

纳米片型 ZSM-5 分子筛催化 苯-乙醇烷基化制乙苯

王涵姿¹, 朱鹏¹, 姚迪¹, 于伊人¹, 杨国辉¹, 张雄福^{1*}, 刘国东²

(1. 大连理工大学化工学院, 辽宁 大连 116024;

2. 中国科学院大连化学物理研究所 催化基础国家重点实验室, 辽宁 大连 116023)

摘要: 针对苯与乙醇烷基化制备乙苯的反应, 选用纳米片型 ZSM-5 分子筛为母体催化剂, 采用固定床反应器考察了其在苯-乙醇烷基化反应中的催化性能并评价其稳定性。探究了 Mg、Zn、B 元素等体积浸渍改性对催化剂的烷基化反应性能的影响, 精确调控负载量, 并在苛刻条件下评价改性催化剂及母体催化剂的稳定性。结果表明, 使用母体催化剂时, 苯-乙醇烷基化反应连续运行 150 h, 苯转化率保持在 45% 以上, 乙基(乙苯+二乙苯)选择性稳定在 96.9% 左右, 表明母体催化剂具有优良的稳定性。经 Mg、Zn、B 负载改性后, 改性催化剂的乙基选择性均有所提升, 其中经 1% B 负载后改性效果最佳, 苯转化率提升至 46.7%, 乙基选择性达 98.6%, 产品中二甲苯含量降至 1 050 ppm。在空速 15 h⁻¹ 的苛刻条件下, 改性催化剂可稳定运行 130 h 而不失活。

关键词: 分子筛; 纳米片 ZSM-5; 烷基化; 催化剂改性

中图分类号: TQ241.1

文献标志码: A

文章编号: 0253-4320(2025)09-0167-06

DOI: 10.16606/j.cnki.issn0253-4320.2025.09.030

Nanosheet-shaped ZSM-5 molecular sieve catalyst for alkylation of benzene and ethanol to produce ethylbenzene

WANG Han-zi¹, ZHU Peng¹, YAO Di¹, YU Yi-ren¹, YANG Guo-hui¹,
ZHANG Xiong-fu^{1*}, LIU Guo-dong²

(1. School of Chemical Engineering, Dalian University of Technology, Dalian 116024, China;

2. State Key Laboratory of Catalysis, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences,
Dalian 116023, China)

Abstract: Regarding the reaction for preparing ethylbenzene through benzene-ethanol alkylation, nanoplate-type ZSM-5 molecular sieve is selected as the parent catalyst. The catalytic performance and stability of the catalyst in benzene-ethanol alkylation reaction are evaluated in a fixed bed reactor. The influences of volume impregnation modification with elements such as Mg, Zn, and B on the alkylation reaction performance of the catalyst are explored, the loading amount are precisely regulated, and the stability of the modified and parent catalysts is evaluated under harsh conditions. It is indicated that under the optimized conditions including atmospheric pressure, 350 °C, a space velocity of 6 h⁻¹, and a carrier gas flow rate of 30 mL/min, the benzene-ethanol alkylation have undergone for 150 h continuously over the parent ZSM-5 molecular sieve, which presents a benzene conversion rate above 45% and an ethyl (ethylbenzene + diethylbenzene) selectivity of 96.9%, demonstrating an excellent stability. The ethyl selectivity is all enhanced as the modified catalysts that are obtained by modifying the parent catalyst through loading with Mg, Zn, and B, respectively, are served. Among them, the catalyst through loading with 1% B shows the best effect, increasing the benzene conversion rate to 46.7%, enhancing the ethyl selectivity to 98.6%, and reducing the content of xylene in the product to 1 050 ppm. Under the harsh condition with a space velocity of 15 h⁻¹, the modified catalyst can operate stably for 130 h without deactivation.

