中国科大在一氧化碳与水制备重质烯烃研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/22802.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！

中国科大在一氧化碳与水制备重质烯烃研究中取得进展

。近日，中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心和化学物理系教授曾杰研究团队利用氢缓释效应结合选择性萃取，实现了用一氧化碳和水直接制备重质烯烃。相关研究成果以Direct synthesis of extra-heavy olefins from carbon monoxide and water为题，发表在《自然-通讯》(Nature Communictions)上。

氢气是化学品合成过程中重要的原料，如费托合成过程就利用氢气将一氧化碳还原为碳氢化合物。氢气分子小，易在反应器金属管路上活化，使得高压下氢气更易泄露，也易引发气体管路的氢脆。而结合氢气较宽的爆炸极限，氢气的长距离运输困难较大，并对反应器的安全性能有极高的需求。水是安全程度较高、易于获得的廉价氢源。直接以水为氢源使得碳氢化合物合成的安全性提高，相关化工产业也可不再以中心化的布局开展。

基于此，该团队使用科恩合成过程来实现从一氧化碳和水中直接合成烃类化合物。科恩合成过程是水气变换和费托合成的串联过程(方程式1)。该串联过程有望在反应过程中获得持续性高的一氧化碳/氢气比值，热力学上更有利于重质烯烃(C12+=)的合成。该研究发现聚乙二醇与重质烯烃有相互作用，并提出在聚乙二醇中进行科恩反应可能会获得较高的重质烯烃选择性。

方程式1.3CO + 2H2O = 2CO2+ -CH2- + H2O

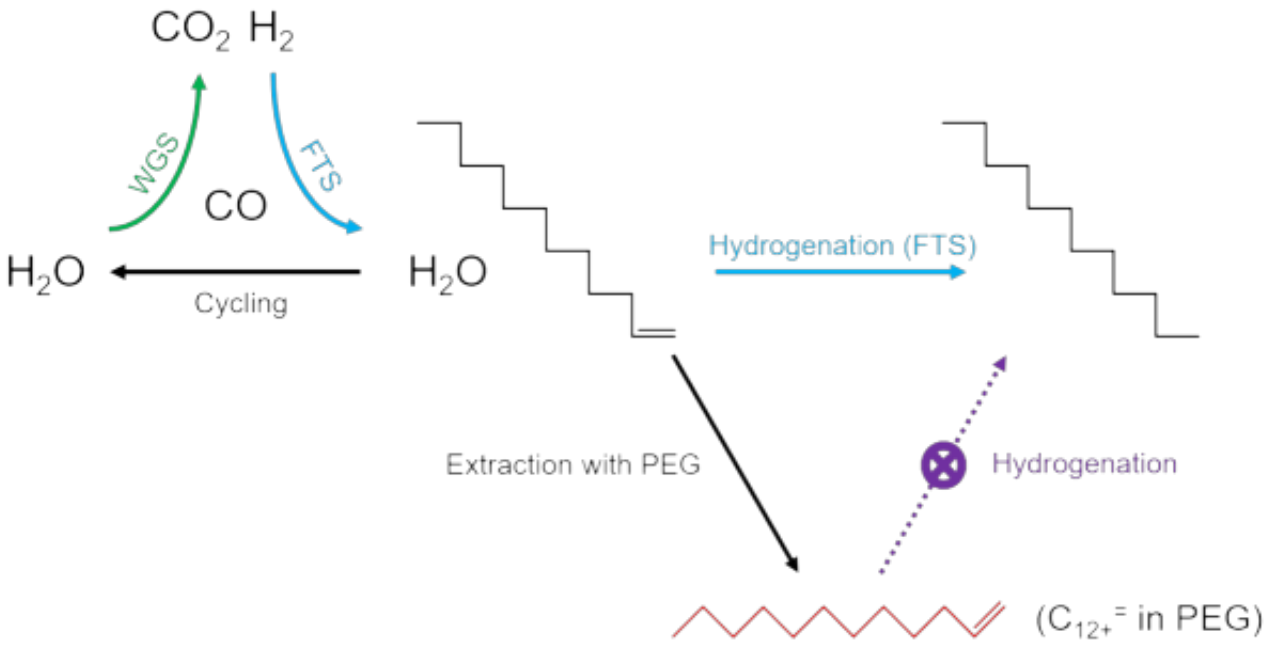
该研究合成了Pt/Mo2N和Ru颗粒作为科恩反应中两步的催化剂，在2兆帕的一氧化碳气氛下获得了40.4%的重质烯烃选择性，且2.13的总烯烷比不同于常见的Ru基催化剂。在该条件下，二氧化碳与碳氢化合物的比例达到理论最小值2。为验证猜想，研究通过更改反应气体比例和溶剂，确定了聚乙二醇的选择性萃取作用和科恩反应带来的持续性高的一氧化碳/氢气比是获得高重质烯烃选择性的关键因素。

