

# 紫外拉曼光谱研究 FeAlPO<sub>4</sub>-5 分子筛的合成机理

郭强 1,2, 范峰滔 1,a, 郭美玲 1,2, 冯兆池 1, 李灿 1,b

1中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室, 辽宁大连 116023; 2中国科学院研究生院, 北京 100049

GUO Qiang<sup>1,2</sup>, FAN Fengtao<sup>1,a</sup>, GUO Meiling<sup>1,2</sup>, FENG Zhaochi<sup>1</sup>, LI Can<sup>1,b</sup>

1State Key Laboratory of Catalysis, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, Liaoning, China; 2Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (568KB) [HTML \(1KB\)](#) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

**摘要** 利用紫外共振拉曼光谱和紫外-可见漫反射光谱对不同铁含量的 FeAlPO<sub>4</sub>-5 分子筛进行了研究。结果表明, FeAlPO<sub>4</sub>-5 分子筛的骨架铁有 4 个特征的拉曼谱峰, 分别位于 630, 1060, 1140 和 1210 cm<sup>-1</sup>。当凝胶中 Al/Fe 比小于 380 时, 只有一部分铁离子可以进入分子筛形成四配位的骨架铁物种; 而另一部分则以骨架外六配位的铁物种存在, 其特征拉曼谱峰位于 285 cm<sup>-1</sup>。结合紫外拉曼光谱、紫外-可见漫反射光谱和 X 射线衍射研究了 Al/Fe 比为 760 时 FeAlPO<sub>4</sub>-5 分子筛的晶化过程。结果发现, 在分子筛晶化前, 铁物种以六配位的形式存在, 它为分子筛前体中的一维链状磷酸铝添加了一个惰性端基, 六配位的 Fe-O 键不利于它与其它磷酸铝物种发生反应; 当分子筛开始晶化时, 带有铁离子端基的磷酸铝链与其它磷酸铝链进一步反应形成分子筛骨架。同时, 六配位的铁离子和邻近的磷酸铝物种反应转化为四配位的骨架铁物种。

**关键词:** 铁 AIPO<sub>4</sub>-5 分子筛 紫外拉曼光谱 共振拉曼效应 合成机理

**Abstract:** FeAlPO<sub>4</sub>-5 samples with various iron contents were investigated by UV resonance Raman spectroscopy and UV-Vis spectroscopy. The Raman spectra of FeAlPO<sub>4</sub>-5 show four feature bands related to the framework iron at 630, 1060, 1140, and 1210 cm<sup>-1</sup> when excited by 266 nm laser. It is found that only part of ferric ions could enter into the framework, while the others exist in the extra-framework in the form of six-coordinated state. This kind of iron gives characteristic Raman band at 285 cm<sup>-1</sup>. Combined with UV resonance Raman spectroscopy, UV-Vis spectroscopy, and X-ray diffraction, the crystallization process of FeAlPO<sub>4</sub>-5 (Al/Fe = 760) was studied. It is found that, in the early stages of the crystallization, the iron species exist in the form of six-coordinated state while attached to the end of the 1-dimensional AlPO<sub>4</sub> chain. The Fe-O bonds in the six-coordinated state hamper the crystallization of AlPO<sub>4</sub>. The crystallization of the FeAlPO<sub>4</sub>-5 began when the reaction between the 1-dimensional AlPO<sub>4</sub> chains occurred. At the same time, the six-coordinated ferric ions converted to the tetrahedral iron.

**Keywords:** iron, AIPO<sub>4</sub>-5 zeolite, UV Raman spectroscopy, resonance Raman effect, synthesis mechanism

收稿日期: 2011-08-05; 出版日期: 2012-01-16

引用本文:

郭强, 范峰滔, 郭美玲等. 紫外拉曼光谱研究 FeAlPO<sub>4</sub>-5 分子筛的合成机理[J] 催化学报, 2012,V33(1): 106-113

GUO Qiang, FAN Feng-Tao, GUO Mei-Ling etc .UV Raman Spectroscopic Studies on the Mechanism of FeAlPO<sub>4</sub>-5 Synthesis[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012,V33(1): 106-113

链接本文:

[http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067\(10\)60281-1](http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(10)60281-1) 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I1/106>

