

不同硅铝比的MCM-22分子筛的气相硅烷化处理

高宁宁^{a,b}, 谢素娟^a, 刘盛林^a, 刘克峰^{a,b}, 李秀杰^a, 徐龙伢^a

a 中国科学院大连化学物理研究所, 辽宁大连 116023;

b 中国科学院大学, 北京 100049

GAO Ningning^{a,b}, XIE Sujuan^a, LIU Shenglin^a, LIU Kefeng^{a,b}, LI Xiujie^a, XU Longya^a

a Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, Liaoning, China;

b University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (509KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

摘要 对不同硅铝比的MCM-22分子筛进行气相硅烷化处理, 并采用X射线衍射、固体核磁、N₂吸附-脱附和甲苯吸附等技术对样品进行了表征. 结果显示, 原料硅铝比为50~100的MCM-22分子筛均可以利用气相硅烷化, 在不脱除骨架铝的基础上, 将Si(OH)₂柱撑结构引入其层间超笼系统, 从而使层间距增大, 孔体积增加; 将密度泛函理论用于计算硅烷化前后的MCM-22分子筛的N₂吸附等温线, 成功得到十元环孔道和超笼体系的比表面积和孔体积, 发现气相硅烷化使MCM-22分子筛超笼体系的比表面积和孔体积增大, 而十元环孔道减小. 另外, 气相硅烷化可有效提高不同硅铝比MCM-22分子筛的甲苯平衡吸附量.

关键词: MWW结构 MCM-22分子筛 硅烷化 层间扩孔 密度泛函理论

Abstract: MCM-22 precursor with various SiO₂/Al₂O₃ molar ratios was treated by vapor-phase silylation. MCM-22 zeolite and its products of vapor-phase silylation were characterized by X-ray diffraction, solid state nuclear magnetic resonance, N₂ adsorption-desorption, and toluene adsorption techniques. The results showed that Si(OH)₂ pillaring structure was formed in the interlayer of MCM-22 with SiO₂/Al₂O₃ molar ratios of 50-100 without extraction of framework aluminum through vapor-phase silylation, resulting in the expansion of interlayer distance and the increase of micropore volume. The N₂ adsorption-desorption isotherms of MCM-22 zeolite before and after silylation were analyzed by the density functional theory, and the specific surface area and pore volume of 10 member ring (10 MR) micropores and those of the supercage system were successfully obtained. As a result of vapor-phase silylation, the specific surface area and pore volume of the supercage system increased, while those of 10 MR micropores decreased. The equilibrium adsorption amount of toluene over MCM-22 zeolite with various SiO₂/Al₂O₃ molar ratios was enhanced after vapor-phase silylation.

Keywords: MWW structure, MCM-22 zeolite, silylation, interlayer expansion, density functional theory

收稿日期: 2012-09-15; 出版日期: 2012-11-19

基金资助:

国家重点基础研究发展计划(973计划, 2009CB623501).

通讯作者 谢素娟 Email: sjxie@dicp.ac.cn; lyxu@dicp.ac.cn

引用本文:


高宁宁, 谢素娟, 刘盛林等. 不同硅铝比的MCM-22分子筛的气相硅烷化处理[J] 催化学报, 2013, V34(3): 612-619


GAO Ningning, XIE Sujuan, LIU Shenglin etc. Vapor-phase silylation of MCM-22 zeolite with various SiO₂/Al₂O₃ molar ratios[J] Chinese Journal of Catalysis, 2013, V34(3): 612-619

链接本文:


http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2013.20932 或 http://www.chxb.cn/CN/Y2013/V34/I3/612

[1] Leonowicz M E, Lawton J A, Lawton S L, Rubin M K. Science, 1994, 264: 1910 

[2] Corma A, Martínez-Soria V, Schnoefeld E. J Catal, 2000, 192: 163 

[3] Corma A, Martínez-Triguero J. J Catal, 1997, 165: 102 

[4] Wu P, Komatsu T, Yashima T. Microporous Mesoporous Mater, 1998, 22: 343 

[5] Zhang Z, Niu X, Liu S, Zhu X, Yu H, Xu L. Catal Commun, 2008, 9: 60 

[6] 谢伟, 刘月明, 汪玲玲, 吴鹏. 催化学报 (Xie W, Liu Y M, Wang L L, Wu P. Chin J Catal), 2010, 31: 502