Key words: molecular sieve; nanoplate ZSM-5; alkylation; catalyst modification

乙苯(又称乙基苯、苯乙烷)作为苯的重要衍生物,其产量的 90% 用于苯乙烯生产,苯乙烯广泛应用于塑料、橡胶、纤维等领域^[1]。近年来,我国对苯乙烯的需求不断增长,拉动乙苯产业不断发展。目前乙苯主要通过苯和乙烯的烷基化反应来生产。然而,随着全球石油资源的日益匮乏以及环保法规的

日趋严格,依赖乙烯获取乙苯的方式受到制约。而选择乙醇代替乙烯作为烷基化剂可以充分利用乙醇来源广泛的优点,同时可以提升乙醇的经济价值。因此,使用乙醇和苯进行烷基化反应的路线更符合“双碳”政策,有利于推动化工产业的绿色转型^[2-4]。

ZSM-5 分子筛因其特有的孔道结构和可调控

收稿日期: 2024-12-11; 修回日期: 2025-07-12

基金项目: 大连理工大学-大连化学物理研究所合作项目(HX20230236); 辽宁滨海实验室项目(LBLG-2024-08)

作者简介: 王涵姿(1999-), 女, 硕士生, 研究方向为分子筛催化, hzwang1229@163.com; 张雄福(1963-), 男, 博士, 教授, 研究方向为分子筛及其膜合成与催化分离应用, 通讯联系人, xfzhang@dlut.edu.cn。

的酸性特征,在催化烷基化反应领域得到了广泛的应用^[5-7]。然而传统沸石分子筛的微孔结构容易限制反应产物的扩散,产生积碳现象进而使其失活。因此如何解决传统 ZSM-5 分子筛存在的扩散传质问题成为研究热点^[8]。解决此问题的方法包括减少分子筛 b 轴厚度,而 b 轴取向的纳米片型 ZSM-5 分子筛由于其超薄的厚度(直孔道方向)、优异的扩散性能、易于接近的酸性位点等优点引起了研究者的广泛关注^[8-11]。如,Zhang 等^[10]制备了 b 轴取向的 ZSM-5 纳米片,其 b 轴厚度可达到 30 nm;Zhu 等^[12]提出了一种晶种诱导-尿素辅助策略,合成了厚度可调、高质量的 ZSM-5 纳米片,在烷基化反应中表现出优异的催化性能,其寿命超过 500 h。因此,以 b 轴取向 ZSM-5 纳米片作为苯-乙醇烷基化反应的催化剂,相信其可以表现出优异的催化性能。

此外,沸石分子筛的酸性质也会影响其对苯-乙醇烷基化的催化性能。研究表明,对 ZSM-5 分子筛改性能够有效调控其酸性,从而提高乙苯选择性并抑制副反应的发生^[13]。张雅飞等^[14]利用单组分负载和水热处理联合的方法对 ZSM-5 分子筛改性,用于催化烷基化反应时所得乙苯产品中二甲苯质量分数低至 700 ppm;高俊华等^[13]利用 Zn 改性 ZSM-5 分子筛,降低了烷基化反应副产物的生成;吕晓欢等^[15]利用 P、Mg 复合改性 ZSM-5 分子筛,所获乙苯选择性可达 99.6%。通过改性提升催化剂选择性的同时,难免降低其活性(苯转化率),因此制备高选择性、高稳定性、高活性的烷基化催化剂仍然是严峻的挑战。

本研究选用本课题组研发的 b 轴取向纳米片型 ZSM-5 分子筛作为母体催化剂,探究其在苯-乙醇烷基化反应中的催化性能,优化反应条件以获得较高的苯转化率,并研究催化剂的连续运行稳定性。采取 Mg、Zn、B 不同元素对母体催化剂进行等体积浸渍处理,以提高其催化下苯-乙醇烷基化反应的乙基选择性和降低产品中二甲苯相对含量。探究最佳改性元素,并研究改性催化剂的稳定性。此研究可为开发高效的苯-乙醇烷基化催化剂提供重要的实验数据和理论基础,为提升催化剂性能提供有益指引。

1 实验部分

1.1 试剂与原料

苯、乙醇、硝酸、拟薄水铝石($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$)、硝酸铝($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$)、四丙基溴化铵($\text{C}_{12}\text{H}_{28}\text{BrN}$)、氟

化铵(NH_4F)、乙酸镁、硼酸、田菁粉,均为分析纯。硅溶胶(SiO_2)浓度为 30%。

1.2 催化剂的制备

以硝酸铝为铝源,硅溶胶为硅源,再加入氟化铵、去离子水等后一起装入反应釜中进行合成,产物经洗涤、离心、干燥、焙烧后得到 ZSM-5 分子筛原粉。按一定比例把分子筛原粉、拟薄水铝石、田菁粉和稀硝酸溶液混合后挤条成型,干燥焙烧后成为母体催化剂备用。