此外，研究观察到碳氢化合物产率不像费托合成中一样随压力升高而升高，推测是因两步过程速率不匹配所致。科研人员通过探究水含量对催化性能的影响，确定了水含量过高会导致第一步水气变换过程速率过快，致使参与费托过程的一氧化碳较少，烯烃选择性较低。

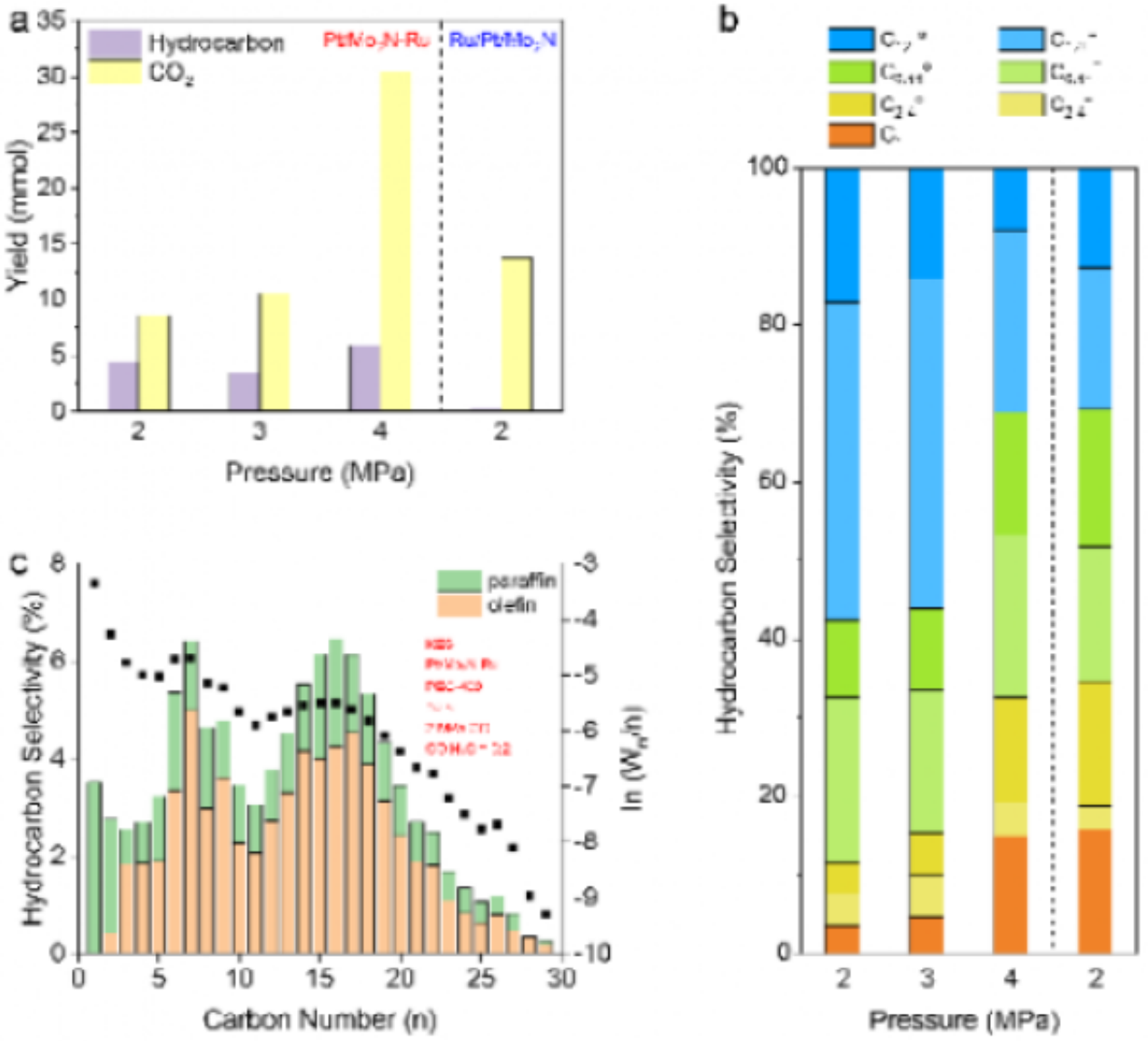
利用该策略，研究人员将催化剂体系从贵金属拓展到非贵金属催化剂，使用Cu/ZnO/Al2O3与Co/

Al2O3分别作为水气变换和费托过程的催化剂获得了烯烃为主的选择性，烯烷比为4.19。

该研究报道了一种普适性的重质烯烃合成策略，为未来开发高性能重质烯烃合成催化剂提供了平台。此外，该策略未直接使用高危险性的氢气作为反应物，提升了重质烯烃合成过程的安全性。研究工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金、中科院稳定支持基础研究领域青年团队计划等的支持。
论文链接



重质烯烃的合成路线示意图



a.二氧化碳和碳氢化合物的压力依赖性;b.碳氢化合物的压力依赖性;c.碳氢化合物的具体分布。

研究团队单位：中国科学技术大学

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转发