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

- ▶ 高宁宁
- ▶ 谢素娟
- ▶ 刘盛林
- ▶ 刘克峰
- ▶ 李秀杰
- ▶ 徐龙伢

- [7] Bejblová M, Procházková D, ?ejka J. ChemSusChem, 2009, 2: 486 [cross_ref](#)
- [8] Tsai T-C, Liub S-B, Wang I. Appl Catal A, 1999, 181: 355 [cross_ref](#)
- [9] Liu Sh L, Li X J, Xin W J, Xie S J, Zeng P, Zhang L X, Xu L Y. J Nat Gas Chem, 2010, 19: 482 [cross_ref](#)
- [10] van Miltenburg A, Pawlesa J, Bouzga A M, ?ilková N, ?ejka J, Stöcker M. Top Catal, 2009, 52: 1190 [cross_ref](#)
- [11] van Miltenburg A, Pawlesa J, Bouzga A M, ?ejka J, Stöcker M. Stud Surf Sci Catal, 2008, 174: 937 [cross_ref](#)
- [12] Liu K F, Xie S J, Xu G L, Li Y N, Liu S L, Xu L Y. Appl Catal A, 2010, 383: 102 [cross_ref](#)
- [13] 刘盛林, 郭晓野, 张泽凯, 谢素娟, 戴洪义, 徐龙伢. 石油学报 (Liu Sh L, Guo X Y, Zhang Z K, Xie S J, Dai H Y, Xu L Y. Acta Petrol Sin), 2008, 24 (suppl): 88
- [14] Roth W J, Kresge C T, Vartuli J C, Leonowicz M E, Fung A S, McCullen S B. Stud Surf Sci Catal, 1995, 94: 301 [cross_ref](#)
- [15] 王保玉, 吴建梅, 李牛, 袁忠勇, 项寿鹤. 催化学报 (Wang B Y, Wu J M, Li N, Yuan Zh Y, Xiang Sh H. Chin J Catal), 2007, 28: 398 [cross_ref](#)
- [16] He Y J, Nivarthi G S, Eder F, Seshan K, Lercher J A. Microporous Mesoporous Mater, 1995, 25: 207
- [17] Barth J O, Kornatowski J, Lercher J A. J Mater Chem, 2002, 12: 369 [cross_ref](#)
- [18] Corma A, Fornés V, Martínez-Triguero J, Pergher S B. J Catal, 1999, 186: 57 [cross_ref](#)
- [19] Wu P, Nuntasri D, Ruan J, Liu Y, He M, Fan W, Terasaki O, Tatsumi T. J Phys Chem B, 2004, 108: 19126 [cross_ref](#)
- [20] Corma A, Fornés V, Pergher S B, Maesen T L M, Buglass J G. Nature, 1998, 396: 353 [cross_ref](#)
- [21] Ogino I, Nigra M M, Hwang S J, Ha J M, Rea T, Zones S I, Katz A. J Am Chem Soc, 2011, 133: 3288 [cross_ref](#)
- [22] Wu P, Ruan J F, Wang L L, Wu L L, Wang Y, Liu Y M, Fan W B, He M Y, Terasaki O, Tatsumi T. J Am Chem Soc, 2008, 130: 8178 [cross_ref](#)
- [23] Inagaki S, Tatsumi T. Chem Commun, 2009: 2583 [cross_ref](#)
- [24] Ikeda T, Akiyama Y, Oumi Y, Kawai A, Mizukami F. Angew Chem, Int Ed, 2004, 43: 4892 [cross_ref](#)
- [25] Maheshwari S, Jordan E, Kumar S, Bates F S, Lee P R, Shantz D F, Tsapatsis M. J Am Chem Soc, 2008, 130: 1507 [cross_ref](#)
- [26] Wang L L, Wang Y, Liu Y M, Wu H H, Li X H, He M Y, Wu P. J Mater Chem, 2009, 19: 8594 [cross_ref](#)
- [27] Inagaki S, Imai H, Tsujiuchi S, Yakushiji H, Yokoi T, Tatsumi T. Microporous Mesoporous Mater, 2011, 142: 354 [cross_ref](#)
- [28] Kolodziejcki W, Zicovich-Wilson C, Corell C, Pérez-Pariente J, Corma A. J Phys Chem, 1995, 99: 7002 [cross_ref](#)
- [29] Lawton S L, Fung A S, Kennedy G J, Alemany L B, Chang C D, Hatzikos G H, Lissy D N, Rubin M K, Timken H C, Steuernagel S, Woessner D E. J Phys Chem, 1996, 100: 3788 [cross_ref](#)
- [30] Brunauer S, Deming L S, Deming W E, Telle E. J Am Chem Soc, 1940, 62: 1723 [cross_ref](#)
- [31] Olivier J P, Occelli M L. J Phys Chem B, 2001, 105: 623 [cross_ref](#)
- [32] Olivier J P, Occelli M L. Microporous Mesoporous Mater, 2003, 57: 291 [cross_ref](#)