采用等体积浸渍法将母体催化剂放置在分别以乙酸镁、硝酸锌、硼酸作为前驱体配制的水溶液中,干燥焙烧后分别制得 Mg、Zn、B 改性的分子筛,负载量分别记为 X%、Y%、Z%,所得样品依次命名为 X% Mg/ZSM-5、Y% Zn/ZSM-5 和 Z% B/ZSM-5。

1.3 催化剂的表征

利用 NOVA NanoSEM 450 型冷场扫描电镜对所制备的催化剂形貌进行分析;在 D/Max 2400X 射线衍射仪(XRD)上对母体催化剂和改性催化剂样品的晶体结构分析测试,以 $\text{CuK}\alpha$ (40 kV, 100 mA) 为辐射源,扫描范围为 $5^\circ \sim 50^\circ$,扫描速率为 $8^\circ/\text{min}$;使用 Quantachrome 生产的 Autosorb-IQ-C 型气体吸附仪测试所制备催化剂的孔道特征;在 PCA-1200 化学吸附分析仪上使用 NH_3 程序升温脱附法来对所制备催化剂的表面酸性质进行分析。

1.4 催化剂的评价

将制备的催化剂筛分至 20~40 目后在小型固定床反应装置中进行催化性能评价。反应管内装填适量的小球、石英棉,使催化剂位于反应管恒温段,以 N_2 为载气进行程序升温,采用高精度微量泵将原料(苯、乙醇)输送入反应管,利用上海天美公司生产的 DC7900P 型的气相色谱分析仪对反应产物进行定性和定量分析,该仪器配备了火焰离子化检测器(FID)以及 SE-30 型毛细管柱。

2 结果与讨论

2.1 催化剂的形貌与结构

图 1 展示了所制备母体催化剂(纳米片型 ZSM-5 分子筛)的表征结果。通过图 1(a)、(b)的 SEM 图可以看到,催化剂呈片状结构,其中 a 轴和 c 轴的尺寸分别约为 400 nm 和 1 700 nm,而 b 轴厚度约为 50 nm。图 1(c)的 XRD 谱图表明,样品在 2θ 为 $5^\circ \sim 10^\circ$ 和 $20^\circ \sim 25^\circ$ 范围内出现“五指”特征峰,表明其具有典型的 MFI 结构,结晶度较高。图 1(d)的 N_2 吸附-脱附等温线显示,样品呈现典型的 I 型等

温线特征,这清楚地表明该催化剂具有较好的结晶度、较大的比表面积、增强的扩散性能、较高的抗积碳能力,有利于延长其使用寿命,在苯-乙醇烷基化反应中具有很好的应用前景。

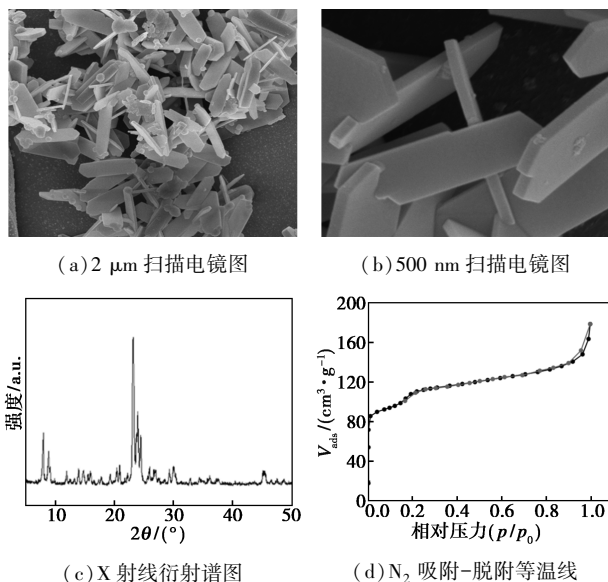
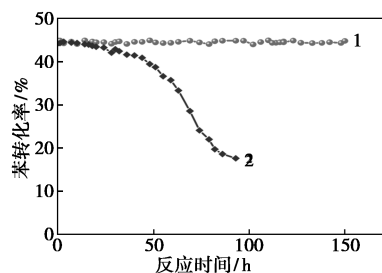