## Service

- ▶ 把本文推荐给朋友
- ▶ 加入我的书架
- ▶ 加入引用管理器
- ▶ Email Alert
- ▶ RSS

## 作者相关文章

- ▶ 郭强
- ▶ 范峰滔
- ▶ 郭美玲
- ▶ 冯兆池
- ▶ 李灿

- [1] Wilson S T, Lok B M, Messina C A, Cannan T R, Flanigen E M. J Am Chem Soc, 1982, 104: 1146
- [2] Jia J F, Wen B, Sachtler W M H. J Catal, 2002, 210: 453
- [3] Joyner R, Stockenhuber M. J Phys Chem B, 1999, 103: 5963
- [4] Lobree L J, Hwang I C, Reimer J A, Bell A T. J Catal, 1999, 186: 242
- [5] Marturano P, Drozdova L, Kogelbauer A, Prins R. J Catal, 2000, 192: 236
- [6] Sun K, Xia H, Feng Z, van Santen R, Hensen E, Li C. J Catal, 2008, 254: 383
- [7] Sun K Q, Xia H, Hensen E, van Santen R, Li C. J Catal, 2006, 238: 186
- [8] 赵晓旭, 程党国, 陈丰秋, 詹晓力. 催化学报 (Zhao X X, Cheng D G, Chen F Q, Zhan X L. Chin J Catal), 2010, 31: 68

