
山西煤化所在分子筛上金属落位控制研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/13352.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！

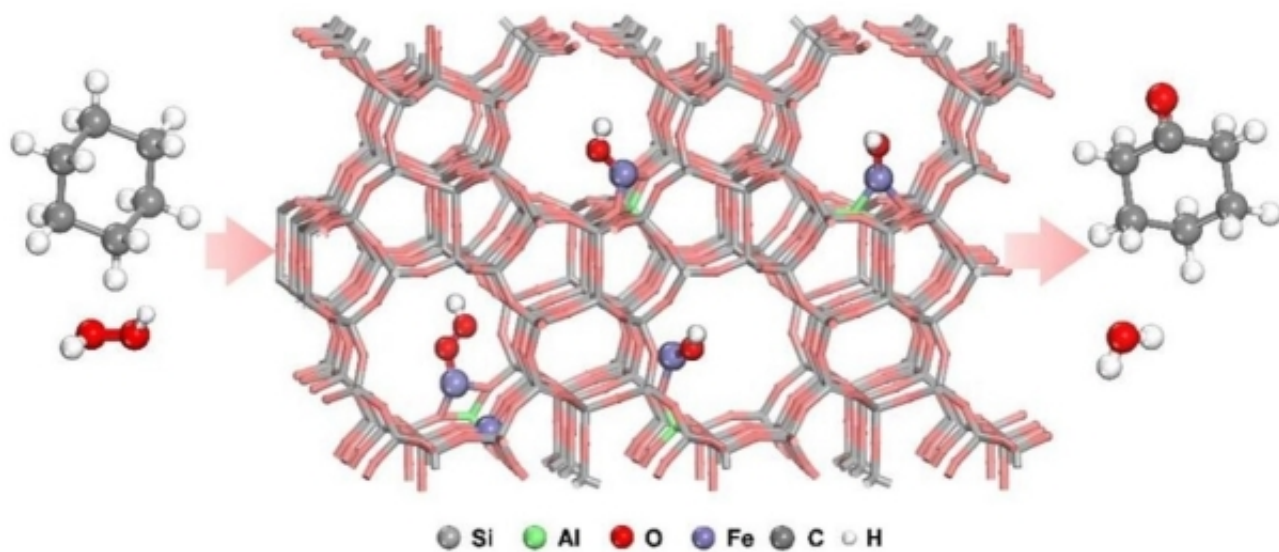
烷烃是化学工业的主要原料，直接将烷烃催化氧化为相应的醇、醛、酮和酸等化工有机产品，具有较高的原子经济性和应用价值。然而，烷烃C-H键十分惰性，温和条件下烷烃高效选择性氧化充满挑战。近期，中国科学院山西煤炭化学研究所副研究员张斌和研究员覃勇团队利用ALD技术，将高分散的FeOx选择性沉积到ZSM-5分子筛缺陷和L-酸位点，不破坏骨架和B酸，可实现环己烷高选择性氧化制环己酮。相关研究成果以The selective deposition of Fe species inside ZSM-5 for the oxidation of cyclohexane to cyclohexanone为题，在线发表在Science China Chemistry上。

与常规多孔载体相比，分子筛具有均一可控的孔道和酸性位结构，能够负载金属，获得兼具金属、酸和择形等多功能的催化剂。控制金属在分子筛上的结构和位置分布非常关键。传统方法不仅难以控制金属在分子筛中的落位和尺寸，而且在制备过程中还会破坏分子筛的孔道骨架和酸性位点，难以最大化发挥分子筛的优势。研究人员在利用原子层沉积（atomic layer deposition, ALD）技术实现分子筛孔口沉积Pt团簇（J Fuel Chem. Tech. 2017, 45, 714）和大孔分子筛孔道内构筑双金属团簇（J. Catal. 2018, 365, 163）的研究基础上，利用ALD技术，将高分散的FeOx选择性沉积在ZSM-5孔道中制得FeOx/ZSM-5催化剂（图1）。该催化剂在双氧水氧化环己烷选择性可达到97%，催化剂活性显著高于文献报道的铁基催化剂（图2a）。

为了在ZSM-5微孔中沉积FeOx，研究人员使用动力学直径小于ZSM-5的微孔孔道的二茂铁作为前驱体，通过自主建设的旋转ALD反应器增加催化剂制备产量，并强化前驱体在微孔中的扩散。研究表明，FeOx选择性沉积在分子筛微孔的缺陷和L-酸位点，B-酸位点得以保持（图2b）。通过改变沉积循环数，可控制FeOx物种的负载量、尺寸和表面电子状态（图2c）。其中，铁负载量随着循环数的提高线性增加。在低铁负载量下，铁物种以Fe-O-Si物种沉积在ZSM-5上；在高负载量时，则生成了FeOx纳米颗粒（图2d）。与FeOx纳米颗粒相比，Fe-O-Si物种具有更高的环己烷氧化制环己酮活性和稳定性。此外，利用这种选择性沉积策略，还可进一步在分子筛中控制其他单金属或多金属的落位，构筑结构清晰的多功能催化剂。

研究工作得到国家自然科学基金、国家杰出青年科学基金、中科院青年创新促进会、国家重点研发项目、山西省自然科学基金的支持。

[论文链接](#)