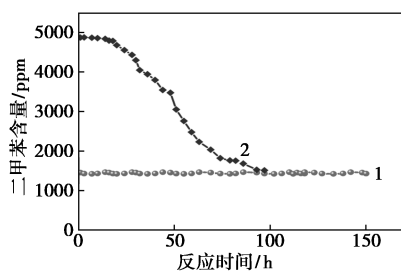
图1 母体催化剂的表征

2.2 纳米片型 ZSM-5 与商业 ZSM-5 的反应性能比较

为了评估所制备纳米片型 ZSM-5 分子筛的稳定性,将其 $n(\text{SiO}_2)/n(\text{Al}_2\text{O}_3) = 100$ 的商业 ZSM-5 分子筛进行对比实验。在优化条件下进行了长周期(150 h)反应测试,相关结果见图 2 和表 1。实验旨



(a) 苯转化率



(b) 二甲苯相对含量

1—纳米片型 ZSM-5 分子筛;2—商业 ZSM-5 分子筛

图2 纳米片型 ZSM-5 和商业 ZSM-5 的反应稳定性对比

表1 纳米片型 ZSM-5 和商业 ZSM-5 催化下副产物选择性及乙苯收率对比

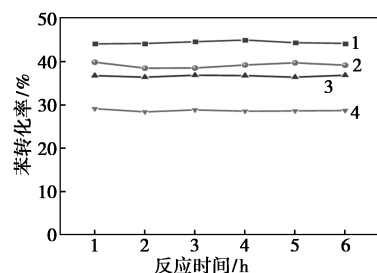
催化剂种类	选择性/%					乙苯收率/%
	乙苯	甲苯	丙苯+异丙苯	二乙苯	二甲苯	
纳米片型 ZSM-5	81.6	0.8	1.9	15.3	0.3	36.8
商业 ZSM-5	81.3	4.1	3.2	9.4	0.9	34.9

在考察对比两种催化剂的活性、选择性及稳定性差异,为纳米片型 ZSM-5 分子筛的实际应用提供数据支持。

由图 2(a)、(b) 可见,在 150 h 的苯-乙醇烷基化反应过程中,纳米片型 ZSM-5 分子筛表现出良好的稳定性,苯的转化率始终保持在约 45%,而产品中二甲苯的相对含量也稳定维持在约 1 400 ppm。相比之下,商业 ZSM-5 分子筛的性能明显较差,苯转化率在前 80 h 内从初始的 43% 快速下降至 17%,同时二甲苯含量在前 50 h 内始终高于 3 000 ppm。从表 1 可以看出,纳米片型 ZSM-5 分子筛的乙苯收率为 36.8%,甲苯选择性为 0.8%,显著优于商业 ZSM-5 分子筛的乙苯收率(34.8%)和甲苯选择性(4.1%),表明其具有较高的催化活性和乙苯选择性。综上所述,纳米片型 ZSM-5 分子筛在反应中表现出较高的活性和优良的稳定性。然而,二甲苯含量仍偏高,这表明需要对纳米片型 ZSM-5 分子筛进一步改性。在保持其高催化活性的同时,降低反应中二甲苯的生成量,可以进一步优化其催化性能,为实际工业应用提供更具竞争力的解决方案。

2.3 改性催化剂的反应性能

以纳米片型 ZSM-5 分子筛为母体,在优化条件下采用等体积浸渍法对其分别进行 Mg、Zn 和 B 改性,探讨不同改性组分及其不同负载量对其催化苯-乙醇烷基化反应性能的影响。其中, Mg 改性催化剂的性能差异见图 3。



1—母体催化剂;2—0.3% Mg/ZSM-5;3—0.5% Mg/ZSM-5;

4—0.7% Mg/ZSM-5

(a) Mg 改性对苯转化率的影响

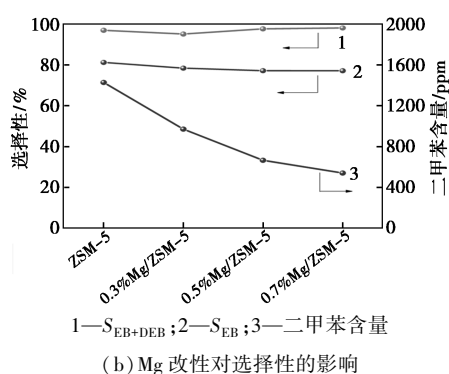
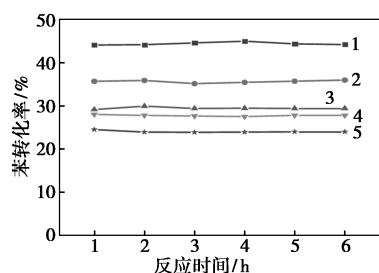


