空气主份可直接合成高值碳—氮—氧化学品

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/43356.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！

空气主份可直接合成高值碳—氮—氧化学品。近日，中国科学院大连化学物理研究所研究员邓德会和研究员于良团队在直接用空气主份作为氮源和氧源合成高值碳—氮—氧（C－N－O）化学品领域取得新进展。团队提出了非热等离子体—超声—催化（PUC）耦合新途径，在温和条件下实现了空气主份与苯酚直接共转化制高附加值硝基芳烃化合物。该过程避免了传统路线中的多步骤、苛刻反应条件、高污染排放等问题，为温和条件下由空气出发直接合成高值C－N－O化合物提供了新思路。相关成果发表在《国家科学评论》。

硝基芳香化合物是合成药物、染料、炸药等材料的重要原料。其传统合成路线通常采用多步过程：先经哈伯—博施工艺将氮气（N2）转化合成氨，再经奥斯特瓦尔德过程将氨气（NH3）和氧气（O2）转化制硝酸，进一步在浓硝酸和浓硫酸中进行硝化反应，整个过程流程长、能耗高、污染大。相比之下，在温和条件下直接利用空气的主要成分N2和O2作为氮源和氧源进行硝化反应，是合成硝基芳香化学品的理想反应路线。然而，由于N2极为惰性，其活化往往需要苛刻条件，这容易导致O2和芳香族底物被过度活化并氧化生成大量副产物。如何在温和条件下实现反应物的可控活化，以及C－N和N－O键的选择性构筑，是该领域面临的关键挑战。

针对上述问题，团队开发了非热PUC耦合反应新方法，并设计了等离子体气相—超声液相级联反应器，在温和条件下实现了空气主份与苯酚直接共转化制硝基芳烃化合物。在常温、常压条件下，以二氧化铈（CeO2）为液相催化剂，硝基芳烃的总产率达8.1%，总选择性达92.5%。机理研究表明，空气等离子体产生的活性氧物种和氮氧化物进入液相后，结合超声空化效应对气液传质和反应动力学的增强，开启了两条后续反应路径：一是均相溶液反应路径，苯酚被活性氧物种氧化为苯氧自由基，进而被二氧化氮或一氧化氮硝化生成产物；二是多相催化路径，CeO2表面可催化一氧化二氮向NO和NO2转化，并进一步与表面吸附态苯酚发生硝化反应，从而提高了反应效率。

该过程通过对空气主份活化与苯酚活化步骤的空间分离，避免了苯酚过度活化与氧化，从而提高了产物选择性，为温和条件下直接利用空气主份和有机底物合成高值C－N－O化学品开辟了新途径。（来源：中国科学报孙丹宁）

相关论文信息：https://doi.org/10.1093/nsr/nwag556

作者：邓德会等 来源：《国家科学评论》

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