山西煤化所在分子筛上金属落位控制研究中取得进展

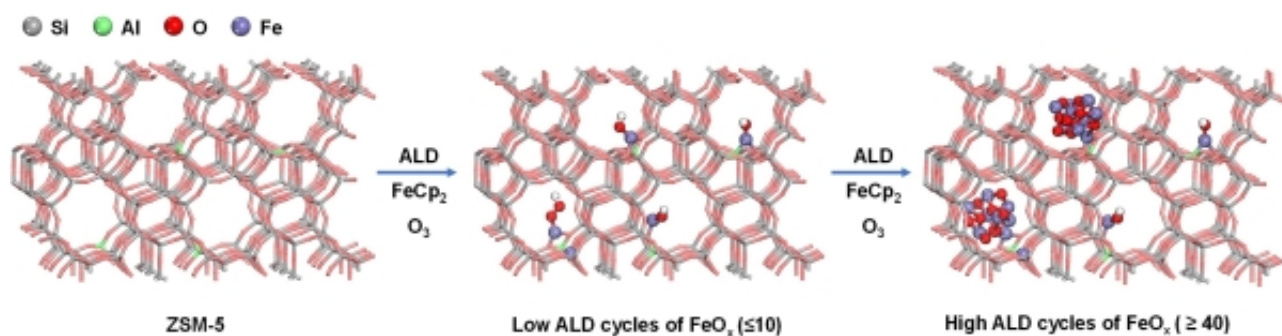


图1.分子筛微孔中选择性沉积FeOx示意图

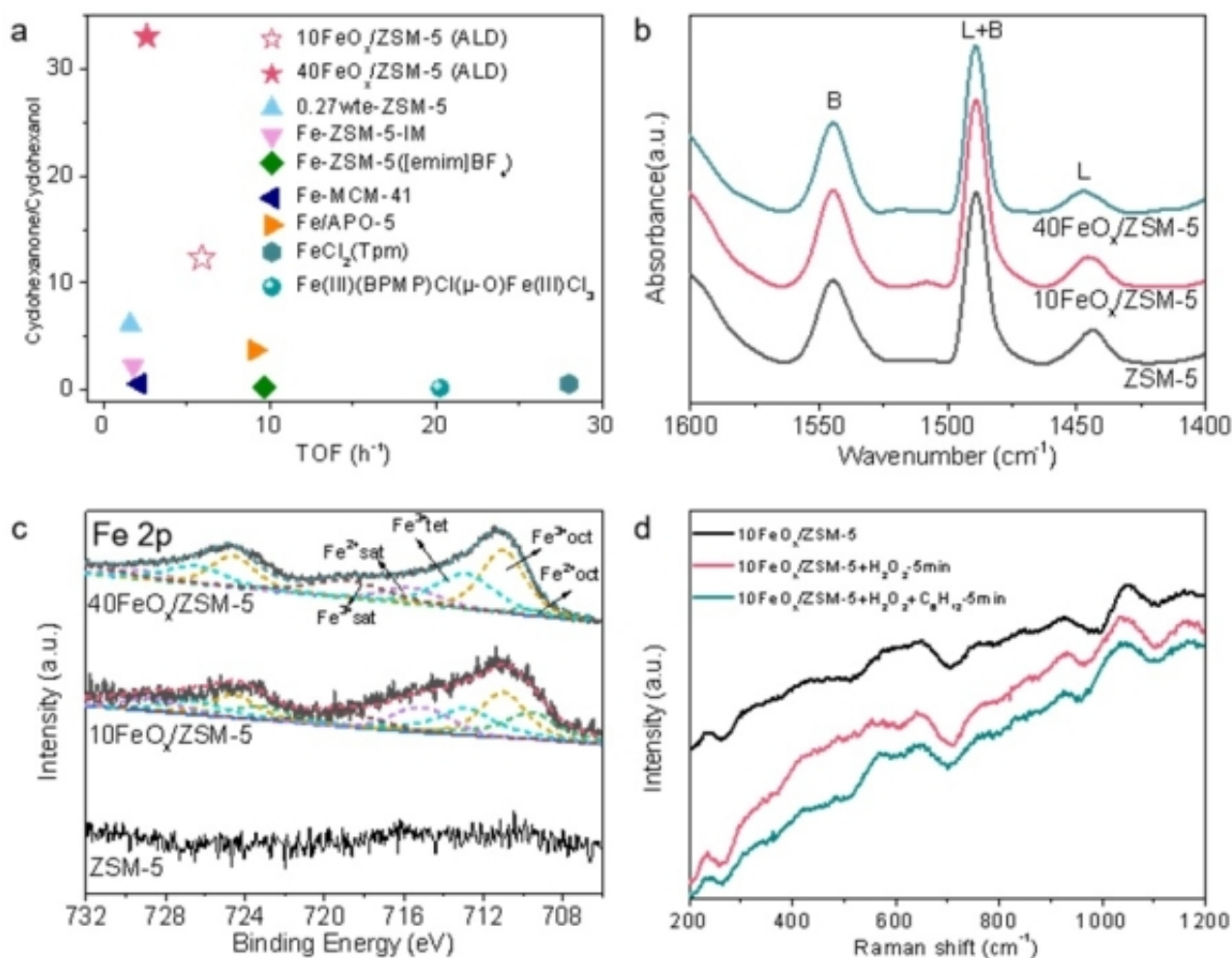


图2.铁基催化剂环己烷氧化反应性能对比；不同铁沉积循环数下 $\text{FeO}_x/\text{ZSM-5}$ 的 (b) 催化剂FTIR和 (c) XPS图谱；(d) $10\text{FeO}_x/\text{ZSM-5}$ 表面的原位Raman图

研究团队单位：山西煤炭化学研究所

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](http://www.iikx.com)转发