
精密测量院揭示沸石分子筛催化甲醇制烃类反应中催化剂的失活机制

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/9381.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！

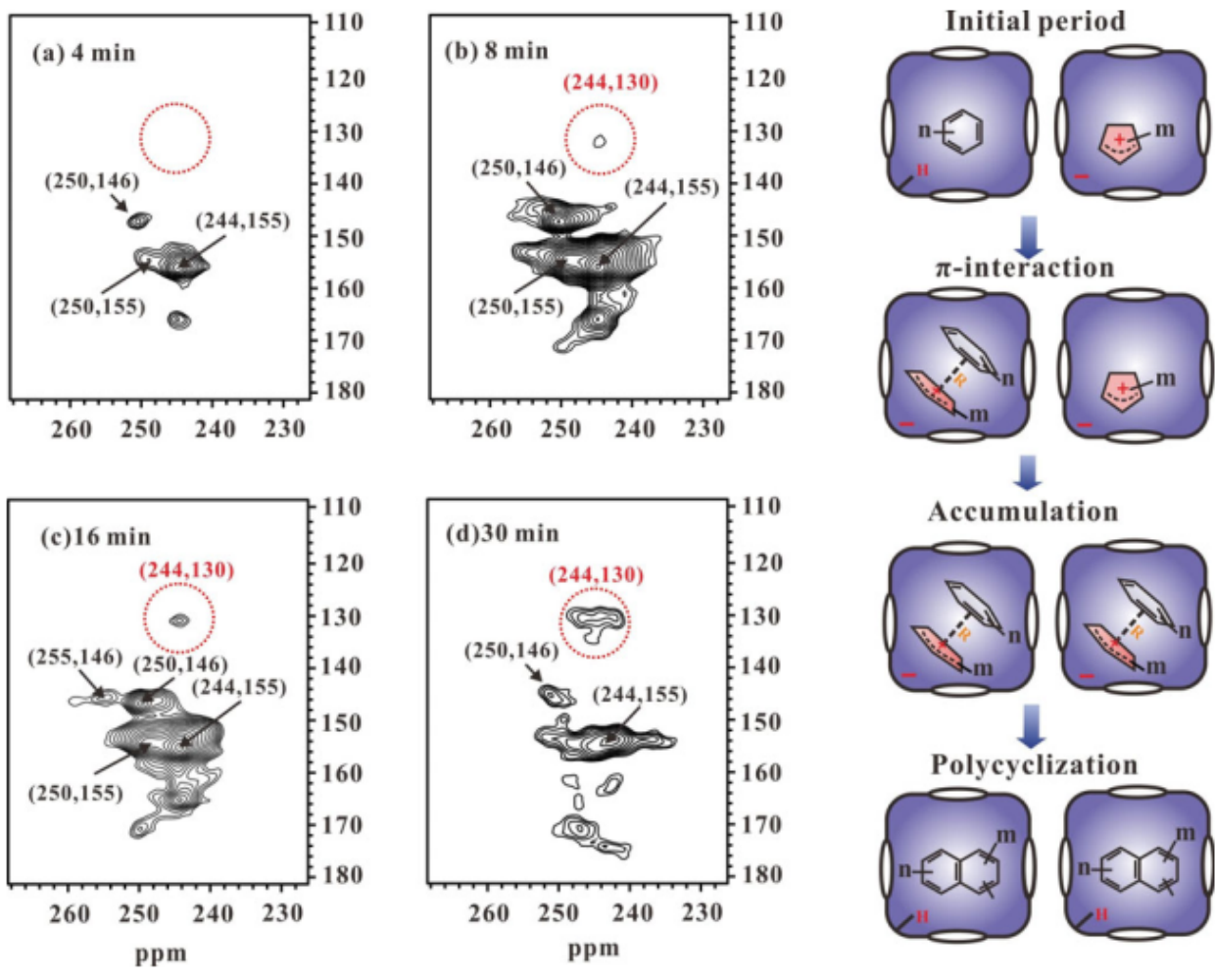
近日，中国科学院精密测量科学与技术创新研究院徐君和邓凤团队在沸石分子筛催化甲醇制烃类（methanol-to-hydrocarbons, MTH）反应中催化剂失活机制的研究方面取得新进展。研究发现，反应过程中形成的环戊烯碳正离子可以和芳烃发生相互作用，从而导致积碳物种萘的形成，最终导致催化剂的失活。

沸石分子筛上甲醇制烃类反应可以替代常规石油资源生产烯烃、芳烃和汽油等重要大宗化学品和液体燃料，因而受到了世界各国工业界和学术界的广泛关注。然而，在反应过程中分子筛积碳会导致催化剂失活，直接影响生产成本以及反应工艺的设计。目前，人们一般认为反应过程中形成的稠环芳烃为主要的积碳物种，它们通过覆盖分子筛活性位以及堵塞孔道导致分子筛失活。但到目前为止，分子筛积碳的形成机制一直不清楚，这在一定程度上妨碍了高性能催化剂的开发。因此非常有必要对分子筛的积碳机制进行深入研究。

在MTH反应中，多碳烃类如长链烯烃、环戊烯碳正离子和芳烃为主要的活性物种（即“烃池”物种），它们与分子筛骨架活性位共同构成超分子催化平台，催化甲醇转化为最终产物。另外，这些活性物种也有可能进一步稠环化，生成积碳物种。因此，通过研究“烃池”物种的演化过程，对于理解积碳的形成非常有帮助。在本工作中，研究人员通过二维 ^{13}C - ^{13}C PDSD固体NMR实验发现，环戊烯碳正离子（缺电子结构）和芳烃（富电子结构）可以通过相互作用实现空间邻近；同时，这种空间邻近性会导致二者发生傅克烷基化反应偶连而形成萘等稠环芳烃，并最终导致分子筛的积碳和失活。DFT理论计算的结果也证实了该积碳过程。此外，研究还发现沸石分子筛的酸位密度和孔道大小是影响这种相互作用的两个重要因素。

该研究工作从沸石分子筛上“烃池”物种之间的空间邻近性和相互作用出发，对MTH反应中催化剂的失活机制进行了研究。首次利用二维固体NMR实验发现环戊烯碳正离子与芳烃之间的相互作用，揭示了分子筛积碳形成机制，研究结果对于高性能催化剂的开发以及反应工艺的优化具有一定的指导意义。相关研究结果发表在《德国应用化学（Angew. Chem. Int. Ed.）》杂志上。

[文章链接](#)



左图：300 温度下，¹³C甲醇在H-SSZ-13-LS分子筛上反应不同时间后的二维¹³C-¹³C PDSD NMR图谱。右图：芳烃与环戊烯碳正离子偶连稠环化过程的图示。

研究团队单位：精密测量科学与技术创新研究院

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](http://www.iikx.com)转发