

离子液体功能化有序介孔 SBA-15 孔壁定域化磷钨酸催化活性中心构建及其催化性能研究

刘成¹, 谭蓉^{1,b}, 孙文庆¹, 银董红^{1,2,a}

¹湖南师范大学精细催化合成研究所, 湖南长沙 410081; ²湖南中烟工业有限责任公司技术研发中心, 湖南长沙 410014

LIU Cheng¹, TAN Rong^{1,b}, SUN Wenqing¹, YIN Donghong^{1,2,a}

¹Institute of Fine Catalysis and Synthesis, Hunan Normal University, Changsha 410081, Hunan, China; ²Research and Development Center, China Tobacco Hunan Industrial Corporation, Changsha 410014, Hunan, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (857KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

摘要 采用溶胶-凝胶法合成了一种桥键嵌入型双咪唑离子液体功能化介孔硅基材料 (Bis-PlmBr-PMO-SBA-15), 然后离子交换将 Keggin 型磷钨酸负载于其上, 制备了 PW-Bis-PlmBr-PMO-SBA-15 催化剂, 并运用 X 射线衍射、N₂ 吸附-脱附、透射电子显微镜、傅里叶变换红外光谱和热重分析等手段对其进行表征. 结果表明, 该催化剂具有 SBA-15 分子筛的有序六方孔道结构, 且负载后的磷钨酸阴离子仍保持其完整的 Keggin 结构. 在以水为溶剂, 30% H₂O₂ 为氧化剂的苯甲醇氧化反应中, 该催化剂表现出比均相的或负载于 SBA-15 表面的 Keggin 型 HPW 更高的催化活性, 苯甲醇转化率和苯甲醛选择性分别可达 95% 和 94%. 离子液体的咪唑阳离子可调节磷钨酸阴离子的氧化-还原性能, 从而有利于提高催化剂的催化活性.

关键词: Keggin 型 12-磷钨酸 离子液体 周期性介孔有机硅 SBA-15 分子筛 苯甲醇 催化氧化 过氧化氢

Abstract: A functionalized periodic mesoporous organosilica (PMO), Bis-PlmBr-PMO-SBA-15, incorporated with bridging bis-imidazolium ionic liquid moieties was synthesized via a sol-gel procedure. Keggin-type 12-phosphotungstic acid (H₃PW₁₂O₄₀·xH₂O) was immobilized onto Bis-PlmBr-PMO-SBA-15 by the way of anion-exchange, which provided the mesoporous organosilica-supported Keggin-type 12-tungstophosphate catalyst (PW-Bis-PlmBr-PMO-SBA-15). X-ray diffraction, N₂ adsorption-desorption, transmission electron microscopy, Fourier transform infrared spectroscopy, and thermal analysis results showed that both Bis-PlmBr-PMO-SBA-15 and PW-Bis-PlmBr-PMO-SBA-15 maintained the typical characteristics of the mesoporous material, and the Keggin-structure of the 12-phosphotungstate anion was intact after immobilization. The catalytic performance of PW-Bis-PlmBr-PMO-SBA-15 in the selective oxidation of benzyl alcohol by 30% H₂O₂ was investigated. The PW-Bis-PlmBr-PMO-SBA-15 showed higher catalytic activity than bulk HPW or siliceous SBA-15-supported Keggin-type 12-tungstophosphate catalyst (HPW/SBA-15), the conversion of benzyl alcohol and the selectivity to benzaldehyde were as high as 95% and 94%, respectively. The bis-imidazolium cations were thought to mediate the redox behavior of the Keggin PW₁₂ anions, which in turns enhanced the activity and stability of the catalyst.