- [1] 张文飞, 梁金花, 刘艳秋, 孙守飞, 任晓乾, 姜岷. 酸碱双功能MgO/HMCM-22催化剂上Knoevenagel缩合反应[J]. 催化学报, 2013,34(3): 559-566
- [2] 尹伟, 林花香, 章永凡, 黄昕, 陈文凯. 铜族金属与完整及氮掺杂石墨烯的相互作用[J]. 催化学报, 2012,33(9): 1578-1585
- [3] 顾向奎, 丁戊辰, 黄传奇, 李微雪. Pd 掺杂对 ZnO(1120) 面上水解离的影响[J]. 催化学报, 2012,33(8): 1427-1431
- [4] 夏明玉, 曹晓霞, 倪哲明, 施炜, 付晓微. Cu(111) 面上糠醇加氢生成 2-甲基呋喃的反应机理[J]. 催化学报, 2012,33(6): 1000-1006
- [5] 孟庆森, 申勇立, 徐晶, 巩金龙. Au(111) 表面上乙醇选择性氧化反应机理的密度泛函理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(3): 407-415
- [6] 张岩, 黄翠英, 王俊芳, 孙琪, 王长生. Ti/SiO₂ 催化 H₂O₂ 氧化苯甲醇制苯甲醛反应机理的理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(2): 360-366
- [7] 满梅玲, 章家芳, 李璐, 林花香, 李奕, 陈文凯. N₂O 在 Cu/t-ZrO₂(101) 表面的吸附与解离[J]. 催化学报, 2012,33(11): 1850-1856
- [8] 马秀芳, 赵永慧, 苏海燕, 李微雪. Rh(111) 及 Rh@Cu(111) 表面乙烯氢甲酰化反应选择性的理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(10): 1706-1711
- [9] 苗海霞, 薛招腾, 马静红, 张元春, 李瑞丰. 纳米 ZSM-5 沸石对芳烃苯基化反应的催化性能[J]. 催化学报, 2012,33(1): 183-191
- [10] 李冬梅, 刘建勇. 细胞色素 P450 催化 4-氯-N-环丙基-N-异丙基苯胺 C_α-H 羟基化反应机理的理论研究[J]. 催化学报, 2011,32(7): 1208-1213
- [11] 任珏, 周丹红, 李惊鸿, 曹亮, 邢双英. 密度泛函理论研究分子筛相邻双酸性位对乙烯质子化反应的影响[J]. 催化学报, 2011,32(6): 1056-1062
- [12] 杜玉栋, 郭欣, 陈文凯, 李奕, 章永凡. 甲醛在 FeS₂(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
- [13] 王德强, 张一波, 肖德海, 杨向光. 硅烷化 TS-1 对环己烷均相氧化反应的促进作用[J]. 催化学报, 2011,32(5): 723-726
- [14] 吕永康 1, 郝瑞鑫 1, 任瑞鹏 1,2. 在预吸附氧原子的 Ag(100) 面上氯乙烷环氧化反应的密度泛函理论研究[J]. 催化学报, 2011,32(3): 451-455
- [15] 游奎一, 尹笃林, 毛丽秋, 刘平乐, 罗和安. 钠灯下 α -蒎烯光敏氧化反应中区域选择性的催化调控[J]. 催化学报, 2011,32(10): 1610-1616

