山西煤化所在甲醇二甲醚定向氧化转化研究领域取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/19352.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！

甲醇/二甲醚是重要的含氧平台化合物，由甲醇/二甲醚通过低温氧化制备高附加值含氧化学品，过程绿色、原子经济性好、碳排放低、能效高、下游产品丰富，是甲醇/二甲醚高值化转化的重要方向。中国科学院山西煤炭化学研究所课题组多年来致力于甲醇/二甲醚选择氧化合成清洁柴油含氧添加剂和含氧化学品的研究，取得了系列重要研究成果及进展。

甲醇/二甲醚氧化制清洁柴油添加剂聚甲氧基二甲醚（DMMx）。研究团队针对甲醇/二甲醚低温难活化、高温易深度氧化、C-O键链增长可控难度大等问题，分别在杂多酸催化剂、分子筛催化剂、碳基催化剂等体系上对二甲醚直接氧化
制DMM_x
开展了研究工作。发现在催化剂表面构建具有不同酸性梯度分布的酸性位和匹配的氧化还原活性位时，可实现二甲醚直接氧化定向合成大分子产物DMM_x（x=1-8）（*J. Ind. Eng. Chem.*, 2014, 20, 1869;*Green Chem.*, 2014, 16, 4708;*ChemCatChem*, 2018, 10, 273;*Fuel*, 2019, 238, 289；CN 100471566 C, CN 100471564 C, CN 100528349 C,CN 106378161 B, CN 105964307 B, 201610750763.7，202110340501.4）。特别是在近期设计并制备的新型高效生物质基碳负载硫酸盐催化剂上，研究实现了二甲醚直接氧化高选择性制备DMM_{1-2}，DMM_{1-2}的选择性高达96.7%（*J. Phys. Chem. Lett.*, 2021, 12, 11795，封面文章）。

钼基催化剂用于甲醇/二甲醚低温氧化转化。钼基催化剂具有可变价和结构可调控等特点，在氧化反应中得到了应用。研究团队在钼锡催化剂上对二甲醚低温氧化进行了系统研究，发现低聚物MoO_x的形成、Mo^{5+}
物种的存在及其特定的配位环境是钼锡催化剂具有二甲醚低温氧化性能的主要原因（*Green Chem.*, 2013, 15, 1501;*Green Chem.*, 2015, 17, 1057;*Catal. Sci. Technol.*, 2016, 6, 2975;*Catal. Sci. Technol.*, 2016, 6, 6109；*J. Fuel Chem. Technol.*, 2019, 47, 934; CN 102553566 B,CN202010455327.3）。在此基础上，
研究团队
还开展了钼锡催化
剂上甲醇低温氧化转化的研究工作。
在较低反应温度90-140°C下，实现了甲醇氧化高选择性制备甲缩醛（*J. Fuel Chem. Technol.*, 2021, 49, 1487；CN202010455328.8）。

钼锡催化剂上实现高选择性甲烷氧化偶联。鉴于钼基催化剂在甲醇/二甲醚低温氧化中表现出的优异性能，研究

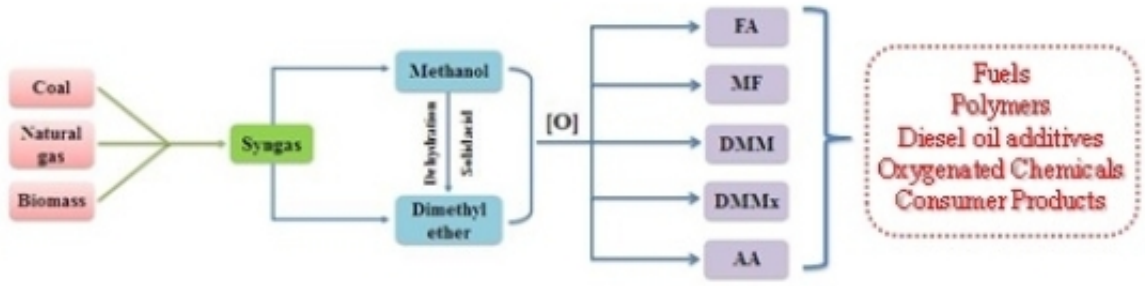
团队在钼锡催化剂上进一步实现
了甲烷氧化偶联高选择性制备C_2烃，并显著抑制了CO_x生成（*Chem. Commun.*, 2021, 57, 13297，封面文章; CN202110496147.4）。

钠超离子导体结构电极材料的催化应用。丙烯酸作为重要的化工中间体，其非石油路线合成越来越受到关注。研究团队以甲醇/二甲醚衍生物甲醛和乙酸（酯）为原料，创新性地将钠超离子导体结构（NASICON）电极材料用作催化剂，实现了羟醛缩合一步法制备丙烯酸，并取得了优异的催化性能（*Chem. Eng. J.*, 2022, 446, 137324；CN202111326391.2；CN201811207341.0.）。

上述研究结果将为其他含甲氧基的醇/醚小分子以及含有C-
H键的低碳烷烃分子活化及低温氧化转化的研究了提供新思路和参考。

基于多年来在甲醇/二甲醚选择氧化方面的研究积累和研究成果，研究团队受邀在*Chemical Communications*
上对该领域国内外的研究进展进行了系统总结和探讨，并从催化剂设计和应用的角度提出了今后工作的主要挑战和展望（*Chem. Commun.*, 2022, 58, 4687，封面文章）。

研究工作得到国家自然科学基金、中科院洁净能源创新研究院合作基金、中科院“ 创新交叉团队 ”项目、中科院青年创新促进会人才项目、科技部自主研究课题、山西省自然科学基金、中科院知识创新工程及中科院山西煤化所青年人才项目等的支持。



甲醇/二甲醚定向氧化转化

研究团队单位：山西煤炭化学研究所

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