

[\[PDF全文\]](#)

研究论文

## H-ZSM-5分子筛上的乙烯二聚反应机理的理论计算研究

[张佳](#) [周丹红](#) [倪丹](#)

(辽宁师范大学化学化工学院功能材料化学研究所, 辽宁大连 116029)

**摘要** 应用分子力学和量子力学联合的ONIOM2(B3LYP/6-31G(d,p):UFF)计算方法研究了H-ZSM-5分子筛上乙烯二聚反应的机理. 用40T簇模型模拟ZSM-5分子筛位于孔道交叉点的酸性位, 对乙烯二聚过程的分步反应和协同反应两种机理进行了考察. 对于分步反应机理, 乙烯分子首先通过 $\pi$ -氢键作用在酸性位形成稳定的吸附络合物, 再进一步发生质子化并生成乙醇盐中间体, 随后乙醇盐与第二个乙烯分子发生碳-碳键结合形成丁醇盐产物. 第一步质子化和第二步碳链聚合的活化能分别为152.88和119.45 kJ/mol, 表明乙烯质子化反应为速控步骤. 对于协同反应机理, 乙烯质子化、碳-碳键和碳-氧键生成同时进行, 生成丁醇盐, 反应的活化能为162.30 kJ/mol, 略高于分步反应机理中的速控步骤. 计算结果表明这两种反应机理之间存在相互竞争.

**关键词** [H-ZSM-5分子筛](#); [乙烯](#); [二聚反应](#); [理论计算](#)