研究揭示本征介孔沸石酸位点调控机制

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/38848.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！

研究揭示本征介孔沸石酸位点调控机制

。沸石分子筛作为石油化工和精细化学品合成中广泛应用的固体酸催化剂，其催化性能受到传统微孔结构的限制。近年来，研究者虽已开发出多种超大孔沸石材料，但普遍存在水热稳定性差或难以引入活性铝中心等问题，制约了其在大分子催化中的应用。

中国科学院青岛生物能源与过程研究所研究团队此前报道了一种新型沸石材料ZMQ-1。该材料具有28元环介孔通道（约2.3×1.2nm），兼具沸石的晶体酸性和介孔结构的可及性。然而，其合成过程中使用的含磷有机模板剂在煅烧后仍可能残留，影响材料性能，相关机制尚不明确。

针对该问题，研究团队联合国际团队，系统阐明了ZMQ-1中残留磷物种对材料酸性和孔道结构的影响机制，并实现了酸性位点的精准调控。研究综合运用固体核磁共振、原位红外光谱、氩气物理吸附及密度泛函理论计算等手段，揭示了不同焙烧和后处理条件对残留磷去除效率及酸性位点可及性的影响。实验表明，动态真空焙烧可去除约90%的残留磷，而采用氯化铵或硝酸铯溶液洗涤，可进一步去除超过90%的磷，并恢复铝的骨架结构。

研究团队测定了吡啶及2,6-二叔丁基吡啶在ZMQ-1上的摩尔消光系数，为酸性位点的定量分析提供了基础。实验发现，无磷ZMQ-1中所有Br ø nsted酸性位点均可被探针分子接近，而残留磷的存在显著降低其可及性。DFT计算进一步表明，铝原子优先占据特定结构区域，Br ø nsted质子朝向介孔通道排列，这一预测通过铯离子交换实验得到验证。

催化性能测试结果显示，无磷ZMQ-1对目标产物2,4,6-三叔丁基苯酚的收率达到15.5%，远高于工业常用多级孔USY沸石及无定形Al-MCM-41材料。该优异性能源于ZMQ-1规整的10/12元环窗口级晶体介孔结构。该结构可稳定大分子反应过渡态，是无定形材料难以实现的。

研究为ZMQ-1的催化应用奠定了基础，也为其他基于磷模板剂合成的超大孔沸石结构优化与性能调控提供了研究范式。

相关研究成果以*Elucidating the Acidic and Textural Properties of ZMQ-1, a 28-Membered Ring Mesoporous Aluminosilicate Zeolite*为题，发表在《美国化学会志》（*Journal of the American Chemical Society*）上。

论文链接

研究团队单位：青岛生物能源与过程研究所

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转发