

---

# 精密测量院等在分子筛吸附诱导活性中心结构变化研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/14275.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！*

中国科学院精密测量科学与技术创新研究院研究员郑安民团队和英国牛津大学教授Shik Chi Edman Tsang合作，利用固体核磁共振、同步辐射X射线衍射、中子衍射等多种实验表征手段和从头算分子动力学模拟相结合的方法，发现SAPO分子筛的Bronsted酸中心在反应过程中能够被吸附诱导形成受阻路易斯酸碱对（FLP）结构，从而表现出较高的反应活性。活性中心作为反应发生的位点，在催化反应中扮演着重要角色，并在很大程度上决定着反应性能。因此，深入了解活性中心的结构和特性是理解反应机理的基础。分子筛是一类应用广泛的环境友好型固体酸催化剂，Bronsted酸中心是分子筛限域孔道中常见的活性位点。然而，研究反应过程中Bronsted酸中心结构的动态变化以及这种变化对反应路径的影响具有较大挑战。

科研人员采用固体核磁结合 $2-^{13}\text{C}$ -丙酮探针分子研究SAPO-34分子筛的酸性特征，发现样品中同时存在Bronsted酸和Lewis酸位点，并在其它SAPO分子筛（SAPO-18和SAPO-35）中也观察到类似实验现象。辅以同步辐射X射线衍射和中子衍射结构精修，发现这两种活性中心分别对应两种不同吸附构型的丙酮分子：（1）丙酮吸附在传统的Bronsted酸位点；（2）丙酮吸附诱导了骨架Al-O键的断裂从而形成FLP结构，丙酮分子直接吸附在FLP结构的Al原子（Lewis酸位点）上（图1）。

在此基础上，进一步研究SAPO分子筛活性中心上甲醇的吸附构型和脱水反应机理（图2）发现，相比于普通硅铝分子筛，实验结果表明SAPO分子筛能够在室温下催化甲醇脱水形成表面甲氧基物种。通过 $^{18}\text{O}$ 标记甲醇的原位漫反射红外实验，证实在整个反应过程中甲醇分子内的C-O键没有发生断裂，脱去的水分子的氧来源于分子筛骨架而不是甲醇分子（图3），从而验证了极性分子吸附诱导SAPO分子筛形成FLP结构的普适性。通过从头算分子动力学方法，实时动态模拟了室温下甲醇在SAPO-34分子筛上从Bronsted酸吸附态到诱导FLP吸附构型的转变过程，发现基于诱导FLP结构的反应路径生成表面烷氧的能垒远低于直接通过Bronsted酸脱水生成表面烷氧的能垒，因而具有较高的反应活性。