图 3 不同负载量的 Mg/ZSM-5 催化剂的催化性能

图 3 显示,随着 Mg 负载量升高,苯的总体转化率呈下降趋势,但二甲苯含量显著降低,同时乙基选择性有所提升,但乙苯选择性略有下降。这表明适量的 Mg 改性能够有效改善纳米片型 ZSM-5 分子筛的催化性能。具体分析,适量 Mg 的引入可以增加分子筛中的弱酸中心,减少强酸中心,从而抑制二甲苯的生成,显著降低其相对含量。然而,当 Mg 负载量过高时,孔道可能发生堵塞,导致二次烷基化反应加剧。这种情况下,不仅催化剂更容易积碳,还会增加二乙苯等副产物的生成量,同时乙苯选择性下降,催化性能恶化。与未改性的母体催化剂相比,当 Mg 负载量为 0.5% 时,改性催化剂的催化效果提升最为显著。在此条件下,苯的转化率能够稳定在 37% 左右,二乙苯等副产物的选择性降低,二甲苯相对含量降至 693 ppm,展现出较好的催化性能和平衡性。

图 4 显示了不同 Zn 负载量的改性催化剂的反应性能。结果表明,随着 Zn 负载量从 0.1% 增加到 0.7%,苯转化率呈下降趋势,乙苯选择性则先下降后上升,而二甲苯相对含量持续降低,这种现象可归因于 Zn 改性的作用机理。在一定负载量范围内,Zn 的引入会覆盖分子筛表面的部分活性位点,从而降低苯的转化率。然而,当 Zn 负载量过高时,形成的 ZnO 会进一步覆盖活性位点并堵塞分子筛的孔道,不仅阻碍乙苯的扩散,还增加了扩散阻力。这种孔道堵塞现象加剧了二次烷基化反应的发生,导致二乙苯等副产物的选择性升高。综合考虑,当 Zn 负载量为 0.1% 时,改性催化剂的催化性能表现最佳。此时,苯的转化率稳定在约 36%,副产物二乙苯选择性显著降低,二甲苯的相对含量降至 900 ppm。



1—母体催化剂;2—0.1% Zn/ZSM-5;3—0.3% Zn/ZSM-5;4—0.5% Zn/ZSM-5;5—0.7% Zn/ZSM-5
(a) Zn 改性对苯转化率的影响

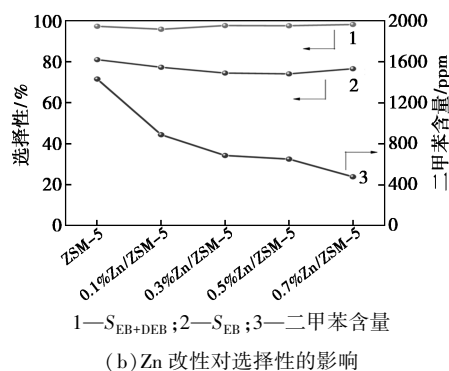
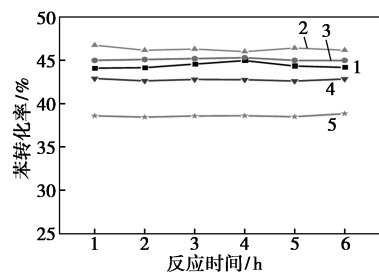


