离子体微滴融合技术实现烷烃直接氮化制亚胺

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/34822.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！

离子体微滴融合技术实现烷烃直接氮化制亚胺。近日，清华大学深圳国际研究生院智能仪器与装备研究所副研究员余泉团队在《美国化学会志》上发表最新研究。他们基于自主研发的亚大气压电喷雾电离技术，成功将气体放电等离子体与微液滴界面化学巧妙融合，在常温常压条件下实现了烷烃的高效活化，并用于合成了高附加值的亚胺类化合物，为惰性碳氢键活化难题提供了新的解决方案。

在该研究中，研究团队对传统的电喷雾离子源进行了关键性改造。在密封反应腔室内引入环形电极，并在喷雾溶液中添加少量盐酸以增强导电性。当施加超过6千伏特的高电压时，可在喷雾过程中产生稳定的气体放电，形成等离子体微液滴的深度融合环境。这种独特设计使得气态烷烃在进入离子源后，首先被等离子体中的高能粒子撞击，碳氢键断裂并生成活性中间体。

实验表明，反应气氛对产物选择性具有显著影响。在空气氛围下，环己烷主要生成含氧插入产物，同时伴有少量氮插入物。而当采用氮气作为载气时，可高效生成以氮插入为主的活性物种，为后续构建碳氢键奠定了基础。

微液滴体系因其高比表面积、界面强电场和局部强酸性环境，可显著加速多种化学反应。该研究利用这一特性，在等离子体活化烷烃的基础上，进一步引入气态胺类化合物，使其与活化中间体共同被捕获至微滴表面，触发高效偶联反应。此外，研究团队使用离子阱质谱在线追踪了从烷烃活化到亚胺形成的全过程，并结合高分辨质谱和串级质谱对反应产物和中间体进行分析，以鉴定其化学组成及结构。

为验证方法的实用性，研究团队还设计了在线产物收集装置，通过微型泵将反应腔室内的气态微滴及产物连续抽入置于冰浴中的甲醇溶液，实现产物的高效捕集。在连续运行约三小时后，可收集到浓度约为2毫摩尔的亚胺产物，初步展现了该技术在合成制备方面的潜力。此外，团队还测试了19种不同烷烃与伯胺的组合，均能高效生成相应亚胺产物，显示出广阔的应用潜力。

该研究实现了以惰性的烷烃和稳定的氮气为起始原料，在无需高温高压、无需过渡金属催化剂的温和条件下，合成高价值亚胺化合物。这不仅打破了传统合成路线对官能团的依赖，也为资源高效利用和绿色化学提供了全新范式。（来源：中国科学报 刁雯蕙）

相关论文信息：https://doi.org/10.1021/jacs.5c06426

作者：余泉等 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转发