- [9] Ren T, Yan L, Zhang X M, Suo J S. *Appl Catal A*, 2003, 244: 11
- [10] Raja R, Sankar G, Thomas J M. *J Am Chem Soc*, 1999, 121: 11926
- [11] Dugal M, Sankar G, Raja R, Thomas J M. *Angew Chem, Int Ed*, 2000, 39: 2310 3.0.CO;2-G target="\_blank">>
- [12] Shiju N R, Fiddy S, Sonntag O, Stockenhuber M, Sankar G. *Chem Commun*, 2006: 4955
- [13] Wei W, Moulijn J A, Mul G. *Microporous Mesoporous Mater*, 2008, 112: 193
- [14] Fan W B, Duan R G, Yokoi T, Wu P, Kubota Y, Tatsumi T. *J Am Chem Soc*, 2008, 130: 10150
- [15] Dutta P K, Bronic J. *Zeolites*, 1994, 14: 250
- [16] Dutta P K, Shieh D C, Puri M. *J Phys Chem*, 1987, 91: 2332
- [17] Li C, Xiong G, Xin Q, Liu J K, Ying P L, Feng Z C, Li J, Yang W B, Wang Y Z, Wang G R, Liu X Y, Lin M, Wang X Q, Min E Z. *Angew Chem, Int Ed*, 1999, 38: 2220 3.0.CO;2-G target="\_blank">>
- [18] Li C. *J Catal*, 2003, 216: 203
- [19] Fan F T, Sun K J, Feng Z C, Xia H A, Han B, Lian Y X, Ying P L, Li C. *Chem Eur J*, 2009, 15: 3268
- [20] 范峰滔, 徐倩, 夏海岸, 孙科举, 冯兆池, 李灿. 催化学报 (Fan F T, Xu Q, Xia H A, Sun K J, Feng Zh C, Li C. *Chin J Catal*), 2009, 30: 717
- [21] Fan F T, Feng Z C, Li C. *Acc Chem Res*, 2010, 43: 378
- [22] Fan F T, Feng Z C, Li C. *Chem Soc Rev*, 2010, 39: 4794
- [23] Li C. *Stud Surf Sci Catal*, 2007, 170: 561
- [24] Li C, Xiong G, Liu J K, Ying P L, Xin Q, Feng Z C. *J Phys Chem B*, 2001, 105: 2993
- [25] Fan F T, Feng Z C, Sun K J, Guo M L, Guo Q, Song Y, Li W X, Li C. *Angew Chem, Int Ed*, 2009, 48: 8743
- [26] Sun K J, Fan F T, Xia H A, Feng Z C, Li W X, Li C. *J Phys Chem C*, 2008, 112: 16036
- [27] 孙科举. [博士学位论文]. 大连: 中国科学院大连化学物理研究所(Sun K J. [PHD Dissertation]. Dalian: Dalian Inst Chem Phys, Chin Acad Sci), 2009
- [28] Li L X, Tang X C, Liu H T, Qu Y, Lu Z G. *Electrochim Acta*, 2010, 56: 995
- [29] Grandjean D, Beale A M, Petukhov A V, Weckhuysen B M. *J Am Chem Soc*, 2005, 127: 14454
- [1] 戴友志<sup>1</sup>, 刘进兵<sup>1</sup>, 刘鸿<sup>2</sup>, 王毅<sup>2,a</sup>, 宋树芹<sup>3,b</sup>.P掺杂  $Pd_3Fe_1/C$  催化剂及其电催化氧还原活性[J]. 催化学报, 2011, 32(7): 1287-1291
- [2] 杜玉栋<sup>1</sup>, 郭欣<sup>2</sup>, 陈文凯<sup>1,\*</sup>, 李奕<sup>1</sup>, 章永凡<sup>1</sup>.甲醛在  $FeS_2(100)$  完整与 S-缺陷表面吸附的理论研究[J]. 催化学报, 2011, 32(6): 1046-1050
- [3] 县涛<sup>1,2</sup>, 杨华<sup>1,2</sup>, 戴剑锋<sup>1,2</sup>, 魏智强<sup>1,2</sup>, 马金元<sup>2</sup>, 冯旺军<sup>2</sup>.粒径可控的纳米铁酸铋的制备及其光催化性能[J]. 催化学报, 2011, 32(4): 618-623
- [4] 潘珍燕<sup>1</sup>, 华丽<sup>1</sup>, 乔云香<sup>1</sup>, 杨汉民<sup>2</sup>, 赵秀阁<sup>1</sup>, 冯博<sup>1</sup>, 朱闻闻<sup>1</sup>, 侯震山<sup>1,\*</sup>.纳米磁性颗粒负载的银催化剂催化苯乙烯环氧化反应[J]. 催化学报, 2011, 32(3): 428-435
- [5] 张海, 刘英, 张勋高\*.碳包铁负载纳米钯催化苯甲醇选择氧化[J]. 催化学报, 2011, 32(11): 1693-1701
- [6] 文彦珑, 张月成, 冯成, 张頔, 徐卫华, 赵继全.多金属 ZSM-5 催化剂的制备及其催化氨合合成 2,6-二甲基吡啶[J]. 催化学报, 2011, 32(1): 172-178
- [7] 潘广宏, 孟明, 李新刚.  $BaCo_{1-x}Fe_xO_{3-\delta}$  缺陷钙钛矿  $NO_x$  储存还原催化剂的制备、结构与性能[J]. 催化学报, 2011, 32(1): 135-138
- [8] 秦绍东<sup>1,2</sup>, 张成华<sup>1</sup>, 许健<sup>1</sup>, 吴宝山<sup>1</sup>, 相宏伟<sup>1</sup>, 李永旺<sup>1</sup>.Mo 和 Cu 助剂对  $FeK/SiO_2$  催化剂费托合成性能的影响[J]. 催化学报, 2010, 31(9): 1132-1138
- [9] 贾翠英, 陈鑫, 纪敏.  $MgFe_{0.1}Al_{1.9}O_4$  的合成及其催化乙苯与  $CO_2$  的氧化脱氢反应[J]. 催化学报, 2010, 31(9): 1122-1126
- [10] 定明月<sup>1,2</sup>, 杨勇<sup>2</sup>, 相宏伟<sup>2</sup>, 李永旺<sup>2</sup>.费托合成 Fe基催化剂中铁物相与活性的关系[J]. 催化学报, 2010, 31(9): 1145-1150
- [11] 马腾, 傅强, 姚运喜, 崔义, 谭大力, 翟润生, 包信和.单层  $FeO$  薄膜表面周期性氧缺陷结构的形成[J]. 催化学报, 2010, 31(8): 1013-1018
- [12] 傅天华;高倩倩;刘斐;代华均;寇兴明. Fe-Ni 共掺杂  $ZnO$  的制备及其光催化降解甲基橙活性[J]. 催化学报, 2010, 31(7): 797-802
- [13] 王虎林;杨勇;王洪;青明;相宏伟;李永旺 .Cr 助剂对 Fe 基催化剂结构和费托合成性能的影响[J]. 催化学报, 2010, 31(7): 809-816
- [14] 肖质文;何红运.双杂原子 Fe-V- $\beta$  泡石的合成、表征及催化性能[J]. 催化学报, 2010, 31(6): 705-710
- [15] 张铁明;高鹏飞;高春光;杨恒权;赵永祥.共聚法和嫁接法制备二茂铁杂化介孔材料及其催化性能[J]. 催化学报, 2010, 31(6): 701-704