



我国学者在甲烷与氧气室温直接催化转化领域取得进展

日期 2023-10-17 来源: 化学科学部 作者: 戴卫理 高飞雪 【大中小】 【打印】 【关闭】

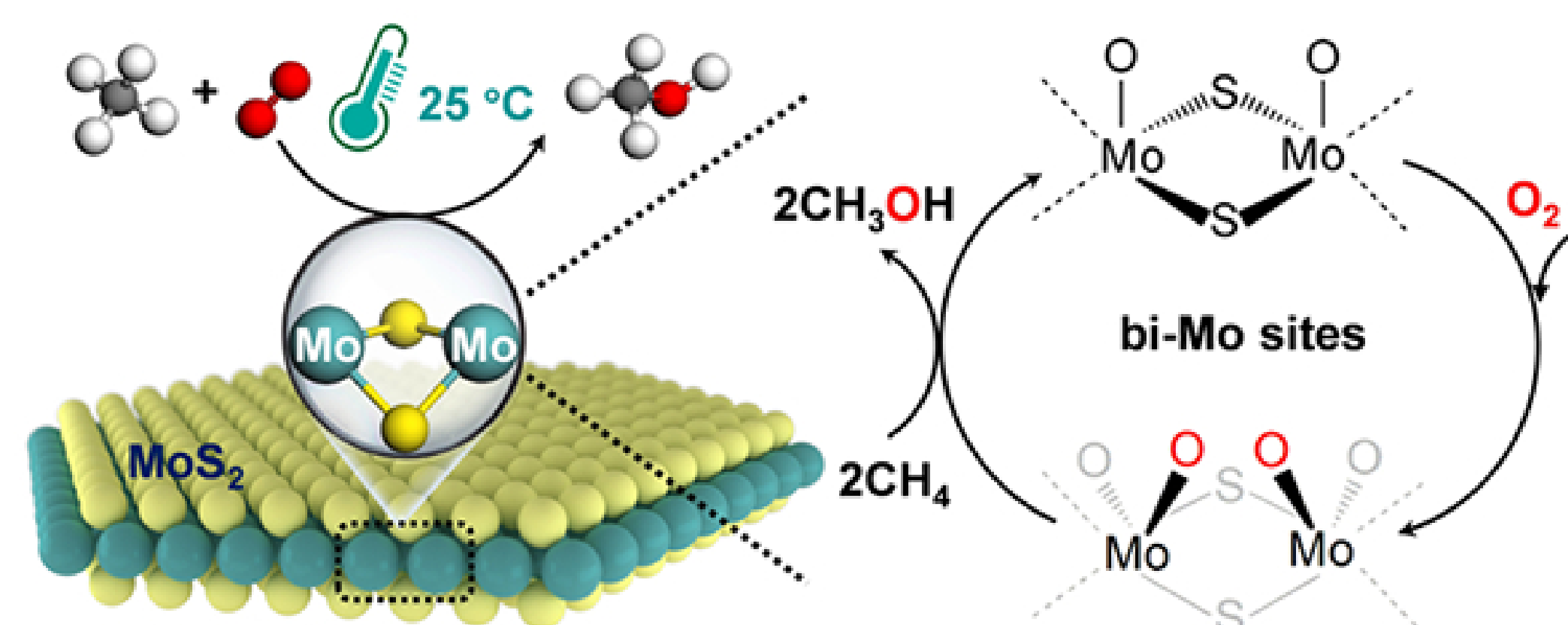


图 甲烷与氧气室温催化转化活性位点示意图

在国家自然科学基金项目(批准号: 21988101、21890753、22225204、92145301)等资助下,中国科学院大连化学物理研究所邓德会研究员、于良副研究员团队在甲烷室温催化转化的研究中取得进展。相关研究成果以“富边MoS₂催化甲烷与氧气室温直接转化(Direct conversion of methane with O₂ at room temperature over edge-rich MoS₂)”为题,于2023年9月21日发表在《自然·催化》(Nature Catalysis)杂志上。论文链接:<https://www.nature.com/articles/s41929-023-01030-2>。

甲烷直接催化转化制高附加值化学品是世界性难题,被誉为化学领域的“圣杯”,这主要是由于甲烷的低极化率和高C-H键能(439 kJ mol⁻¹),使其转化通常需要借助高温(大于600 °C)、强氧化剂(如发烟硫酸)或外场(如等离子体)等苛刻的反应条件,但这又极易导致目标产物发生过度转化(如生成CO₂等)。利用廉价、绿色的氧气在低温甚至室温下直接定向转化甲烷是一个梦想反应。然而,氧气分子极难在温和条件下持续形成可活化甲烷C-H键的活性氧物种,导致室温下甲烷与氧气直接催化转化非常具有挑战性。

基于此,上述研究团队通过模拟自然界中甲烷单加氧酶的双核金属中心,构筑了MoS₂边硫空位限域的配位不饱和双Mo位点,实现了甲烷与氧气室温直接催化转化制C1含氧产物。相比于之前报道的化学循环反应体系中复杂的氧气/甲烷分步变温活化和低的甲烷转化率(<1%),该催化体系可在25 °C下实现甲烷与氧气一步直接转化为甲醇等C1含氧产物,甲烷的最高转化率可达4.2%,同时C1含氧产物的选择性大于99%,有效抑制了CO₂的生成。结合时间分辨原位表征与理论计算研究发现,MoS₂边硫空位限域的配位不饱和双Mo位点可在室温下直接解离氧气分子形成高活性O=Mo=O*物种,该物种能够高效活化甲烷C-H键进而将甲烷经由甲氧基中间体转化为C1含氧产物(图)。

机构概况: 概况 职能 领导介绍 机构设置 规章体系 专家咨询 评审程序 资助格局 监管工作

政策法规: 国家科学技术相关法律 国家自然科学基金条例 国家自然科学基金规章制度 国家自然科学基金发展规划

项目指南: 项目指南

申请资助: 申请受理 项目检索与查询 下载中心 代码查询 常见问题解答 科学基金资助体系

共享传播: 年度报告 中国科学基金 大数据知识管理服务平台 优秀成果选编

国际合作: 通知公告 管理办法 协议介绍 进程简表

信息公开: 信息公开制度 信息公开管理办法 信息公开指南 信息公开工作年度报告 信息公开目录 依申请公开

相关链接 政府 新闻 科普