相关研究成果发表在Journal of American Chemistry Society

上。研究工作得到国家自然科学基金委员会、中科院和湖北省科技厅，以及英国Diamond同步辐

射光源和中国散裂中子源的支持。

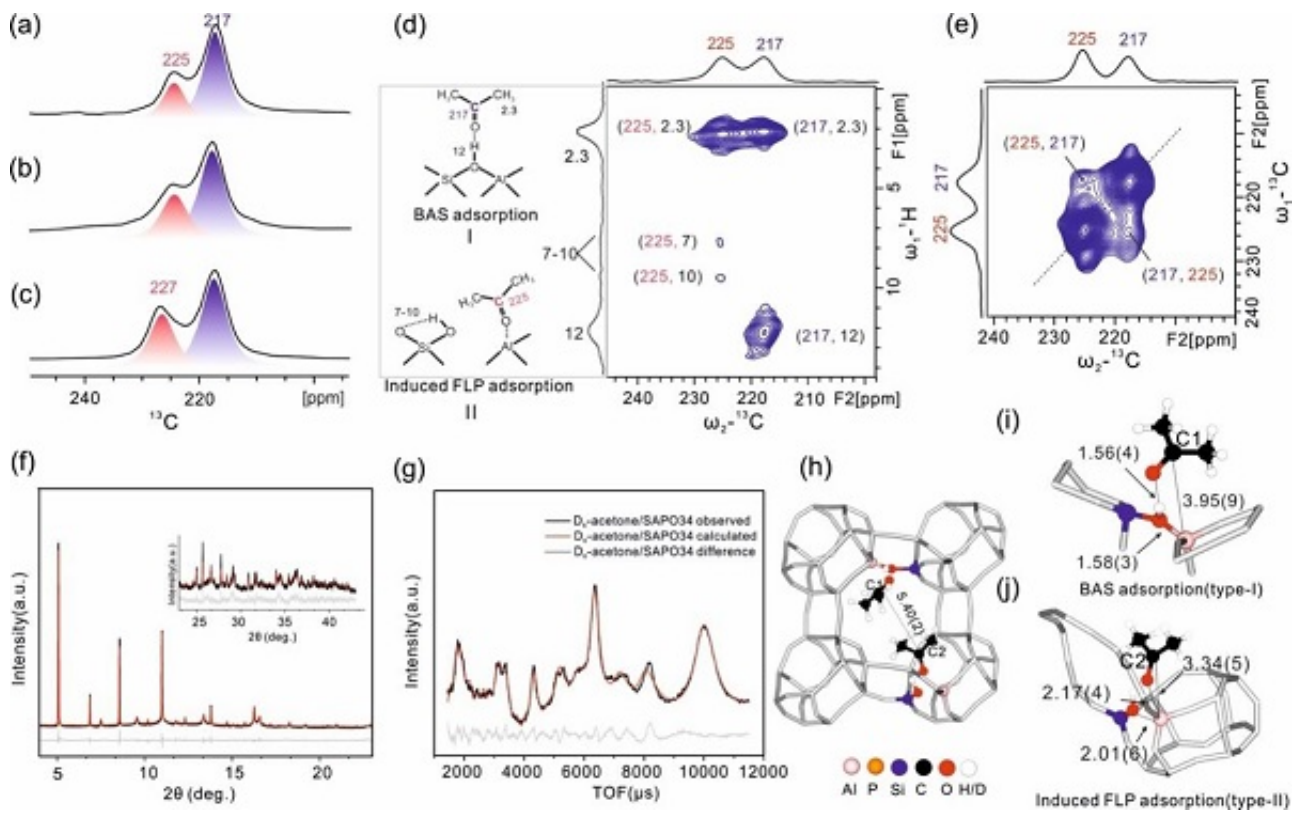


图1.丙酮吸附在SAPO分子筛上的固体核磁实验结果 (a-e) ; 同步辐射X射线衍射/中子衍射实验得到的两种丙酮吸附构型 (f-j)

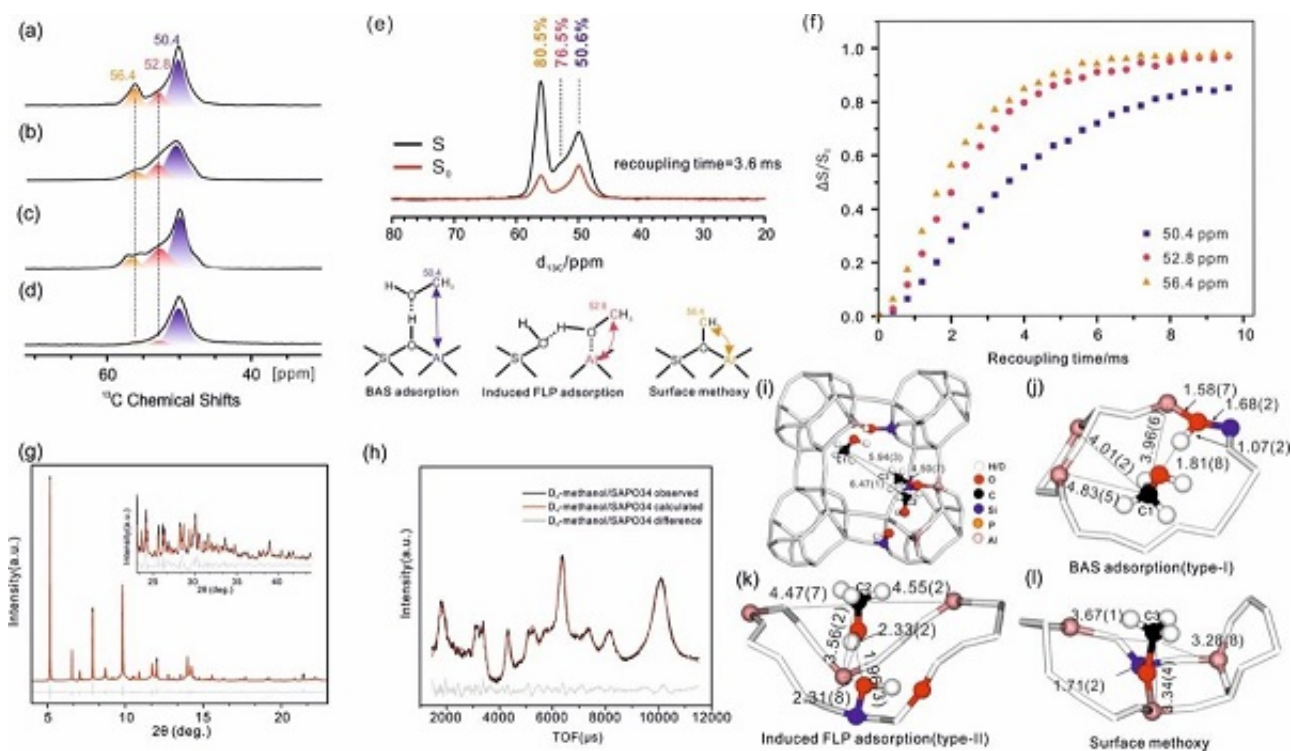


图2. 甲醇吸附在SAPO分子筛上的固体核磁实验结果 (a-f) 和同步辐射X射线衍射/中子衍射实验确定的甲醇吸附构型 (g-j)

---

图3.  $^{18}\text{O}$ -甲醇吸附在SAPO分子筛上的原位漫反射红外实验和从头算分子动力学模拟理论结果  
研究团队单位：精密测量科学与技术创新研究院

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](http://www.iikx.com)转发