碳-氮偶联非金属电催化剂研究取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/33944.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！

碳-氮偶联非金属电催化剂研究取得进展。电催化碳-氮（C－N）偶联技术为绿色合成高附加值有机含氮化合物提供了新路径，例如电催化还原氮氧化物并偶联羰基化合物，可以合成高附加值的肟化合物。然而，含氮物种和羰基化合物在常用的金属催化剂上化学吸附作用过强，易引发过度加氢等副反应，导致肟的选择性不高且产物分离困难。开发兼具高活性、高选择性的新型催化体系，对于推动该技术的进一步发展至关重要。

近期，基于在二氧化碳和生物质资源高值化利用电催化体系设计方面的研究积累，中国科学院化学研究所胡劲松课题组提出了一种基于非共价相互作用的“多重次级键介导碳氮偶联”的催化剂设计策略。该策略利用氮掺杂碳（NC）催化剂上的静电、氢键和π-

2
OH*）在NC表面的生成、富集及其与苯甲醛的偶联。这一设计克服了传统金属位点上反应物吸附过强导致副反应严重的难题，实现了高附加值产物苯甲醛肟的高效电合成。

研究人员利用密度泛函理论计算，评估了N掺杂类型对NH_2OH^*生成的影响，筛选出最有利于NH_2OH^*生成的石墨化N－C位点。据此，通过g-C_3N_4介导法设计合成了具有不同类型N掺杂的NC催化剂。电化学实验表明，石墨化N含量最高的NC-900催化剂具有最高的苯甲醛肟法拉第效率。在流动型反应器中，该催化剂可在0.1 A cm^{-2}的电流密度下稳定运行24小时，苯甲醛肟的平均法拉第效率达到73±1%，转化速率为6.8±0.1 mol h^{-1} m^{-2}。技术-经济性分析表明，有关参数实现了苯甲醛肟电合成的经济可行性。

结合差分电化学质谱、衰减全反射-表面增强红外光谱等实验以及理论模拟，研究进一步验证了NH_2OH^*在催化剂表面的富集和高效偶联，以及由静电吸附、氢键和π-π堆积等次级键作用协同促进偶联的新路径。

这些研究结果为通过弱相互作用调节偶联反应路径来设计高活性、高选择性的电合成催化剂提供

了新思路。

相关研究成果发表在《美国化学会志》（*JACS*）上。

论文链接

多重次级键介导的C – N高选择性偶联，实现肟的高效经济电合成

研究团队单位：化学研究所

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