



(<http://apm.cas.cn/>)

当前位置: [首页](#) >> [科研动态](#)

科研动态

精密测量院在分子筛催化剂上碳正离子亲水性研究中取得重要进展

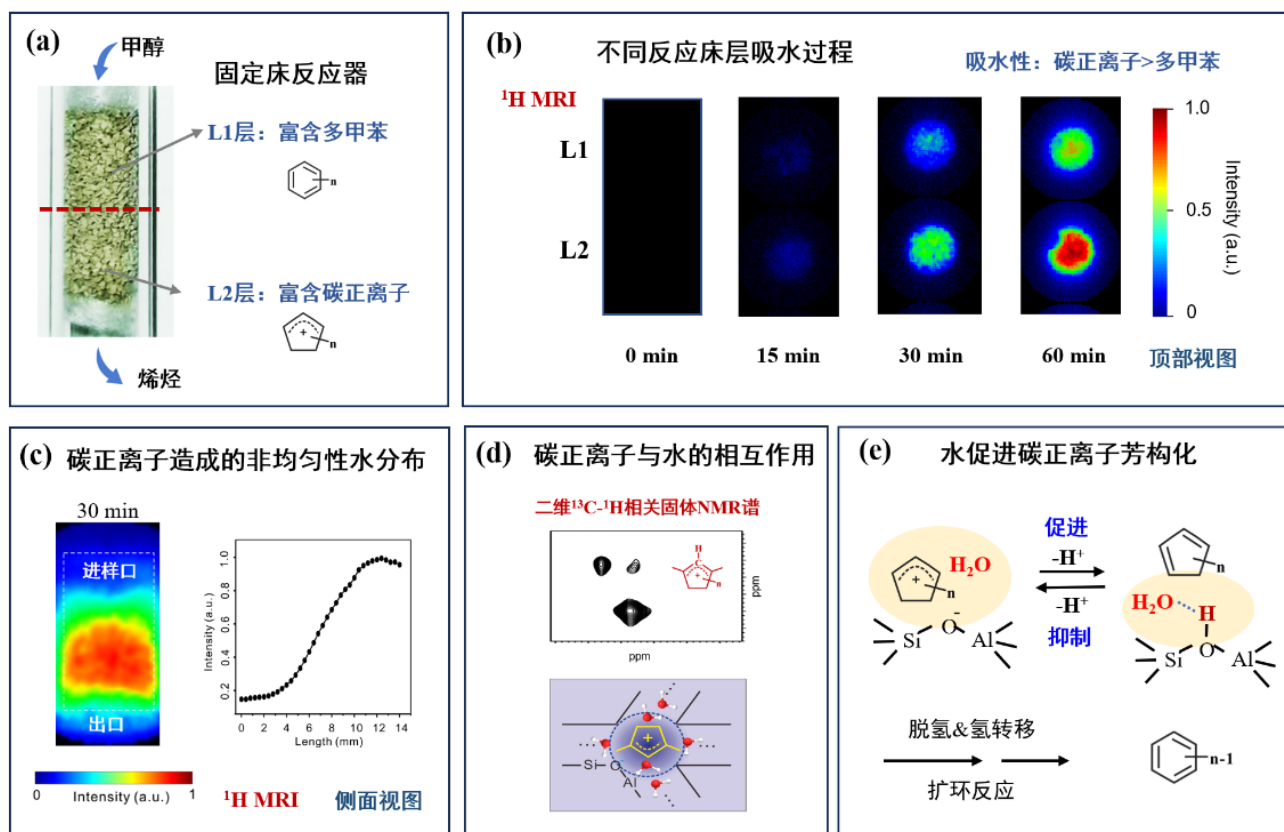
来源: 时间: 2024-04-18

近日, 精密测量院邓风和徐君研究团队在分子筛上多相催化反应碳正离子的亲水性研究中取得重要进展, 研究发现在ZSM-5分子筛上进行的甲醇制碳氢化合物反应 (MTH) 中形成的环戊烯碳正离子具有亲水性, 可吸附反应过程中的水分子并影响其活性, 进而对MTH反应起到了一定的调节作用, 相关结果发表在《美国化学会志》(Journal of the American Chemical Society) 上。

