

搜索

□

[\(http://www.apm.cas.cn/\)](http://www.apm.cas.cn/)当前位置: [首页\(../..\)](#) >> [科研动态\(../\)](#)

■ 科研动态

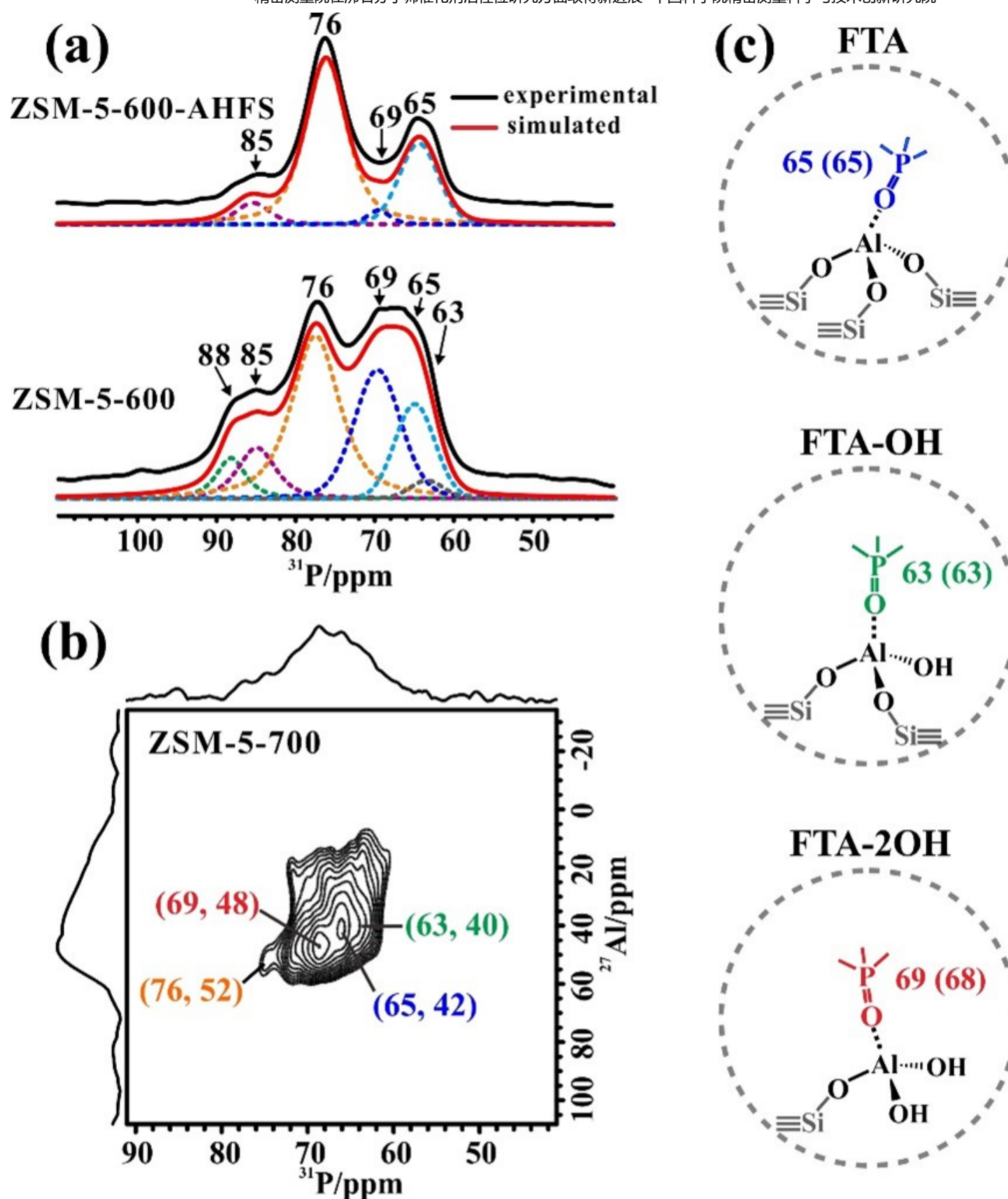
精密测量院在沸石分子筛催化剂活性位研究方面取得新进展

来源: 时间: 2022-09-29

近日,精密测量院徐君和邓风研究团队在沸石分子筛骨架Lewis酸位结构及其催化反应活性的研究方面取得新进展。团队通过固体核磁共振(NMR)实验结合理论计算发现,ZSM-5分子筛上骨架嵌连三配位铝可作为活性Lewis酸性位,在甲醇制碳氢化合物(Methanol-to-Hydrocarbon, MTH)反应中表现出优异的反应活性,可在低温甚至室温条件下活化甲醇生成表面甲氧基物种,并可进一步引发碳氢化合物的生成。相关研究成果发表在《德国应用化学》(Angew. Chem. Int. Ed.)上,并被遴选为Hot Paper。

ZSM-5沸石分子筛是一种重要的微孔固体酸催化剂,可用于MTH反应过程以替代石油路线生产汽油、低碳烯烃以及芳烃等高附加值燃料与化学品。在ZSM-5分子筛中,Bronsted(B)酸位和Lewis(L)酸位是重要的催化活性位点。其中B酸来源于骨架四配位铝形成的Si-OH-Al桥式羟基结构;L酸则来源于骨架四配位铝部分分解形成的骨架、骨架嵌连铝物种以及全部分解形成的非骨架铝物种。与结构较为明确的B酸位相比,人们对于沸石分子筛中L酸位的具体结构以及其反应活性仍然不清楚。研究并理解ZSM-5分子筛上L酸位的结构以及活性,对于构建ZSM-5分子筛的构效关系,从而实现对该催化剂的高效利用具有十分重要的意义。

