武汉物数所在沸石分子筛催化反应机理研究方面取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/4981.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！

武汉物数所在沸石分子筛催化反应机理研究方面取得进展。乙烯是最重要的基础化工原料之一，也是现代化学工业的基石。目前乙烯主要来源于石油裂解工艺，由于化石资源的日渐枯竭，给依赖于传统石油路线的乙烯生产带来巨大压力。生物乙醇作为一种可再生资源可以通过催化反应转化为乙烯和其它高附加值碳氢化合物，因此受到学术界和工业界的广泛关注，从而能成为代替石油生产烯烃的一条重要途径。沸石分子筛是催化乙醇脱水生产乙烯最具有发展潜力的催化剂，因而吸引了大量关于分子筛上乙醇脱水制乙烯反应的研究，然而到目前为止人们对其反应机制仍然没有明确的认识，这在一定程度上制约了高性能催化剂和高效催化工艺的研发。

近日，中国科学院武汉物理与数学研究所研究员徐君和邓风团队在沸石分子筛催化剂上乙醇脱水制乙烯反应机理的研究方面取得新进展。研究利用固体核磁共振(NMR)，在反应中首次观测到三乙基氧鎓离子中间体物种，并发现其对产物乙烯生成所起的关键作用，揭示了低温条件下乙醇生成乙烯的反应机制。

课题组研究人员对ZSM-5分子筛上乙醇脱水反应机制进行了深入研究。利用原位13C固体NMR技术，在乙醇脱水反应过程中观测到三乙基氧鎓离子(TEO)中间体物种的生成，并通过二维 13C – 13C 相关谱固体NMR实验对其结构进行了鉴定(图1左)。进而，通过变温原位13C固体NMR实验跟踪了TEO在乙醇脱水反应中的演化过程，获得其稳定性与反应活性的信息(图1右)。进一步的实验证实，TEO与催化剂表面乙氧基的生成密切相关，并最终可导致乙烯的生成。结合NMR实验与理论计算，研究人员提出了ZSM-5分子筛上乙醇脱水生成乙烯的完整催化反应路径(图2)。该研究工作加深了人们对分子筛催化乙醇转化反应机理的理解，也为进一步探索醇转化中的氧鎓离子化学提供了新的思路。

该研究成果于4月29日发表在《自然-通讯》(Nature Communications)杂志上，文章题为Observation of an oxonium ion intermediate in ethanol dehydration to ethene on zeolite。该研究工作得到国家自然科学基金委、中科院以及湖北省科技厅的支持。

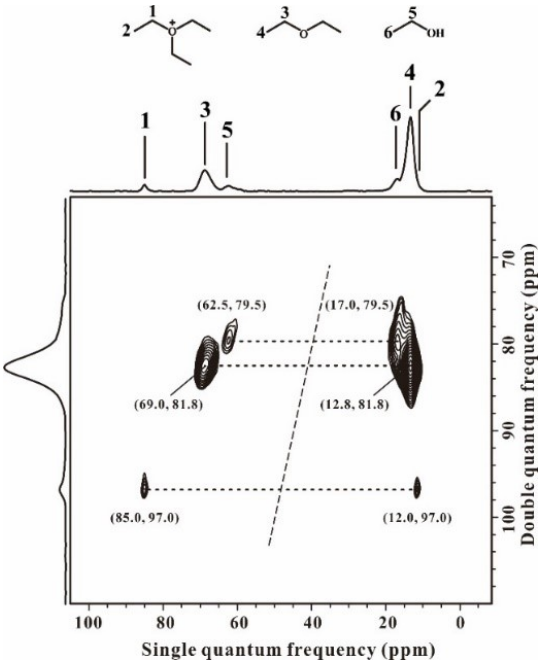


图1. H-ZSM-5分子筛上乙醇反应后的二维13C – 13C INADEQUATE NMR图谱(左)与乙醇变温反应的原位13C MAS NMR 图谱(右)

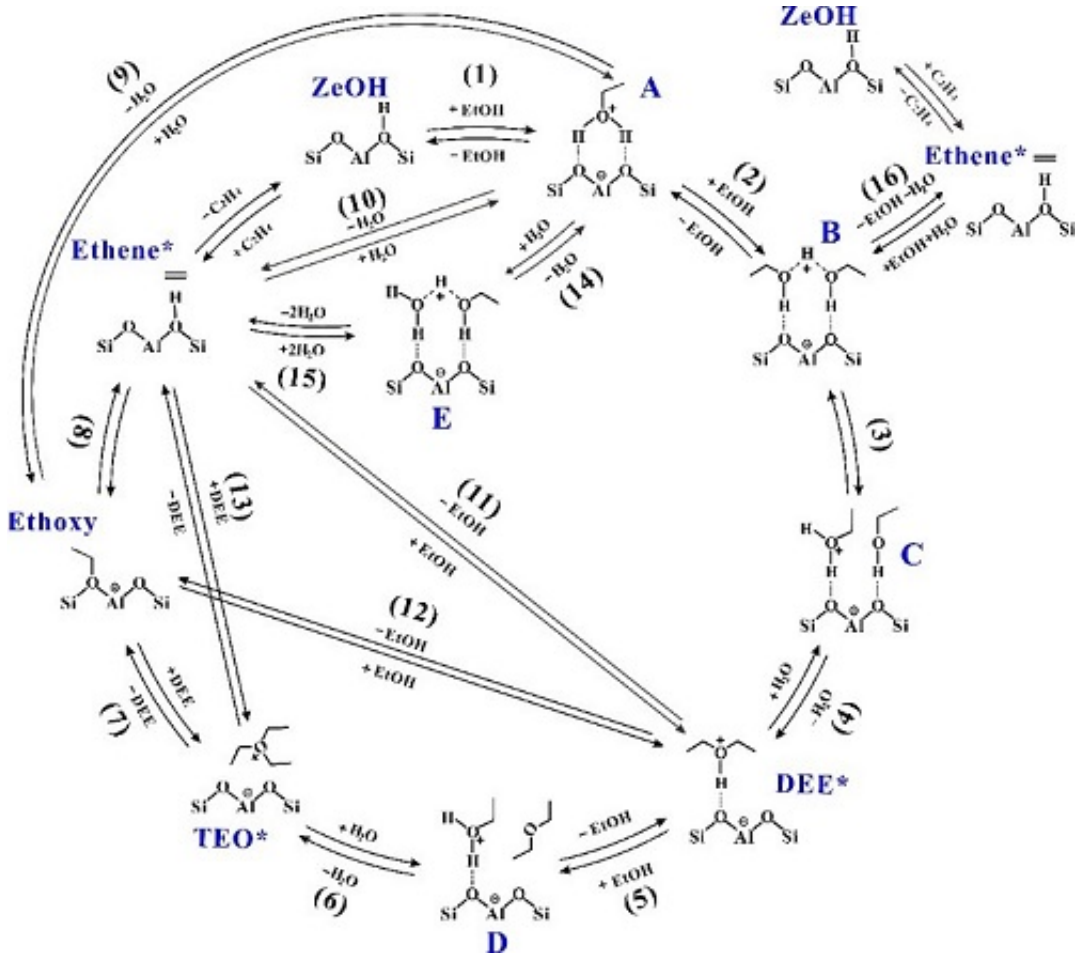


图2. 乙醇脱水生成乙烯的催化反应机制

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