АННОТАЦИЯ
выполнения проекта за 2025 г.

В ходе второго года реализации проекта были достигнуты следующие конкретные научные результаты:

1) Проведены ex situ и in situ ЯМР ВМУ исследования механизмов парофазного синтеза цеолитов FAU, MOR , MWW, а также Ti-, Zr- и Sn-содержащих цеолитов BEA и MFI в щелочной среде, на основе этих данных предложены механизмы их кристаллизации. Установлено, что на стадии приготовления реакционных смесей формируются твердые аморфные гидрогели, которые при нагреве реорганизуются с образованием зародышей будущей структуры. Рост кристаллической фазы происходит, как правило, путем агрегации и уплотнения зародышесодержащих первичных структур.

2) На основе исследований ВМУ ЯМР ^{133}Cs, ^{23}Na «ex situ» и «in situ» предложен механизм парофазного ионного обмена (ПФИО) катионов натрия на катионы цезия в фожазите Y. Установлено, что цезий сначала занимает позиции в содалитовой ячейке в кристаллографической позиции SI’, замещая катионы натрия, далее при увеличении его концентрации происходит заполнение позиций SII’ в содалитовой ячейке и SIII в суперячейке, дальнейшее увеличение концентрации приводит к заполнению позиций SII в большой полости.

3) На основе данных о механизме парофазной кристаллизации предложены методики и установлены параметры парофазной кристаллизации цеолитов FAU, MOR и MWW, а также

Ti-, Sn-, Zr-содержащих цеолитов BEA и MFI в щелочной среде. По этим методикам синтезированы серии цеолитов FAU, MOR, MWW Ti-MFI, Zr-BEA и Sn-BEA с разным составом, морфологией и пористостью.

4) Предложены методики и установлены параметры парофазного ионного обмена катионов натрия на катионы цезия в цеолитах FAU в статических и проточных условиях.

5) Получены физико-химические характеристики цеолитов FAU, MOR, MWW Ti-MFI, Zr-BEA и Sn-BEA, синтезированных методом парофазной кристаллизации в щелочной среде. Установлены основные параметры синтеза, определяющие их фазовую чистоту, морфологию кристаллов и состав активных центров.

6) Получены физико-химические характеристики цеолитов CsNaY со степенью ионного обмена в интервале 20-88 %. Показано, что при низких степенях обмена (20%) катионы цезия заполняют позиции SII’ в содалитовых ячейках, а при больших степенях обмена – все позиции за исключением позиций SI в гексагональных призмах. Установлено, что основными параметрами, определяющими степень ПФО являются соотношения Cs+/Na; размер кристаллов цеолита; мольное соотношение Si/Al в цеолитах и кратность ионного обмена.

7) Получены результаты каталитических испытаний цеолитов со структурой MOR, MFI и BEA в процессе диспропорционирования толуола. Для цеолита BEA с помощью методов 1D ^{27}Al и 2D ^{27}Al MQ MAS ЯМР изучены каталитические центры, определяющие активность этого цеолита в диспропорционировании толуола. Показано, что каталитическая активность коррелирует с концентрацией Al-центров в Т-позициях Т6 + Т7 и Т3 + Т4. Кроме того, установлено, что заселённость атомами Al в позиций Т6 и Т7 в каркасе цеолита растет с увеличением индукционного периода в процессе синтеза.

8) Показано, что в процессе алкилирования бензола пропиленом образцы MWW, полученные парофазным способом, превосходят по своей каталитической активности цеолиты, полученные гидротермальным способом.

9) Установлено, что в процессе эпоксидирования пропилена пероксидом водорода образцы Ti-MFI, полученные парофазным способом, не уступают Ti-MFI, полученным в гидротермальных условиях.

10) Обнаружено, что в процессе синтеза капролактона из циклогексанона образцы Sn-BEA позволяют достигать более высоких конверсий и селективностей по капралактону по сравнению с Zr-BEA.

11) Каталитические свойства CsNaY изучены в алкилировании анилина метанолом. Установлено, что увеличение степени обмена приводит к росту селективности по продуктам алкилирования в боковую цепь, а также к увеличению стабильности работы катализаторов.

12) Показано, что в процессе гидрирования углекислого газа в углеводороды образцы цеолита MFI, полученные методом ПФК позволяют увеличить конверсию CO_2 в 1,5 раза, понизить селективность по CO на 10% и увеличить выход углеводородов в 3 раза по сравнению с коммерческим цеолитом производства «Zeolyst».

13) Выбраны перспективные кандидаты для приготовления высокоэффективных катализаторов для изученных процессов, предложены методики их синтеза.

В результате, запланированные на год работы выполнены и составлен подробный и четкий план реализации третьего этапа проекта. По результатам работы опубликованы 3 научные статьи, две из которых в журнале первого квартиля и принята в печать 1 статья. Сделано 9 докладов на научных конференциях, среди которых одна ключевая лекция.