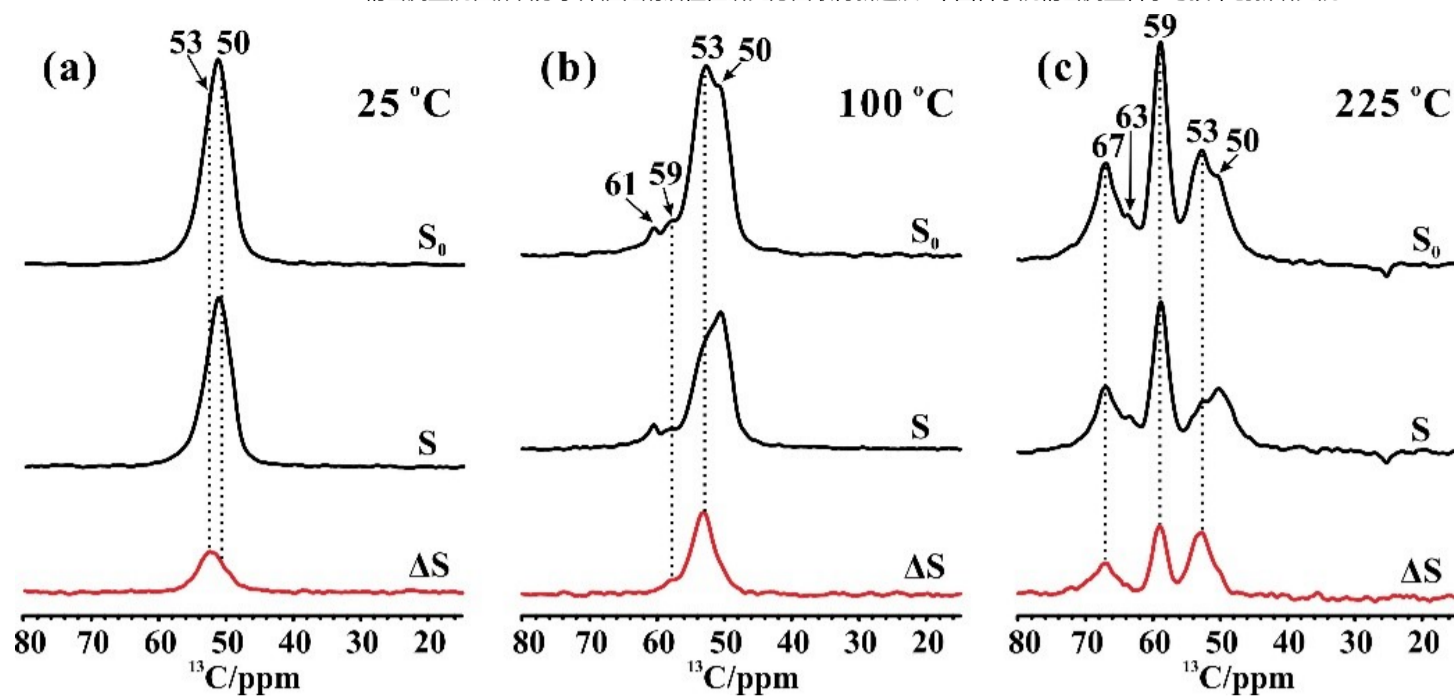




TMPO吸附在脱水分子筛上的一维 ^{31}P NMR谱和二维 ^{31}P - ^{27}Al 相关NMR谱以及TMPO吸附在三种不同骨架/骨架嵌连三配位铝Lewis酸位上的结构模型图，括号里的数值为 ^{31}P 化学位移的理论计算值

在该研究工作中，研究人员利用三甲基氧磷（TMPO）探针分子的 ^{31}P NMR实验技术以及二维 ^{31}P - ^{27}Al 相关固体NMR实验对ZSM-5分子筛上的酸性位进行了解析。发现三种由Lewis酸位吸附TMPO所产生的 ^{31}P NMR信号，且这些L酸位均为三配位铝物种，吸附TMPO后转变为四配位铝物种。结合理论计算确认了其分别为骨架三配位铝物种（FTA）、含单个羟基（FTA-OH）以及含双羟基（FTA-2OH）骨架嵌连三配位铝物种（图1）。随后，研究人员利用甲醇转化反应对这些骨架L酸位的反应活性进行了探究，利用二维 ^{13}C - $\{^{27}\text{Al}\}$ 相关固体NMR实验对表面物种进行了分析。实验发现，与B酸位上形成的甲氧基（59 ppm）相比，L酸位甲氧基（53 ppm）可以在较低温度甚至室温下形成，表明ZSM-5分子筛上的L酸位具有较强的反应活性（图2）。通过关联L酸位甲氧基物种的生成与骨架嵌连三配位铝的含量，发现FTA-2OH位点是生成L酸位甲氧基的主要活性位。此外，理论计算也表明，FTA-2OH位点在所有骨架L酸位中具有最高的甲醇转化活性。该项研究结果对于理解分子筛上L酸位及其在多相催化反应中的作用提供了新的见解，并为分子筛催化剂酸位研究提供了有效的谱学表征新方法。





ZSM-5上 ^{13}C -甲醇在不同温度下反应后分子筛上残留物种的 ^{13}C - ^{27}Al S-RESPDOR NMR谱

博士研究生胡敏为该工作的第一作者，研究员徐君为通讯联系人。

该研究工作得到了国家自然科学基金委、中国科学院以及湖北省科技厅的支持。

文章链接: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/anie.202207400>

上一篇: [精密测量院在量子电池可提取功的理论研究方面取得新进展](https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/anie.202207400) ([./202210/t20221009_6521145.html](https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/anie.202207400))

下一篇: [精密测量院利用卫星InSAR开展四川泸定6.8级地震同震形变与冰川稳定性评估工作](https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/anie.202207400) ([./t20220920_6515003.html](https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/anie.202207400))



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

