



当前位置：首页 > 新闻动态 > 科研进展

## 青岛能源所开发不同结构钯基中空碳球催化剂并进一步揭示空间限域效应

供稿部门：多孔催化材料研究组

发布时间：2023-03-14 | 【大 中 小】 | 【打印】 【关闭】

中空碳球是由外部多孔壳壁和内部空腔组成的一类具有独特结构的碳材料，其内部空腔引起的空间限域效应，在催化领域引起了广泛关注。但是，由于影响催化反应的因素较为复杂，如何正确解析及评估空间限域效应对于反应过程的影响仍是一大挑战。为解决这一问题，青岛能源所王光辉研究员联合孙晓岩研究员，通过原位封装的策略制备了三种钯基中空碳球催化剂，并进一步研究其在苯酚选择性加氢过程中的性能及空间限域效应。相关研究结果发表在ACS Catalysis上。

前期，王光辉研究员带领的多孔催化材料研究组成功制备了两种中空碳球纳米反应器，分别将PdCu双金属纳米粒子封装于空心碳球内部（PdCu@HCS）和负载于空心碳球外表面（PdCu/HCS）。通过在一系列液相加氢反应中的对比，发现空间限域作用有利于提高小分子（例如：苯乙烯）的加氢反应速率，而对于2-乙烯萘，由于壳壁的限制作用会使反应速率降低，对于分子尺寸更大的9-乙烯蒽，壳壁微孔的存在会限制其进入空腔进行加氢反应（*Angew. Chem., Int. Ed.*, **2020**, *59*, 18374-18379）。

为了进一步证明空间限域效应及拓宽中空材料的应用范围，多孔催化材料研究组开发了一种聚乙二醇（PEG）分子辅助的软模板合成策略，通过改变PEG的相对分子质量，成功制备了完整壳壁（HCS）、单开口（HCH）以及半碗结构的中空碳球（HCB）。这三种空心碳球除开口结构不同，其余物理和化学性质均相似（*Chem. Mater.* **2022**, *34*, 8, 3715-3723）。基于该合成策略，通过引入Pd前体，进一步实现了C掺杂的Pd金属纳米颗粒（C-Pd）原位封装于上述制备的三种空心碳球内部（C-Pd@HCS/HCH/HCB）。在苯酚加氢反应过程中，具有完整空腔结构的催化剂C-Pd@HCS具有最优的催化反应活性。另外，在高温碳化过程中，聚合物对Pd的金属晶格产生渗碳作用，得到的C-Pd纳米粒子，表现出优异的环己酮选择性，同时具有良好的循环稳定性。通过DFT计算表明，C掺杂可以抑制 $\beta$ -PdH<sub>x</sub>生成，使催化剂对目标产物环己酮的选择性一直维持在95%以上。该部分工作为空间限域效应的研究以及催化反应路径的解析提供了理论支持。

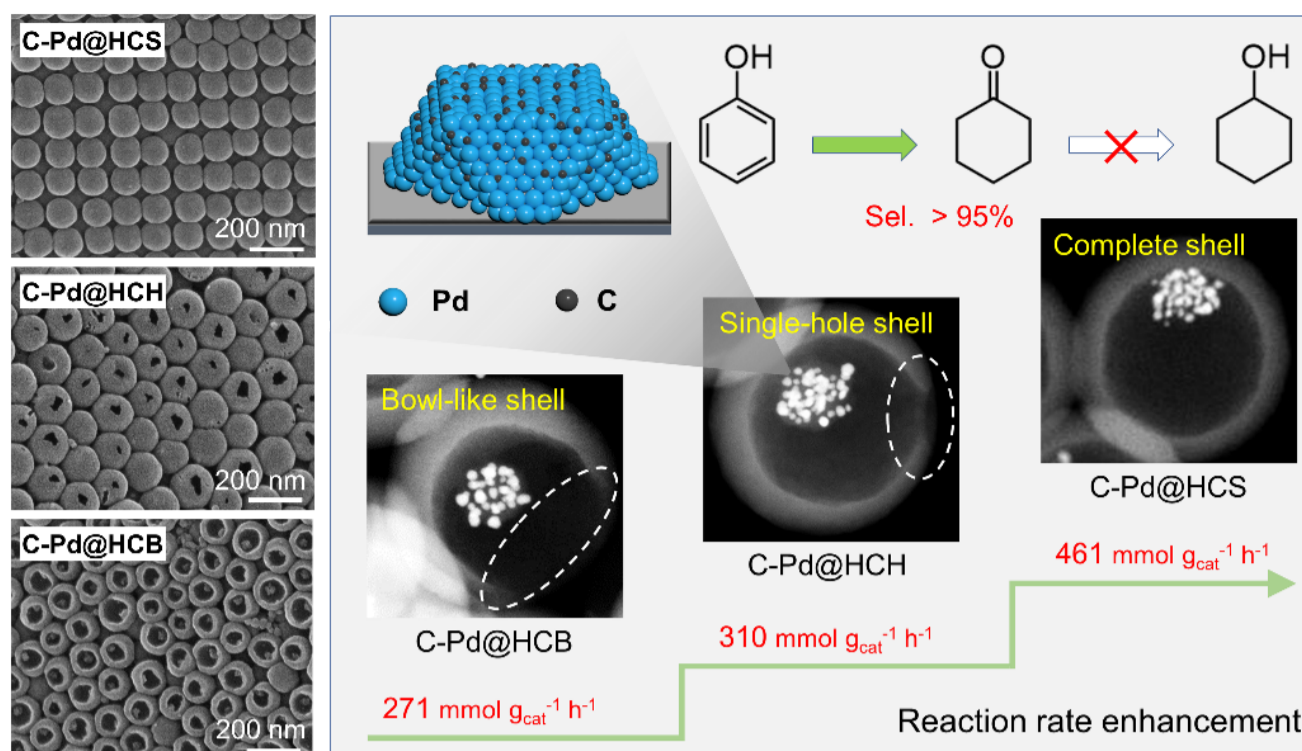


图1 C-Pd@HCS/HCH/HCB的结构及催化性能

该论文第一作者是青岛能源所的于群博士，通讯作者是青岛能源所的孙晓岩研究员和王光辉研究员。该工作得到国家自然科学基金，山东省自然科学基金等项目的资助。（文/图 于群）

原文链接：<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acscatal.2c05245>

Q. Yu, J. Zhou, W. Wang, D.-C. Li, X. Sun\*, G.-H. Wang\*. Space-confined Carbon-doped Pd Nanoparticles as Highly Efficient Catalyst for Selective Phenol Hydrogenation. *ACS Catal.* **2023**, *13*, 3925-3933.

版权所有 © 中国科学院 鲁ICP备12003199号-2 鲁公网安备 37021202001253号  
地址：山东省青岛市崂山区松岭路189号 邮编：266101 Email: info@qibebt.ac.cn  
电话：+86-532-80662776 传真：+86-532-80662778