图 4 不同负载量的 Zn/ZSM-5 催化剂的催化性能

B 改性催化剂在反应中性能表现如图 5 所示,随着 B 负载量的不断增加,苯转化率呈现出先升高



1—母体催化剂;2—0.5% B/ZSM-5;3—1% B/ZSM-5;4—1.5% B/ZSM-5;5—3% B/ZSM-5
(a) B 改性对苯转化率的影响

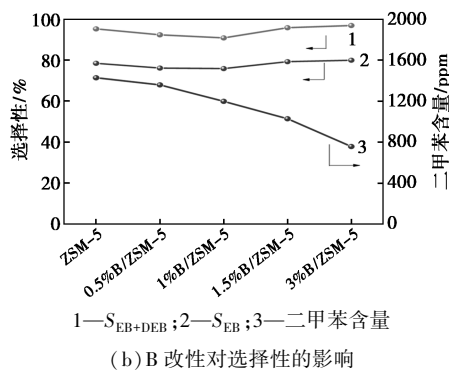
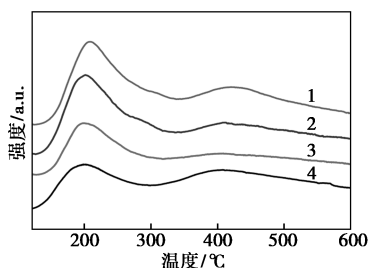


图 5 不同负载量的 B/ZSM-5 催化剂的催化性能

后降低的趋势,而产品中二甲苯相对含量则持续下降,这种趋势可以归因于 B 改性的作用机理。在适量的 B 负载下, B 会覆盖部分强酸位点,从而减少强酸引发的副反应并有利于提高苯的转化率。然而, B 负载量过高时,可能引发孔道堵塞,阻碍反应物和产物的扩散,并加剧二次烷基化等副反应的发生,导致积碳增多,从而使苯的转化率下降。与未改性的母体催化剂相比,当 B 负载量为 1% 时,改性催化剂的催化性能最佳。此时,苯转化率显著提升至 46.7%,乙苯选择性达到 80.1%,乙基选择性则高达 98.6%。此外,二甲苯相对含量由母体催化剂的约 1 400 ppm 降至约 1 050 ppm。

通过 NH_3 -TPD 对母体催化剂及部分改性催化剂进行了酸性特征的表征,如图 6。由图 6 可知,母体催化剂呈现出两个显著的脱附峰,分别与强酸中心(高温区)以及弱酸中心(低温区)相对应。在负载 0.7% Mg 后,强酸峰几乎完全消失,弱酸峰出现了位移现象,表明 Mg 改性改变了酸性特征,可以抑制二甲苯的生成。经 0.1% Zn 改性后,强酸峰的面积明显减小,说明负载 Zn 减少了强酸中心数量,导致苯转化率大幅下降。而经 1% B 改性后,弱酸峰向温度更低方向移动,且强酸峰面积有所减少,表明改性后的催化剂酸性进一步减弱,特别是强酸位点的数量下降,从而可以抑制副反应,显著降低二甲苯含量。



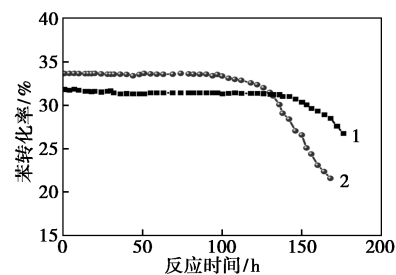
1—母体催化剂;2—0.5% Mg/ZSM-5;3—0.1% Zn/ZSM-5;
4—1% B/ZSM-5

图 6 母体催化剂及改性催化剂的 NH_3 -TPD 谱图

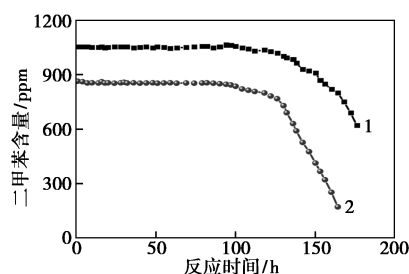
2.4 苛刻条件下改性催化剂稳定性评价

在催化剂的使用过程中,其表面会逐渐沉积含碳化合物,这些化合物作为积碳的前驱物,会减少催化剂的有效比表面积,最终导致催化活性的下降。为了快速、直观地比较 1% B/ZSM-5 改性催化剂与未改性母体催化剂在稳定性方面的差异,并进一步评价其工业应用潜力,采用了加大反应空速的策略。通过提高单位时间内反应物通过催化剂床层的体

