



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

当前位置: [首页](http://apm.cas.cn/) (<http://apm.cas.cn/>) >> [科研动态](http://apm.cas.cn/kydt/) (<http://apm.cas.cn/kydt/>)

科研动态

精密测量院在分子筛催化剂上微观水环境作用研究中取得重要进展

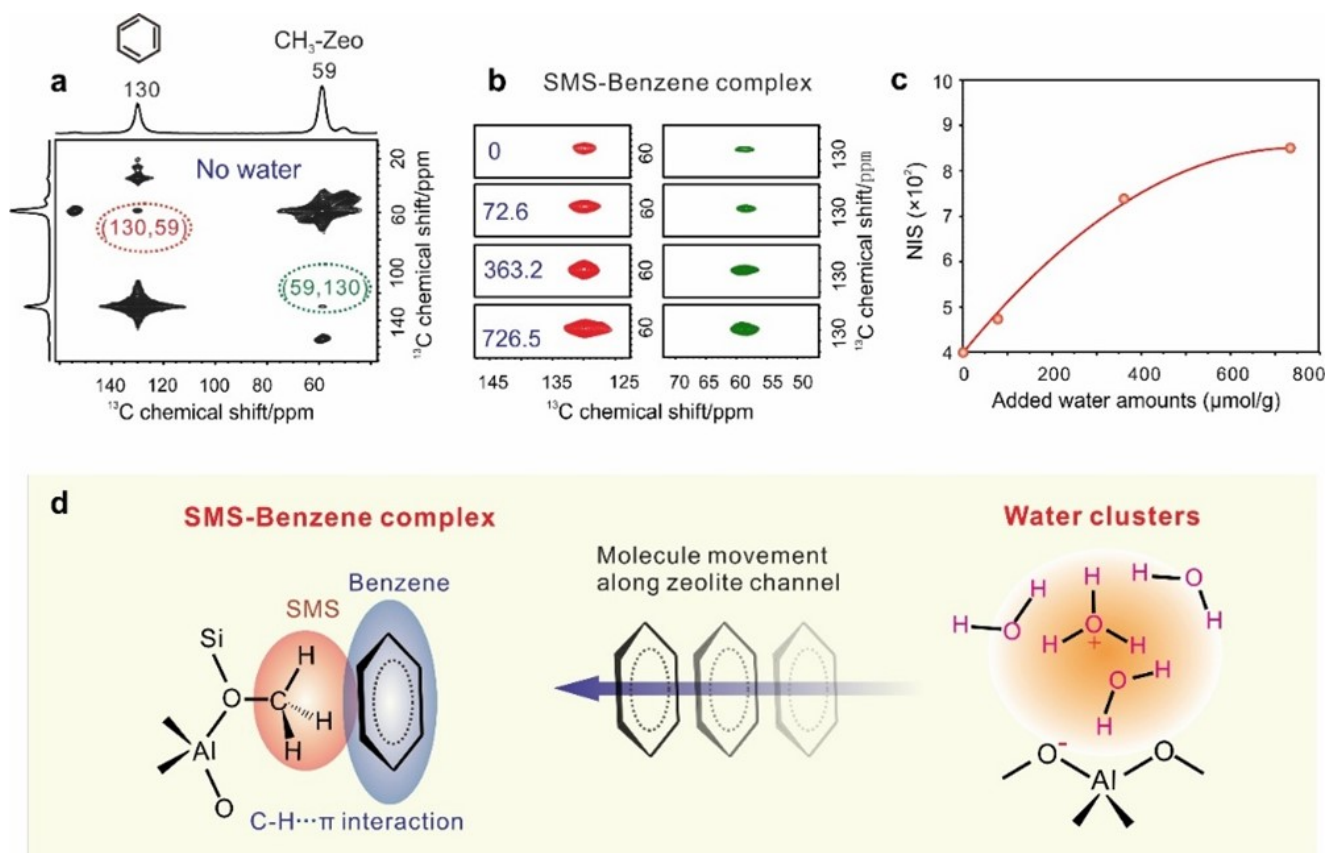
来源: 时间: 2023-12-05

近日, 精密测量院邓风和徐君研究团队在沸石分子筛催化剂上水环境对催化反应影响机制的研究中取得重要进展, 研究发现水分子可以在ZSM-5分子筛催化剂活性位上形成局域微观水环境, 并在苯的甲基化反应体系中诱导产生微观疏水效应, 进而对苯的甲基化反应过程具有调节作用, 相关结果发表在学术期刊《德国应用化学》(Angew. Chem. Int. Ed.) 上。

分子筛上进行的催化反应是一种重要的化工反应过程, 在煤化工、石油化工、绿色化工以及环境化学等行业发挥着举足轻重的作用。水分子在分子筛催化中广泛存在, 并显著影响分子筛催化反应性能。水分子可在催化剂的活性位上凝聚并影响反应物吸附、过渡态形成、中间体稳定性以及产物脱附。但由于分子筛多孔性结构以及催化反应过程的复杂性, 对于反应过程中微观水环境的作用机制仍然没有明确的认识, 尤其是水分子所涉及的复杂分子间相互作用给常规表征技术带来极大挑战。

研究团队利用一系列高分辨固体NMR方法并结合理论计算, 研究了分子筛上苯甲基化反应中水环境的作用机制。采用二维 ^{13}C - ^{13}C 相关谱NMR技术, 发现水分子的引入可驱使苯分子在分子筛孔道中扩散并与表面甲氧基物种结合形成苯-甲氧基活性复合物种(图1)。这种微观水环境导致有机分子间结合的作用称之为微观疏水效应。进一步, 研究团队在100 kHz高速魔角旋转条件下采用二维 ^1H - ^1H 双量子以及三量子实验探测了水分子与有机客体分子间的分子间相互作用, 构建了微水环境的精确结构模型。此外, 采用 ^1H - $\{^{27}\text{Al}\}$ 双共振NMR技术, 研究团队发现在反应体系中水分子的加入会逐渐使得苯分子远离布朗斯特(质子酸)酸位, 这是微疏

水作用产生的根本原因，通过变温NMR实验，发现在分子筛孔道中由于微疏水效应所生成的苯-甲氧基复合物会进一步反应生成多甲苯产物。结合密度泛函理论以及动力学理论计算，阐明了微疏水效应机制。该工作为理解水在分子筛催化中的作用提供了重要的理论基础，为高性能催化剂的开发以及反应工艺的优化提供了新的思路。



(a-c) 二维 ^{13}C - ^{13}C 相关谱NMR技术研究水对苯-甲氧基活性复合物种形成的作用，以及
(d) 微观疏水作用促进苯-甲氧基活性复合物示意图

相关研究以 “Water-Induced Micro-Hydrophobic Effect Regulates Benzene Methylation in Zeolite” 为题发表在《德国应用化学》上，精密测量院副研究员王超和褚月英为该文章的共同第一作者，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、湖北省等基金项目的支持。

论文链接：<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/anie.202313974?campaign=wolearlyview> (<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/anie.202313974?campaign=wolearlyview>)

[上一篇：湖北洪湖站（湿地）入选第一批国家生态质量综合监测站](#)
(./t20231208_6941287.html)

[下一篇：精密测量院在天然细胞膜固体核磁共振结构测定方面取得系列进展](#)
(../202311/t20231127_6937792.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>) 鄂公网安备 42011102003884号