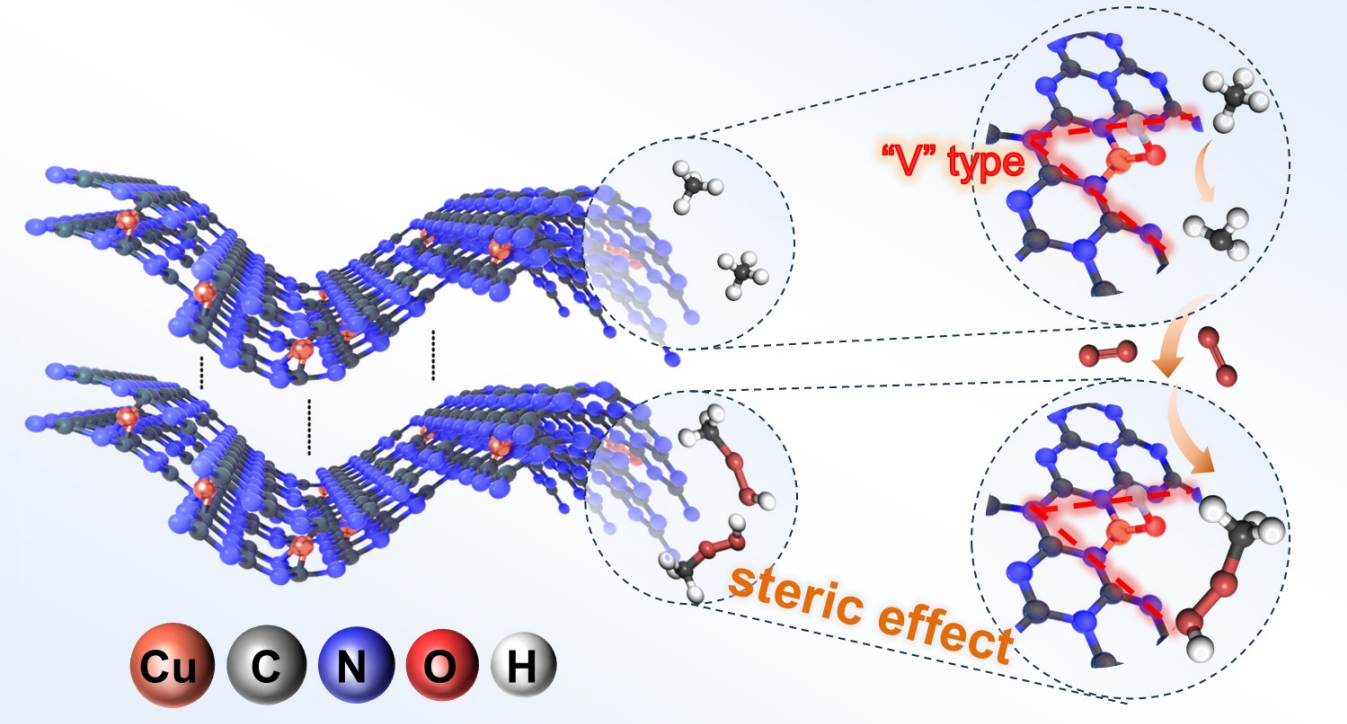
研究实现甲烷高效转化制含氧化合物

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/34999.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！

研究实现甲烷高效转化制含氧化合物。近日，中国科学院院士、中国科学院大连化学物理研究所研究员张涛，研究员王晓东，副研究员黄传德和研究员乔波涛等开发了一种拟酶铜基单原子催化剂（Cu1/CN），实现了甲烷高效转化制含氧化合物。相关成果发表在《美国化学会志》上。



拟酶铜基单原子催化剂示意图。大连化物所供图

甲烷直接选择性氧化制高附加值含氧化合物是天然气资源合理利用的重要途径。然而，由于含氧有机物不仅比甲烷活泼，且其分子极性高，极易被催化剂吸附活化，进而被过度氧化，导致目标产物选择性降低。因此，设计高效催化剂同时实现甲烷高转化率和产物高选择性是当前的研究重点。

在本工作中，研究人员受自然界甲烷单加氧酶活性结构和工作原理启发，利用氮化碳的锯齿形边缘锚定单原子铜，构建了一种V型结构的氮-铜-氧（N2-Cu1-O）活性中心。研究发现，Cu1-O中心可通过抽氢反应高效活化甲烷，其能垒仅为0.58
eV，并产生甲基自由基（·CH3）。在50℃的反应条件下，该反应的转化频率达到405.3 ± 8.2 h?

1，表现出优异的催化活性。形成的·CH3会被反应体系中的分子氧捕获，形成以甲基过氧化氢（CH3OOH）为主的含氧化合物。此外，该催化剂活性位点特殊的V型结构拥有3.87 ?的分子通道，可允许甲烷分子快速通过，同时阻隔产物CH3OOH与Cu1中心的再次接触，从而有效抑制过度氧化反应，使产物选择性约等于100%。

该工作在前期单原子催化剂选择性氧化甲烷等工作基础上，进一步利用载体空间位阻效应，实现温和条件下、低成本甲烷选择性氧化制高附加值化学品，为开发新型高效单原子催化剂提供新的研究思路。（来源：中国科学报 孙丹宁）

相关论文信息：https://doi.org/10.1021/jacs.5c10016

作者：张涛等 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