Keywords: Keggin-type 12-phosphotungstic acid, ionic liquid, periodic mesoporous organosilica, SBA-15 zeolite, benzyl alcohol, catalytic oxidation, hydrogen peroxide

收稿日期: 2011-12-29; 出版日期: 2012-03-26


引用本文:


刘成, 谭蓉, 孙文庆等. 离子液体功能化有序介孔 SBA-15 孔壁定域化磷钨酸催化活性中心构建及其催化性能研究[J] 催化学报, 2012, V33(6): 1032-1040

LIU Cheng, TAN Rong, SUN Wen-Qing etc. Preparation and Catalytic Performance of Phosphotungstic Acid Active Sites Supported on Periodic Mesoporous Organosilica of SBA-15[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012, V33(6): 1032-1040


链接本文:

http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2012.11259 或 http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I6/1032


[1] Yadav G D, Mistry C K. J Mol Catal A, 2001, 172: 135 


[2] Holum J R. J Org Chem, 1961, 26: 4814 

[3] Sheldon R A, Arends I W C E, Isabel U. Green Chemistry and Catalysis. Weinheim: Wiley-VCH, 2007. 421

[4] Zauche T H, Espenson J H. Inorg Chem, 1998, 37: 6827 

[5] 庄大英, 金勇, 喻宁亚, 秦亮生, 刘建福, 银董红, 杨翠清. 催化学报 (Zhuang D Y, Jin Y, Yu N Y, Qin L Sh, Liu J F, Yin D H, Yang C Q. Chin J Catal), 2009, 30: 896

[6] Lou L L, Yu K, Ding F, Peng X J, Dong M M, Zhang C, Liu S X. J Catal, 2007, 249: 102 

