实现电催化一氧化氮直接合成环己酮肟

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/20372.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！

实现电催化一氧化氮直接合成环己酮肟。近日，中科院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室能源与环境小分子催化研究组研究员邓德会团队和理论催化创新特区研究组研究员肖建平团队合作，在常温常压下碳基催化剂表面，实现了直接电催化一氧化氮和环己酮加氢偶联构建C=N键合成环己酮肟的新过程。相关成果发表在Chem Catalysis。

环己酮肟是化学工业中一种重要的含氮有机化合物，是用于制造用途最广泛的工程热塑性塑料之一尼龙6的关键中间体。传统环己酮肟合成方法主要以氨为氮源、氢气为还原剂，使用贵金属、分子筛等催化剂，在高温、高压条件下进行，存在生产能耗高、反应步骤多、工艺复杂等问题，发展温和条件下从低成本氮源出发直接合成环己酮肟是一种新的工艺替代路线。

一氧化氮是一种重要的氮源，也是空气污染物之一，空气中高浓度的氮氧化物会导致酸雨、光化学烟雾和臭氧层破坏等环境问题。因此，将一氧化氮变废为宝，直接转化成高附加值含氮有机化合物环己酮肟是一条重要路径，但也极具挑战。

本工作中，该研究团队在前期电催化一氧化氮合成氨工作的基础上，开发了一种以一氧化氮和环己酮为原料，直接合成环己酮肟的电化学新途径。相较于传统热催化环己酮肟合成方法，这一过程以工业废气一氧化氮为氮源、水为氢源，利用非贵金属碳催化剂，在室温和常压条件下进行，因此，该过程绿色环保且能耗更低。研究发现，在-0.4 V相较于可逆氢电极电位条件下，环己酮肟的法拉第效率达到44.8%，生成速率为10.7mg · cm-2 · h-2。以不同氮源为反应物的对照实验和15NO同位素标记实验证明，环己酮肟产物中的氮来源于一氧化氮。实验表征结合密度泛函理论计算结果表明，环己酮在碳的armchair边是通过亲核加成，直接与一氧化氮电还原生成的羟胺中间体反应得到环己酮肟。

该研究为发展温和条件下从低成本氮源出发绿色合成环己酮肟，以及电催化氮氧化物到高附加值含氮有机化合物的直接转化利用提供了借鉴。(来源：中国科学报孙丹宁)

相关论文信息：https://doi.org/10.1016/j.checat.2022.06.003

作者：邓德会等 来源：《化学催化》

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转发