积,加速催化剂的失活过程,从而更高效地考察两种催化剂的稳定性。本实验在苯-乙醇摩尔比为 2、常压、 350°C 、空速 15 h^{-1} 、载气流速 30 mL/min 的条件下进行了长周期反应测试。苯转化率和二甲苯相对含量的变化如图 7 所示,而副产物选择性及乙苯收率的具体数据见表 2。



(a) 苯转化率



(b) 二甲苯相对含量

1—母体催化剂;2—1% B/ZSM-5

图 7 苛刻条件下 1% B/ZSM-5 与母体催化剂稳定性评价

表 2 苛刻条件下 1% B/ZSM-5 与母体催化剂副产物选择性及乙苯收率对比

催化剂种类	选择性/%					乙苯收率/%
	乙苯	甲苯	丙苯+异丙苯	二乙苯	二甲苯	
母体催化剂	83.1	0.4	0.9	14.7	0.2	26.6
1% B/ZSM-5	83.2	0.5	1.0	16.6	0.1	28.3

从图 7 和表 2 可以看出,1% B/ZSM-5 改性催化剂相比于未改性的母体催化剂显示出显著的性能优势。1% B/ZSM-5 改性催化剂在 130 h 的反应中,苯转化率始终保持在 30% 以上,展现出良好的稳定性。同时,产品中二甲苯相对含量从初始的约 900 ppm 下降至 300 ppm,显著低于未改性母体催化剂的 1 050 ppm,明显抑制了二甲苯的生成。这些结果表明,1% B/ZSM-5 不仅具有优异的催化性能,还表现出较强的反应稳定性,能够在长周期内维持高的转化率和乙苯选择性,同时有效降低副产物的生成,具有潜在工业应用价值。

3 结论

(1) 本研究所制备的纳米片型 ZSM-5 分子筛具有均匀的片状结构, 在苯-乙醇烷基化反应中表现出优异的催化性能和稳定性。在优化条件(常压、350℃、空速 6 h⁻¹、氮气流速 30 mL/min)下, 与商业 ZSM-5 分子筛相比, 纳米片型 ZSM-5 分子筛表现出更高的苯转化率和乙基选择性, 并能连续运转 150 h 而性能基本保持不变。

(2) 通过对母体催化剂进行单组分改性(Mg、Zn 和 B), 各改性催化剂的催化性能都有所提升。其中, 1% B/ZSM-5 改性催化剂性能最佳, 其苯转化率提升至 46.7%, 乙基选择性提升至 98.6%, 二甲苯质量分数下降至 1 050 ppm。

(3) 在高空速 15 h⁻¹ 的苛刻条件下, 1% B/ZSM-5 改性催化剂依然表现出优异的稳定性。苯转化率为 33.9%, 乙基选择性达到 99.8%, 二甲苯质量分数降低至 900 ppm。经过 130 h 的长运行, 1% B/ZSM-5 改性催化剂的苯转化率略有下降, 但乙基选择性保持不变。