[7] Bigi F, Corradini A, Quarantelli C, Sartori G. J Catal, 2007, 250: 222 

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

- ▶ 刘成
- ▶ 谭蓉
- ▶ 孙文庆
- ▶ 银董红

- [8] Leng Y, Wang J, Zhu D, Zhang M, Zhao P, Long Z, Huang J. Green Chem, 2011, 13: 1636 
- [9] Zhang Sh J, Zhao G D, Gao Sh, Xi Z W, Xu J. J Mol Catal A, 2008, 289: 22 
- [10] Zhao W, Zhang Y, Ma B, Ding Y, Qiu W. Catal Commun, 2010, 11: 527 
- [11] Kamala P, Pandurangan A. Catal Commun, 2008, 9: 2231 
- [12] Xi Z W, Zhou N, Sun Y, Li K L. Science, 2001, 292: 1139 
- [13] Li K L, Zhou N, Gao Sh, Cao G Y, Xi Z W. Oxid Commun, 2004, 27: 827
- [14] Zhang Sh J, Gao Sh, Xi Z W, Xu J. Catal Commun, 2007, 8: 531 
- [15] 张生军, 赵公大, 高爽, 奚祖威, 徐杰. 分子催化 (Zhang Sh J, Zhao G D, Gao Sh, Xi Z W, Xu J. J Mol Catal (China)), 2007, 21: 499
- [16] Lee B, Im H J, Luo H M, Hagaman E W, Dai S. Langmuir, 2005, 21: 5372 
- [17] Liu Ch, Tan R, Yu N Y, Yin D H. Microporous Mesoporous Mater, 2010, 131: 162 
- [18] 袁程远, 陈静. 催化学报 (Yuan Ch Y, Chen J. Chin J Catal), 2011, 37: 1191
- [19] 高鹏飞, 张铁明, 周媛, 赵永祥. 催化学报 (Gao P F, Zhang T M, Zhou Y, Zhao Y X. Chin J Catal), 2011, 32: 166
- [20] Jermy B R, Pandurangan A. Appl Catal A, 2005, 295: 185 
- [21] Ghanbari-Siahkali A, Philippou A, Dwyer J, Anderson M W. Appl Catal A, 2000, 192: 57 
- [22] Jalil P A, Al-Daous M A, Al-Arfaj A R A, Al-Amer A M, Beltramini J, Barri S A I. Appl Catal A, 2001, 207: 159 
- [23] Wang G J, Liu G Q, Xu M X, Yang Z X, Liu Z W, Liu Y W, Chen S F, Wang L. Appl Surf Sci, 2008, 255: 2632 
- [24] Liu J, Yang J, Yang Q H, Wang G, Li Y. Adv Funct Mater, 2005, 15: 1297 
- [25] Llusar M, Monrós G, Roux C, Pozzo J L, Sanchez C. J Mater Chem, 2003, 13: 2505 
- [26] Marme F, Coudrier G, Vedrine J C. Microporous Mesoporous Mater, 1998, 22: 151 
- [27] Blasco T, Corma A, Martnez A. Martínez-Escolano P. J Catal, 1998, 177: 306 
- [28] Chiang M H, Dzielawa J A, Dietz M L, Antonio M R. J Electroanal Chem, 2004, 567: 77 
- [1] 王维海, 李钢, 刘丽萍, 陈永英. 干胶法制备钛硅沸石及其催化性能[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1236-1241
- [2] 毕艳红, 王朝宇, 茅燕勇, 郑尚永, 张海江, 时号. 离子液体对 β -糖苷酶催化合成红景天苷的影响[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1161-1165
- [3] 杨志旺, 洪伟, 王佳, 陈丽娜, 贾娜, 赵磊, 马恒昌, 雷自强. $\text{SO}_4^{2-}/\text{SnO}_2/\text{SBA-15}$ 固体酸催化剂的制备及其在环酮缩合反应中的应用[J]. 催化学报, 2012,33(5): 827-832
- [4] 代新, 高保娇, 雷海波. 交联聚苯乙烯微球固载的双齿席夫碱型氧钒(IV)配合物催化分子氧氧化苯甲醇[J]. 催化学报, 2012,33(5): 885-890
- [5] 苗永霞, 杨新丽, 郭丽红. Mo-HMS 的制备及其催化丙烯酸相环氧化反应性能[J]. 催化学报, 2012,33(4): 711-716
- [6] 张硕, 邓秀娟, 申璐, 刘月明. TS-1/ H_2O_2 体系催化香茅醛环化反应[J]. 催化学报, 2012,33(4): 723-729
- [7] 宋红兵, 于英豪, 陈学伟, 李雪辉, 奚红霞. 脯氨酸离子液体催化 Knoevenagel 缩合反应[J]. 催化学报, 2012,33(4): 666-669
- [8] 徐国津, 魏赛丽, 樊颖果, 朱丽波, 唐玉海, 郑元锁. 聚甲基丙烯酸羟乙酯负载手性 Mn(III)salen 配合物催化 α -甲基苯乙烯的不对称环氧化反应[J]. 催化学报, 2012,33(3): 473-477
- [9] 曾艳, 王艳华, 徐贻成, 宋颖, 赵家骐, 蒋景阳, 金子林. 温控离子液体/有机两相体系中纳米 Rh 催化烯炔氢甲酰化反应[J]. 催化学报, 2012,33(3): 402-406
- [10] 张敏, 朱万春, 刘钢, 张秀艳, 祖艳红, 张文祥, 闫文付, 贾明君. 以原位形成的磷酸铝骨架为模板制备纳米孔炭[J]. 催化学报, 2012,33(3): 465-472
- [11] 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
- [12] 宋明娟, 邹成龙, 牛国兴, 赵东元. (NH₄)₂SiF₆ 预处理改善 SBA-15 介孔材料的水热稳定性[J]. 催化学报, 2012,33(1): 140-151
- [13] 祝贞科, 谭蓉, 孙文庆, 银董红. 分子印迹聚合物负载纳米金催化剂的制备及其底物识别性能[J]. 催化学报, 2011,32(9): 1508-1512
- [14] 邓秀娟, 申璐, 张硕, 刘月明. TS-1/ H_2O_2 体系催化二乙胺氧化竞争反应[J]. 催化学报, 2011,32(9): 1550-1556
- [15] 朱海燕, 周朝华, 马兰, 程振兴, 沈俭一. SBA-15 的孔壁碳膜修饰对钴基催化剂结构与催化性能的影响[J]. 催化学报, 2011,32(8): 1370-1375