MTH反应是一种重要的化工反应, 可将储量丰富的煤、天然气、生物质等转化为低碳烯烃、芳烃以及汽油等重要化学品以及燃料。该反应是一种自催化反应, 反应过程中形成的长链烯烃和芳烃可作为活性“烃池”物种催化反应物转化为产物。其中, 碳正离子是一种高活性物种, 在烃池反应机制中起到了关键的中间体作用。另外, 水分子作为MTH反应过程中常见物种 (可由甲醇脱水产生以及原料自带), 在分子筛孔道中会形成局域水环境, 并影响“烃池”物种的活性。“烃池”物种的亲疏水性则影响水分子在“烃池”物种附近的聚集程度, 导致“烃池”物种活性的改变。因此, 研究“烃池”物种的亲疏水性有助于理解MTH反应机制, 为优化反应过程建立理论基础。

研究团队结合核磁共振成像 (MRI) 以及核磁共振波谱 (NMR) 技术, 研究了ZSM-5分子筛上环戊烯碳正离子的亲疏水性, 并揭示了其在MTH反应中的作用机制。研究发现, 在MTH反应中, “烃池”物种的分布随反应器长度呈现梯度分布 (图1a), 其中芳烃主要分布于靠近进样口部分, 碳正离子则主要分布于靠近出口部分。¹H MRI实验发现, 水分子更容易在碳正离子富集区域聚集 (图1b), 表明相对于芳烃而言, 碳正离子具有亲水性从而容易与水分子结合。进一步发现, 由于碳正离子的梯度分布, 也造成水分子在反应器中呈现相应的梯度分布 (图1c)。利用采用二维¹³C-¹H相关谱NMR技术, 研究团队发现碳正离子与芳烃和

水的相互作用方式完全不同。对于碳正离子而言，其较强的极性导致其可以与水分子直接结合（图1d）。而芳烃具有疏水性，导致其不容易与水结合，并且由于其较强的空间位阻进一步限制了分子筛对于水的吸附。反应性能测试则进一步表明，水分子与碳正离子结合，可导致碳正离子更容易发生脱氢芳构化反应，形成更多的芳烃物种，进而改变MTH反应途径（图1e）。该工作结果为理解MTH反应机制提供了重要的理论基础，同时为复杂反应体系中水的作用机制研究提供了有效的磁共振谱学与影像学手段。



(a) “烃池”物种在MTO反应器中的非均匀分布；(b) 利用¹H MRI技术研究不同反应床层的吸水过程；(c) 水在反应器中非均匀分布的¹H MRI图谱；(d) 二维¹³C-¹H相关NMR谱研究碳正离子与水分子的相互作用；(e) 水促进环戊烯碳正离子芳构化机制

相关研究以“Unraveling Spatially Dependent Hydrophilicity and Reactivity of Confined Carbocation Intermediates during Methanol Conversion over ZSM-5 Zeolite”为题发表在《美国化学会志》上。精密测量院副研究员王超为该文章的第一作者，研究员徐君和邓风为文章通讯联系人。

该项研究工作得到了国家自然科学基金委、中国科学院、湖北省科技厅的支持。

论文链接：<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jacs.4c01155>

[上一篇：精密测量院在钕离子囚禁研究方面取得进展 \(/t20240425_7131426.html\)](#)

[下一篇：精密测量院等联合在量子电池基础理论研究方面取得新进展 \(/202403/t20240320_7046763.html\)](#)



中国科学院
CHINESE ACADEMY OF SCIENCES

<http://www.cas.cn>

中国科学院精密测量科学与技术创新研究院

地址：武汉市武昌小洪山西30号 电话：027-87199543 邮政编码：430071

ICP备案号：[鄂ICP备20009030号-1](https://beian.miit.gov.cn) (<https://beian.miit.gov.cn>) 鄂公网安备 42011102003884号