参考文献

- [1] Yang W, Wang Z, Sun H, *et al.* Advances in development and industrial applications of ethylbenzene processes[J]. Chinese Journal of Catalysis, 2016, 37(1): 16-26.
- [2] 慕俊娟. 沸石催化剂上苯与乙烯液相烷基化反应的研究[D]. 北京: 北京化工大学, 2004.
- [3] 刘玲, 刘宏吉, 张春阳, 等. 国内外苯乙烯生产及市场分析预测[J]. 化学工业, 2023, 41(3): 45-51.
- [4] 赵延江, 张兴, 周长麟, 等. 乙苯合成新技术—乙醇制乙苯[J]. 当代化工, 2011, 40(11): 1149-1151.
- [5] Saxena S K, Viswanadham N. Hierarchically nano porous nano crystalline ZSM-5 for improved alkylation of benzene with bio-ethanol[J]. Applied Materials Today, 2016, 5: 25-32.
- [6] Saenluang K, Imyen T, Wannapakdee W, *et al.* Hierarchical nano-spherical ZSM-5 nanosheets with uniform Al distribution for alkylation of benzene with ethanol[J]. ACS Applied Nano Materials, 2020, 3(4): 3252-3263.
- [7] 聂海伟, 朱鹏, 邹杨杨, 等. 纳米聚集体 ZSM-5 分子筛的改性及其用于甲苯-乙醇烷基化高效合成对甲乙苯的研究[J]. 现代化工, 2023, 43(11): 208-213.
- [8] 焦宇霆, 朱鹏, 张越, 等. 前驱晶种液诱导的纳米片 ZSM-5 分子筛调控合成研究[J]. 现代化工, 2024, 44(12): 1-12.
- [9] Rangnekar N, Shete M, Agrawal K V, *et al.* 2D Zeolite coatings: Langmuir-Schaefer deposition of 3 nm thick MFI zeolite nanosheets[J]. Angewandte Chemie, 2015, 54(22): 6571-6575.
- [10] Zhang J, Zhou A, Gawande K, *et al.* b-Axis-oriented ZSM-5 nanosheets for efficient alkylation of benzene with methanol: Synergy of acid sites and diffusion[J]. ACS Catalysis, 2023, 13(6): 3794-3805.
- [11] Jeon M Y, Kim D, Kumar P, *et al.* Ultra-selective high-flux membranes from directly synthesized zeolite nanosheets[J]. Nature, 2017, 543(7647): 690-694.
- [12] Zhu P, Liu C, Yu Y, *et al.* Low-cost and fluoride-free synthesis of MFI zeolite nanosheets with enhanced stability for benzene alkylation with ethanol[J]. Journal of Energy Chemistry, 2025, 100: 458-468.
- [13] 高俊华, 胡津仙, 李文怀, 等. 分子筛结构及磷改性对催化苯与乙醇烷基化反应性能的影响[J]. 石油炼制与化工, 2008, 39(10): 25-29.
- [14] 张雅飞, 朱鹏, 张雄福, 等. 空壳型 ZSM-5 分子筛用于苯-乙醇烷基化制乙苯的研究[J]. 现代化工, 2023, 43(1): 185-191, 197.
- [15] 吕晓欢, 朱鹏, 邹杨杨, 等. 纳米聚集体 ZSM-5 分子筛应用于苯-乙醇烷基化制乙苯研究[J]. 现代化工, 2023, 43(12): 186-192. ■
- [11] Wang J, Dong H, Wang P, *et al.* Adjusting the solvation structure with tris(trimethylsilyl) borate additive to improve the performance of LNCM half cells[J]. Journal of Energy Chemistry, 2022, 67: 55-64.
- [12] Yu H, Yang Z, Han Q, *et al.* Operando building of a superior interface hybrid film enables chemomechanically durable Co-free Ni-rich cathodes[J]. ACS Nano, 2024, 18(20): 13428-13436.
- [13] Von Kolzenberg L, Latz A, Horstmann B. Chemo-mechanical model of SEI growth on silicon electrode particles[J]. Batteries & Supercaps, 2022, 5(2): e202100216.
- [14] Wen Z, Wu F, Li L, *et al.* Electrolyte design enabling stable solid electrolyte interface for high-performance silicon/carbon anodes[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2022, 14(34): 38807-38814.
- [15] Medina-Santos J I, Palma J, Ventosa E, *et al.* Insulating characteristics and ionic conductivity properties of the solid electrolyte interface in lithium-ion batteries to improve a redox-mediated enhanced coulometry method[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2023, 170(9): 090520.
- [16] David H K, Chen P T, Yan W M, *et al.* Perspective of material evolution Induced by sinusoidal reflex charging in lithium-ion batteries[J]. Heliyon, 2024, 10(10): e30471.
- [17] Xu Z, Huang R, Huang P, *et al.* Weakly solvated electrolyte enables the robust solid electrolyte interface on SiO_x anodes for lithium-ion battery[J]. Chemical Engineering Journal, 2024, 500: 157028.
- [18] Huang L B, Li G, Lu Z Y, *et al.* Trans-difluoroethylene carbonate as an electrolyte additive for micro-sized SiO_x@C anodes[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2021, 13(21): 24916-24924.
- [19] Xiao Y, Shi X, Zheng T, *et al.* Dual role of bis(borate) additive in electrode/electrolyte interface layer construction for high-voltage NCM 523 cathode[J]. ACS Applied Energy Materials, 2023, 6(9): 4817-4824.
- [20] Lu K, Lu S, Gu T, *et al.* Onium salts-derived B and P dual-doped carbon microspheres as anode material for high-performance sodium-ion batteries[J]. Electrochemistry Communications, 2019, 103: 22-26. ■