



面向世界科技前沿, 面向国家重大需求, 面向国民经济主战场, 率先实现科学技术跨越发展, 率先建成国家创新人才高地, 率先建成国家高水平科技智库, 率先建设国际一流科研机构。

——中国科学院办院方针



官方微博



官方微信

搜索

首页 > 科研进展

武汉物数所在甲醇制烯烃第一个碳-碳键生成机制研究中获进展

文章来源: 武汉物理与数学研究所 发布时间: 2018-07-31 【字号: 小 中 大】

我要分享

近日, 中国科学院武汉物理与数学研究所研究员邓风和徐君团队在甲醇制烯烃反应机理研究中取得新进展, 发现沸石分子筛的非骨架铝物种在第一个碳-碳(C-C)键生成过程中起到了关键作用, 并揭示了相关的催化反应机理。研究结果在线发表在《德国应用化学》(*Angew. Chem. Int. Ed.*)杂志上。

乙烯、丙烯等低碳烯烃是重要基础化工原料, 也是现代化学工业的基石, 目前主要依赖于石油资源进行生产。甲醇作为一种平台分子, 可以通过储量丰富的煤、天然气以及生物质等获得, 将其通过催化的方式转化为低碳烯烃的过程(MTO)可以弥补由于石油资源的短缺造成的烯烃供应不足, 从而成为代替石油生产烯烃的一条重要途径。尽管MTO反应已经实现了工业化应用, 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催化工艺的研发。MTO反应是一个由一个碳原子到多个碳原子碳链增长的自催化反应过程。其中最具有挑战性的问题是如何理解第一个C-C键的生成。在稳态反应条件下, 烃池机制认为甲醇可以与烃池物种(表面吸附的烯烃、碳正离子以及芳烃)作用形成烯烃。这些烃池物种由初始C-C键物种通过次级反应而来。但是, 第一个C-C键物种是什么? 第一个C-C键物种产物是怎么生成的? 目前一直没有得到明确的认识。

在该研究工作中, 课题组成员发现在沸石分子筛H-ZSM-5催化剂上, 由于反应过程中脱铝所产生的非骨架铝物种对MTO反应中第一个C-C键的形成起到了重要的促进作用。通过利用前期所发展的¹³C-²⁷Al双共振固体核磁共振实验技术, 首次发现在反应初期生成了与非骨架铝结合的甲氧基物种(SMS-EFAL)(如图1), 并测量了该物种中¹³C-²⁷Al的核间距为2.75±0.24埃, 与理论计算值(2.88埃)相符。进一步的固体NMR实验和理论计算证实SMS-EFAL物种可以与甲醇分子发生氢转移反应生成甲醛, 甲醛进一步与SMS-EFAL物种发生C-C键偶联形成乙醛, 乙醛和甲醇发生氢转移反应形成乙醇以及乙氧基中间体, 最终导致乙烯的生成。此研究结果深化了人们对MTO反应机理和甲醇化学的理解。

副研究员王超和褚刀英为该工作的共同第一作者, 通讯联系人为徐君和邓风。该工作得到了国家自然科学基金委、中科院以及湖北省科技厅的支持。

论文链接

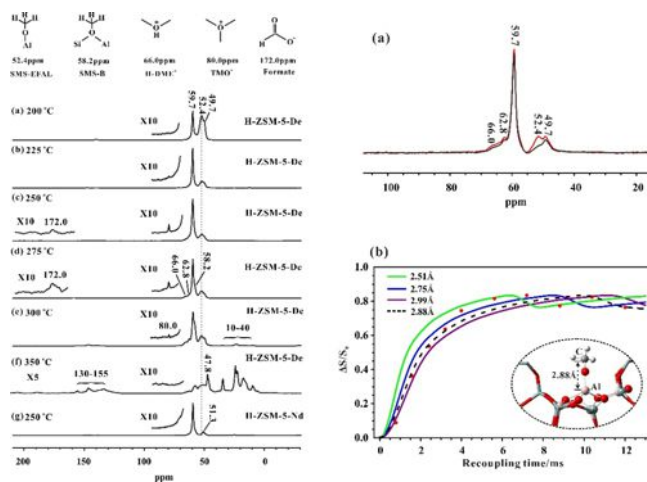


图1. MTO反应中H-ZSM-5分子筛表面吸附物种的¹³C MAS NMR 图谱(左)与非骨架铝结合的甲氧基物种(SMS-EFAL)的¹³C-²⁷Al S-RESPDOR图谱(右)。

热点新闻

中国散裂中子源通过国家验收

我国成功发射两颗北斗导航卫星
中科院与青海省举行科技合作座谈会
“4米量级高精度碳化硅非球面反射镜集成...”
中科院与天津市举行工作会谈
中科院与协和医院签约共建健康科学研究中心

视频推荐

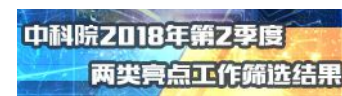


【新闻联播】“率先行动”计划 领跑科技体制改革



【新闻直播间】中国散裂中子源通过国家验收

专题推荐



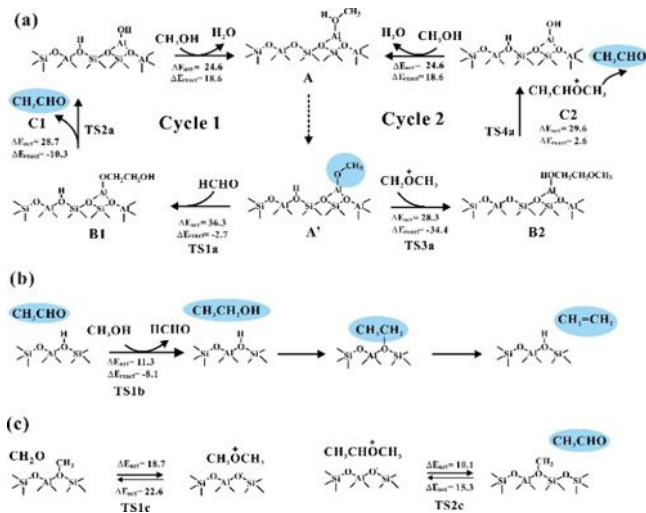


图2. MTO反应中第一个C-C键的形成机制。

(责任编辑: 叶瑞优)



© 1996 - 2008 中国科学院 版权所有 京ICP备05002857号 京公网安备110402500047号 联系我们
 地址: 北京市三里河路52号 邮编: 100864