; [Acc. Chem. Res. \(https://pubs.acs.org/doi/10.1021/ar300361m\)](https://pubs.acs.org/doi/10.1021/ar300361m), 2013), 尤其在加氢反应中, 单原子催化剂表现出远优于纳米催化剂的活性和选择性 ([Nat. Commun. \(https://www.nature.com/articles/ncomms6634/fig_tab\)](https://www.nature.com/articles/ncomms6634/fig_tab), 2014; [Chem. Rev. \(https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/acs.chemrev.9b00230\)](https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/acs.chemrev.9b00230), 2020)。

在单原子催化中, 活性金属单原子周围的微环境对其催化性能有显著的影响, 但如何在保持单原子分散的状态下调控单原子周围的配位环境, 对于单原子催化剂仍是挑战。在前期研究工作中, 团队发展了精细调控Pt₁/FeO_x单原子催化剂中Pt-O配位数的方法, 从而获得了兼具高活性和高选择性的催化剂 ([Nat. Commun. \(https://www.nature.com/articles/s41467-019-12459-0?utm_source=other_website&utm_medium=display&utm_content=leaderboard&utm_campaign=Jmoldailyfeed\)](https://www.nature.com/articles/s41467-019-12459-0?utm_source=other_website&utm_medium=display&utm_content=leaderboard&utm_campaign=Jmoldailyfeed), 2019), 并通过多种谱学方法的联用对一系列M-N-C单原子催化剂的M-N_x配位结构进行高分辨解析 ([Chem. Sci. \(https://pubs.rsc.org/en/content/articlepdf/2016/sc/c6sc02105k\)](https://pubs.rsc.org/en/content/articlepdf/2016/sc/c6sc02105k), 2016; [J. Am. Chem. Soc. \(https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/jacs.7b05130\)](https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/jacs.7b05130), 2017; [Angew. Chem. Int. Ed. \(https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/anie.201802231\)](https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/anie.201802231), 2018)。





在此基础上，团队进一步将单原子催化剂拓展至更具有挑战的生物质基醛酮还原胺化反应中 (*Angew. Chem. Int. Ed.* (<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/anie.201610964>), 2017; *Green Chem.* (<https://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/2020/GC/D0GC02280B#!divAbstract>), 2020)，发展了一种高活性、高稳定Ru单原子还原胺化催化剂，并通过改变热解温度和热解气氛，精准调控中心Ru单原子的配位结构和电子结构，从原子/分子水平建立单原子Ru配位结构和还原胺化催化性能之间的构效关系，发现还原胺化活性随着Ru-N配位数的降低而逐渐升高，其中具有Ru₁-N₃结构的单原子催化剂活性达到最高，且优于目前文献中报道的所有Ru纳米催化剂和均相催化剂，且该单原子催化剂具有优异的底物普适性和抗CO、S毒化以及耐高温氢气还原稳定性。

上述工作以题为“Highly Selective and Robust Single-atom Catalyst Ru₁/NC for Reductive Amination of Aldehydes/Ketones”发表在《自然-通讯》 (*Nature Communications* (<https://www.nature.com/articles/s41467-021-23429-w>)) 上。该工作的第一作者是我所1502组2017



级博士研究生齐海峰和杨级、刘菲副研究员。上述研究工作得到科技部重点研发项目、国家自然科学基金、中科院B类先导专项“能源化学转化的本质与调控”等项目的资助。（文/图 齐海峰）

文章链接: <https://doi.org/10.1038/s41467-021-23429-w> (<https://doi.org/10.1038/s41467-021-23429-w>).

(<http://www.dicp.cas.cn/>)

地址: 辽宁省大连市沙河口区中山路457号 邮

编: 116023

电话: +86-411-84379163 / 9198 传真: +86-

411-84691570

邮件: dicp@dicp.ac.cn

(<mailto:dicp@dicp.ac.cn>)



官方
微信



化学
之美



(<https://bszs.cas.ac.cn/>
method=show)

版权所有 © 中国科学院大连化学物理研究所 本站内容如涉及知识产权问题请联系我们 备案号: 辽ICP备05000861号 辽
公网安备21020402000367号  (https://www.cnzz.com/stat/website.php?web_id=1261150268)

