大连化物所揭示甲醇制烯烃反应中的多尺度动态交互作用机制

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/20433.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！

大连化物所揭示甲醇制烯烃反应中
的多尺度动态交互作用机制

。近日，中国科学院大连化学物理研究所低碳催化与工程研究部研究员、中国工程院院士刘中民与研究员魏迎旭团队，在甲醇制烯烃（MTO）反应机理研究中取得新进展。该研究揭示了SAPO-34分子筛催化甲醇和二甲醚转化过程中反应-扩散-催化剂之间的多尺度动态交互作用机制，涵盖了从菱沸石（CHA）笼或分子尺度，到单个催化剂晶体尺度，再到催化剂床层尺度的动态行为。

MTO已成为我国生产乙烯和丙烯的重要路线。MTO反应发生在分子筛限域空间内，由动态且复杂的自催化反应驱动，是特殊的气固多相催化过程。耦合MTO动态属性，且从多个尺度研究MTO反应中扩散和反应的动态行为，对于进一步剖析真实的MTO过程以及理解MTO反应机理和烯烃选择性控制原理至关重要。

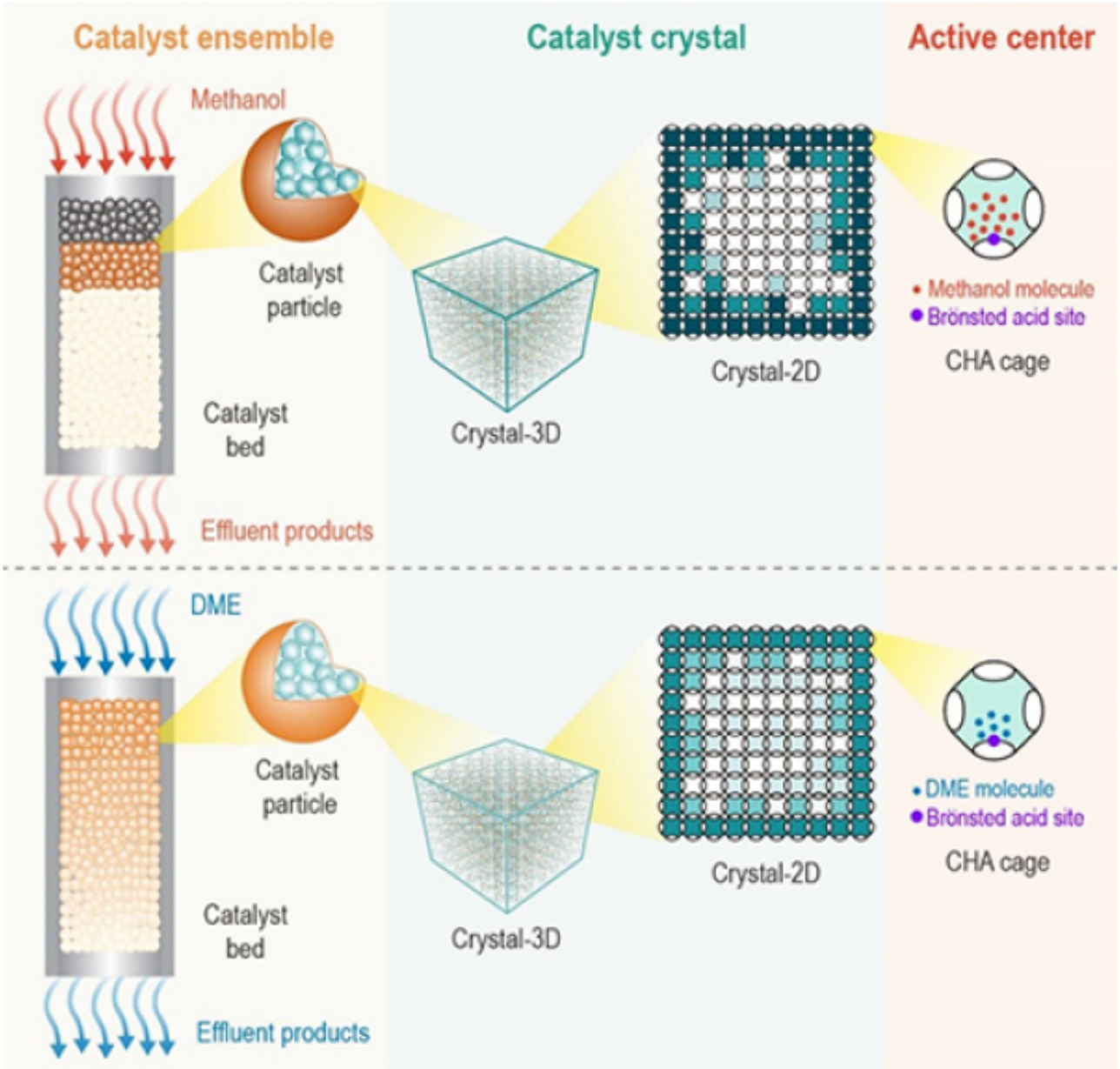
研究发现，由于受到限域有机物种的修饰，笼结构SAPO-34随自催化反应的引发和衰退而动态演变，而随反应动态演变的分子筛反过来又影响扩散和反应的发生。扩散-反应-催化剂之间形成动态交互作用，且这种交互作用发生在多个尺度，致使积碳物种在多个尺度上的时空不均匀分布和演变。与甲醇相比，二甲醚较高的表面渗透率和晶内扩散能垒一定程度上能够减缓其外表面渗透和晶内笼间跳跃过程，使二甲醚制烯烃（DTO）反应在催化剂床层上的反应物局部化学势较低，从而在分子筛局部催化微环境中产生相对温和的反应和缓慢的积碳。这使得相当一部分二甲醚即使在反应后期，仍能够扩散到分子筛晶体内部发生反应，最终导致DTO相对温和且均匀的反应和失活模式，以及更高的催化剂利用效率。该工作为实现DTO过程长周期固定床运行提供了理论支持。相比之下，MTO反应中甲醇在SAPO-34晶体外层较高的局部化学势强化了这一区域的反应和失活，固定床甲醇转化呈现出逐层反应和失活的非均匀模式。

该工作揭示了分子筛催化不仅体现多相催化反应的特性，并通过构建特殊的催化微环境提供增强、缓和或抑制的局部反应动力学，在多个尺度产生针对扩散和反应的差异性，从而产生高效择形催化。因此，实现扩散-反应-
催化剂之间最为优化的时空耦合，是发展分子筛催化剂和开发工艺的关键策略。

相关研究成果以*Multiscale dynamical cross-talk in zeolite-catalyzed methanol and dimethyl ether conversions*为题，发表在《国家科学评论》（*National Science Review*

）上。本工作中分子筛超分辨结构照明成像得到大连化物所分子探针与荧光成像研究组研究员徐兆超团队的支持，客体分子扩散模拟得到中科院精密测量科学与技术创新研究院研究员郑安民团队的支持。该工作的第一作者是大连化物所博士研究生林杉帆。研究工作得到中科院前沿重点研究计划与国家自然科学基金等的资助。

论文连接



大连化物所揭示甲醇制烯烃反应中的多尺度动态交互作用机制

研究团队单位：大连化学物理研究所

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