
电子性质调变的MOF实现甲烷高选择性转化

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/19140.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！

电子性质调变的MOF实现甲烷高选择性转化。近日，中科院大连化学物理研究所研究员王晓东、研究员林坚等和贵州大学朱纯教授等合作，在低温CH₄转化研究方面取得新进展。合作团队基于UiO-66基MOFs催化剂上电子性质可调的锆氧簇节点，实现CH₄高选择性羟基化为含氧化合物（CH₃OH、CH₃OOH和HOCH₂OOH）。相关研究成果发表在《德国应用化学》。

随着页岩气和可燃冰开采技术的提升，将其主要产物甲烷在温和条件下直接选择性转化为高附加值的含氧化合物（如甲醇），引起了研究人员的广泛关注。然而甲烷分子具有高度对称的正四面体结构，所含的C-H键难以极化，通过调变催化剂活性中心结构以实现甲烷的高效活化和定向转化具有挑战。迄今所采用的负载型金属催化剂通常存在产物易过度氧化与活性中心流失等问题，而体相或框架氧化物由于所含的金属—氧簇中心缺乏有效活化甲烷的亲电氧物种，通常被用作载体或共催化剂。

本工作中，研究人员发现通过引入不同配体（NH₂-BDC、H₂BDC和NO₂-BDC）以修饰UiO-66的锆氧簇节点，在不改变该类催化剂几何结构的前提下，可专一性调变节点的电子性质，进而影响表面吸附的·OH物种（Z_{oxo}-·OH）。研究发现，以H₂BDC为配体的UiO-66-H可提供适中电子密度的Z_{oxo}-·OH位点。DFT理论计算表明，UiO-66-H的Z_{oxo}-·OH位点，有利于甲烷的吸附并更好地活化甲烷的C-H键，其形成·CH₃的能垒最低。因此，该催化剂表现出较高的含氧化合物产率、100%的选择性，以及良好的循环稳定性。

该工作在前期高活性催化剂表面状态、高选择性孤立氧物种等研究基础上，拓展至电子态可调节的金属—氧簇中心并应用于气液固相体系中甲烷的直接氧化，为实现温和条件下甲烷选择转化制化学品提供了新的研究思路。（来源：中国科学报孙丹宁）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1002/anie.202205077>

版权声明：凡本网注明来源：中国科学报、科学网、科学新闻杂志的所有作品，网站转载，请在正文上方注明来源和作者，且不得对内容作实质性改动；微信公众号、头条号等新媒体平台，转载请联系授权。邮箱：shouquan@stimes.cn。

作者：王晓东等 来源：《德国应用化学》

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](http://www.iikx.com)转发