

大连化物所揭示分子筛中铝配位的动态演变规律

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/19762.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

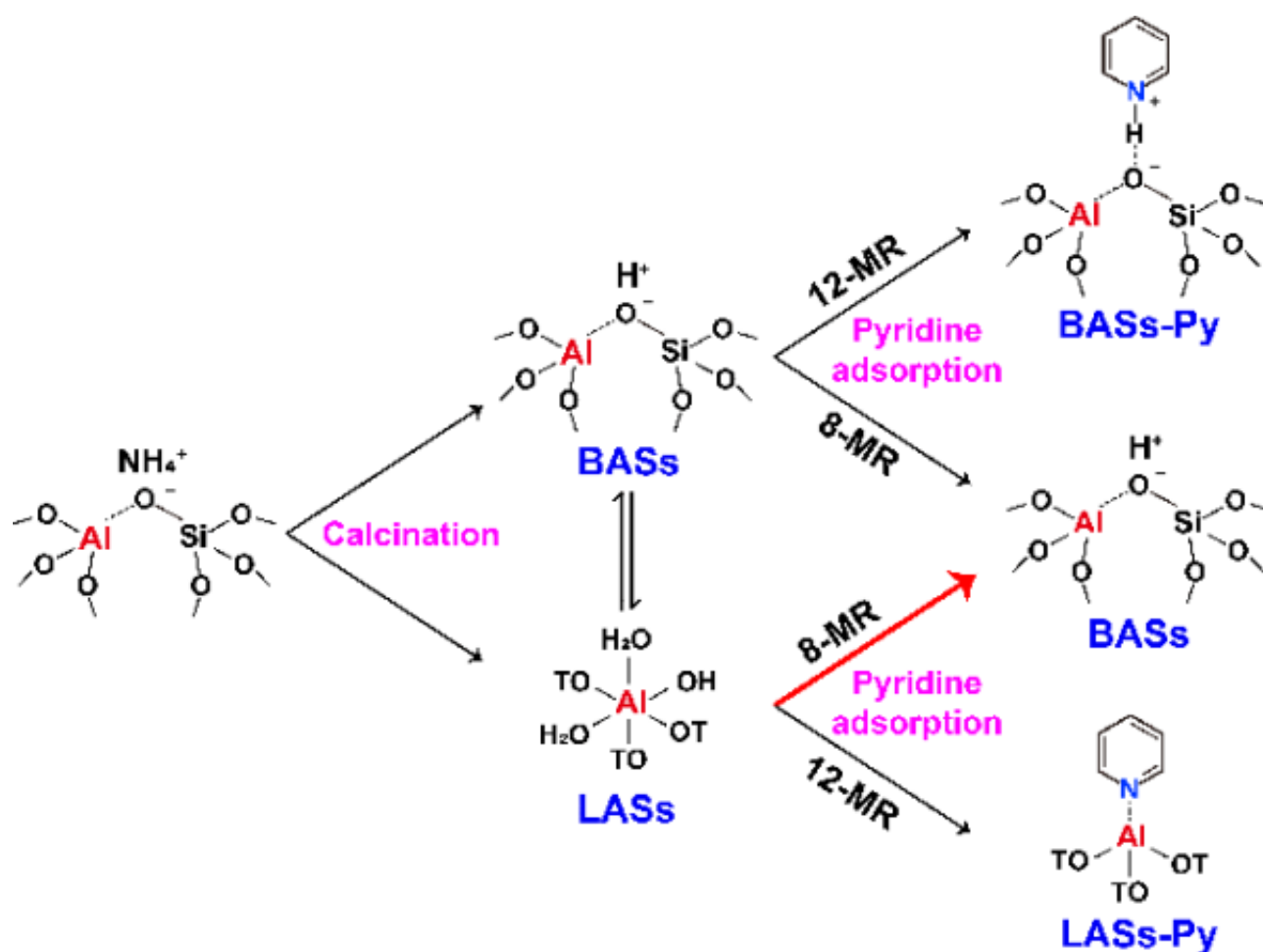
近日，中国工程院院士、中国科学院大连化学物理研究所研究员刘中民团队以丝光沸石分子筛为研究对象，通过不同方法调变分子筛铝物种的状态，揭示了分子筛中铝配位状态的动态演变规律，并发现吸附吡啶可以使非骨架铝定向地转变为骨架铝，显著提高了分子筛催化剂的催化活性和稳定性。

几十年来，分子筛催化剂已广泛应用于化学工业过程中，但经济和环境等因素对材料寿命、选择性和反应活性等提出更高要求，进而推动了人们对分子筛结构-性能关系的研究。理解分子筛结构-性能关系的一个关键是揭示骨架铝的落位、非骨架铝物种的结构和分布，以及铝物种在骨架-非骨架结构之间的动态演变。

该工作中，研究团队在丝光沸石骨架铝表征和定向调控 ([Angew. Chem. Int. Ed.](#), 2022) 的基础上，联合多种研究手段，揭示了分子筛铝物种配位状态的动态演变规律。研究发现，在 NH_4 -MOR中所有铝物种都以四配位形态位于分子筛骨架中，焙烧为HMOR之后，部分骨架铝会转变成六配位和扭曲四配位状态。这些非骨架铝物种是和骨架相关联的，且主要位于丝光沸石的侧口袋8元环孔道中。非骨架铝物种的存在会限制反应物扩散进8元环孔道中进行反应，因此，对催化活性位点在8元环孔道中的二甲醚羰基化反应不利。吸附吡啶(Py)后，在8元环和12元环拓扑空间中，吡啶与不同的铝物种发生复杂的相互作用。在12元环孔道中，吡啶分子与骨架铝产生的B酸位键合，形成BASs-Py，从而中和酸性位点。此外，吡啶也可以作用于12元环中的六配位铝物种，产生LASs-Py，使六配位铝物种转变为四配位铝。同时，吸附在12元环孔道中的吡啶分子还可以驱动8元环中非骨架铝物种重新插入到分子筛骨架中，从而形成更多的反应活性位点。吸附吡啶可以得到一个12元环内酸性位点被选择性中和、8元环中酸性位数量增加的丝光沸石催化剂。这个催化剂十分契合二甲醚羰基化制乙酸甲酯反应的特点，在该反应中展现出较好的性能，大幅度提高了催化剂寿命和反应活性。

相关研究成果以Dynamic Evolution of Aluminum Coordination Environments in Mordenite Zeolite and Their Role in the Dimethyl Ether (DME) Carbonylation Reaction为题发表在《德国应用化学》([Angew. Chem. Int. Ed.](#))上。上述工作得到国家自然科学基金等项目的支持。

[论文链接](#)



大连化物所揭示分子筛中铝配位的动态演变规律

研究团队单位：大连化学物理研究所

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发