

有机电催化加氢界面微环境研究获进展

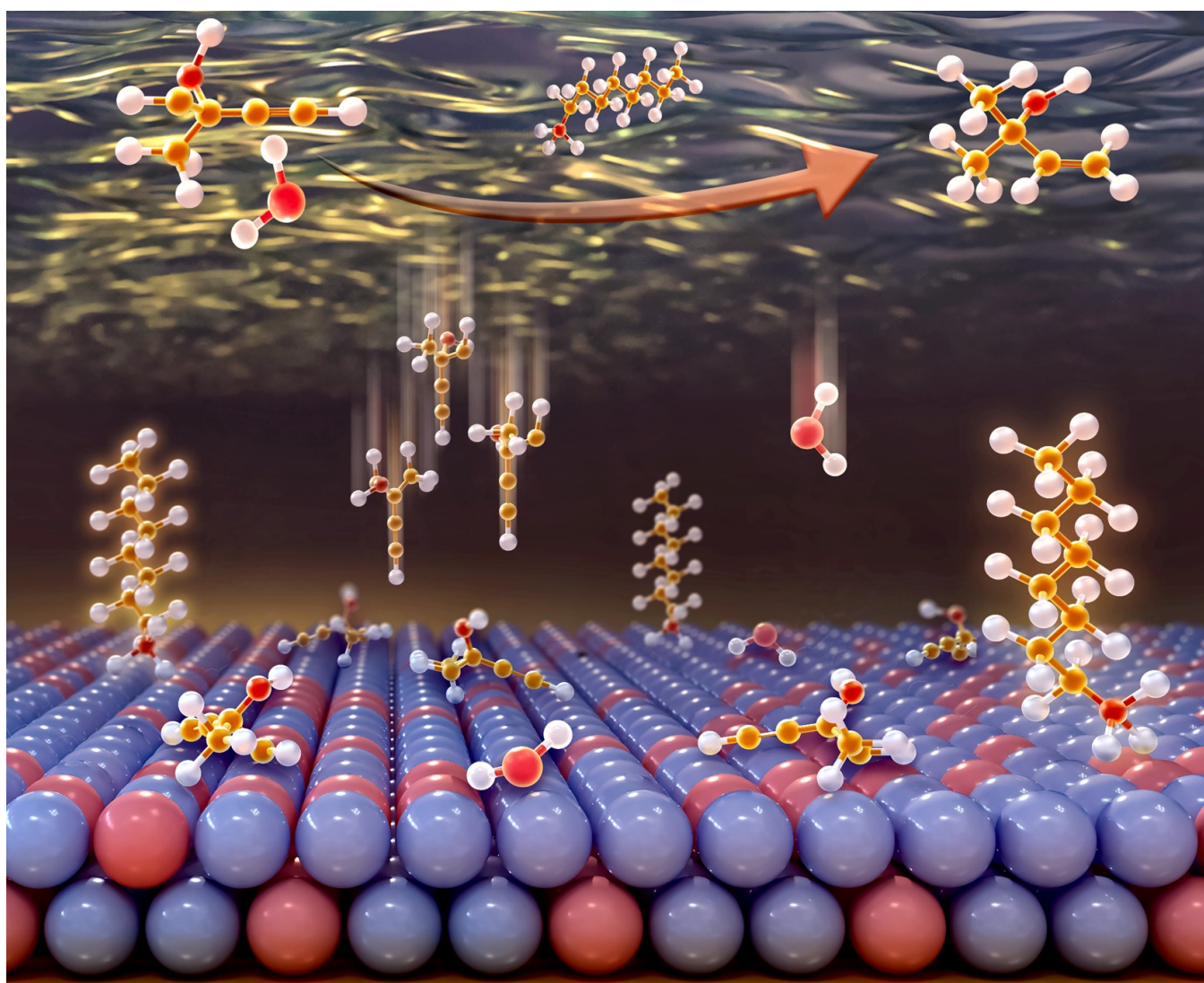
作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/22459.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！

有机电催化加氢界面微环境研究获进展。

近日，华东理工大学李春忠教授团队和刘洪来教授团队合作，在电催化炔醇半加氢反应界面微环境调控领域取得新进展。相关成果以《非金属元素掺杂和表面活性剂共同调节的电极-电解液界面实现了高效的炔醇半加氢》为题发表于《美国化学会志》。



反应界面微环境调控示意。华东理工供图

烯醇是合成维生素等医药品的关键中间体，炔醇电催化半加氢(炔)是实现高值(炔代)烯醇制备的有效方法。电催化反应发生在带电的电极-电解质界面，电催化剂和电解质都对电化学性能有很大影响。具有合适钌基催化剂在炔醇半加氢中有着广泛的应用。通常可以通过掺入金属或非金属来调节钌的电子和或几何特性，以克服选择性-活性的悖论。另一方面，对于以水为氢源的电催化还原反应，界面水的传质和活化对于活性氢的形成与利用都非常重要。同时，界面上局部微环境和反应中间体吸附的适当调整，已被证明可以促进目标反应。因此，合理设计钌基电催化剂以及调节电解液组成对于电催化炔醇半加氢选择性以及活性的提高有着重要意义。

在电催化炔醇半加氢反应中，该工作创新性地构建了一个掺杂剂以及表面活性剂共调节的电极-电解液界面，通过性能研究、原位红外光谱表征以及理论计算相结合的方法，阐明了炔醇电催化加氢过程中高活性和法拉第效率的来源。通过以硼掺杂的钌基催化剂作为模型催化剂，探究不同链长的季铵盐表面活性剂对于界面水的传质以及炔醇加氢反应的影响。性能研究表明，加入合适链长以及合适浓度的表面活性剂可以实现最大化的烯醇法拉第效率。原位光谱证明，随着电压负移，界面水的反向吸附峰表明孤立水的显著损失，而弯曲水的峰偏移表明发生了从强氢键水到弱氢键水的转变。在含有表面活性剂的界面上形成适当的疏水微环境，可以在一定程度上阻碍界面水的传质，从而抑制HER。

分子动力学结果表明，通过阳离子表面活性剂在界面上的自组装，建立了一个促进炔醇传质，并适当地阻碍水传质的界面微环境。因此，在不降低烯醇选择性的情况下，明显促进了炔醇半氢化到烯醇的法拉第效率。该工作对于反应过程和反应机制的认识可以进一步延伸到其他有机物的电催化加氢反应中。(来源：中国科学报 张双虎 李晨阳)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1021/jacs.3c00565>

作者：李春忠等 来源：《美国化学会志》

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](https://www.iikx.com)转发