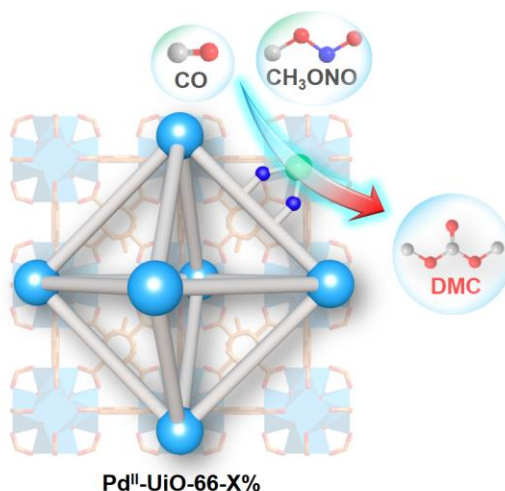




MOF 基 Pd 单位点催化 CO 酯化制碳酸二甲酯

碳酸二甲酯（DMC）是一种重要的工业产品，被广泛应用于制备锂离子电池溶剂和聚碳酸酯等。一氧化碳（CO）酯化反应制 DMC 是一种新型的碳一技术路线，具有成本低、反应效率高和安全等优势，近年来引起了广泛的研究兴趣。许多研究表明，Pd 单位点催化剂（Pd SSCs）可以催化该反应高选择性合成 DMC，却易被反应物 CO 还原成 Pd 纳米颗粒，从而导致 DMC 选择性快速下降。因此，设计合成稳定的 Pd SSCs 具有重要意义。

近日，中国科学技术大学江海龙教授课题组报道了一种稳定的 MOF 基 Pd 单位点催化剂，通过选择自身较为稳定且易修饰的 UiO-66-NH₂ 作为载体，采用后合成修饰的方法将吡啶-2-甲醛引入 UiO-66-NH₂ 的孔中。吡啶-2-甲醛通过与氨基进行反应连接在 UiO-66-NH₂ 的框架上，进而创造了相近的双氮原子位点共同螯合 Pd 原子，记为 Pd^{II}-UiO-66-X%（X 表示 Pd 的理论负载量）。由于 MOF 载体上存在的相近双氮原子位点可以很好地螯合和分散 Pd 原子，Pd^{II}-UiO-66-2% 展现出良好的催化稳定性，在 70 h 的连续测试中，DMC 的选择性依然能够保持 85% 以上。之后，通过反应条件下的原位漫反射傅里叶变换红外光谱(in-situ DRIFTS)，捕捉到了关键反应中间体 Pd-COOCH₃ 和 Pd-OCH₃，并提出了可能的反应路径。通过对反应前后的催化剂进行表征，进一步验证了催化剂的稳定性。



该工作利用具有特定螯合位点的 MOF 载体稳定 Pd 原子的策略，制备了一种稳定的 MOF 基 Pd 单位点催化剂，可以高效地催化 CO 酯化反应得到 DMC，同时也为 CO 酯化反应设计合成稳定的 Pd 单位点催化剂提供了新思路。

相关工作以“MOF-Stabilized Pd Single Sites for CO Esterification to Dimethyl Carbonate”为题发表在 *Acta Chim. Sinica* 上 (DOI: 10.6023/A22020085)。