

## 碳包铁负载纳米钯催化苯甲醇选择氧化

张海, 刘英, 张勋高\*

武汉大学化学与分子科学学院, 湖北武汉 430072

ZHANG Hai, LIU Ying, ZHANG Xungao\*

College of Chemistry and Molecular Sciences, Wuhan University, Wuhan 430072, Hubei, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (638KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

**摘要** 以碳包铁纳米晶 (Fe@C) 为载体, 采用浸渍法制备了一种磁可分离的 Pd/Fe@C 催化剂, 并运用 X 射线荧光光谱、透射电镜、X 射线衍射和 X 射线光电子能谱对催化剂进行了表征. 结果表明, 纳米 Pd 颗粒的粒径分布在 4~10 nm, 平均粒径约为 7 nm, Pd 物种以 Pd<sup>0</sup> 为主, 其 Pd 3d<sub>5/2</sub> 结合能为 335.6 eV. 将该催化剂应用于苯甲醇选择性氧化反应, 考察了催化剂用量、溶剂、温度对反应的影响以及催化剂的循环使用性能. 结果表明, 催化剂可使苯甲醇高选择性生成苯甲醛, 在催化剂用量 (摩尔分数) 为 0.5%、乙腈为溶剂、80 °C 常压 O<sub>2</sub> 条件下, 苯甲醇的氧化反应效果最佳 (苯甲醇转化率为 96%, 苯甲醛选择性为 95%). 催化剂易于磁分离和回收, 循环使用 4 次仍保持较好的催化性能.

**关键词:** 碳包铁纳米晶 钯催化剂 苯甲醇 选择性氧化 苯甲醛

**Abstract:** A magnetic separable Pd nanoparticles supported on carbon-coated iron nanocrystals (Pd/Fe@C) catalyst was prepared by an impregnation method and characterized by X-ray fluorescence spectroscopy, transmission electron microscopy, X-ray diffraction, and X-ray photoelectron spectroscopy. The size of the Pd nanoparticles ranged from 4 nm to 10 nm and the average size was about 7 nm. The principal component of the Pd nanoparticles was determined to be Pd<sup>0</sup> with Pd 3d<sub>5/2</sub> binding energy at 335.6 eV. The as-made catalyst was applied to the selective oxidation of benzyl alcohol. The effects on the oxidation of benzyl alcohol were investigated in detail, including the amount of catalyst, the solvent, the temperature, and the catalytic activity of recycling. The results indicated that benzaldehyde could be selectively synthesized from benzyl alcohol upon catalysis by Pd/Fe@C. The conversion of benzyl alcohol was 96% and the selectivity for benzaldehyde was 95% when using 0.5% Pd/Fe@C catalyst with acetonitrile as a solvent under an oxygen atmosphere at 80 °C. The catalyst can be easily separated magnetically and high catalytic activity was retained after recycling the catalyst four times.

**Keywords:** carbon-coated iron nanocrystal, palladium catalyst, benzyl alcohol, selective oxidation, benzaldehyde

收稿日期: 2011-07-19; 出版日期: 2011-10-09

引用本文:


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, V32(11): 1693-1701


ZHANG Hai, LIU Ying, ZHANG Xun-Gao. Selective Oxidation of Benzyl Alcohol Catalyzed by Palladium Nanoparticles Supported on Carbon-Coated Iron Nanocrystals[J]. Chinese Journal of Catalysis, 2011, V32(11): 1693-1701

链接本文:

http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(10)60273-2 或 http://www.chxb.cn/CN/Y2011/V32/I11/1693


[1] 彬, 李游, 王志飞, 何农跃. 催化学报(Shen B, Li Y, Wang Zh F, He N Y. Chin J Catal), 2007, 28: 509

[2] Iamaki A R, Khder A E R, Abdelsayed V, El-Shall M S, Gupton B F. J Catal, 2011, 279: 1 

[3] Liu H Z, Jiang T, Han B X, Liang S G, Zhou Y X. Science, 2009, 326: 1250 

[4] Won M S, Kim N, Park C M, Lee J S, Kang K Y, Park J. Org Lett, 2005, 7: 1077 

[5] Ackett S E J, Brydson R M, Gass M H, Harvey I, Newman A D, Wilson K, Lee A F. Angew Chem, Int Ed, 2007, 46: 8593 

[6] Otokura K, Fujita N, Mori K, Mizugaki T, Ebitani K, Kaneda K. Tetrahedron Lett, 2005, 46: 5507 

[7] Ori K, Hara T, Mizugaki T, Ebitani K, Kaneda K. J Am Chem Soc, 2004, 126: 10657 

[8] Shen Y T, Guo Z, Chen T, Yang Y H. J Catal, 2010, 275: 11 

### 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

- ▶ 张海
- ▶ 刘英
- ▶ 张勋高

- [9] arimi B, Abedi S, Clark J H, Budarin V. *Angew Chem, Int Ed*, 2006, 45: 4776 
- [10] Feng B, Hou Z S, Yang H M, Wang X R, Hu Y, Li H, Qiao Y X, Zhao X G, Huang Q F. *Langmuir*, 2010, 26: 2505 
- [11] Hou W B, Dehm N A, Scott R W J. *J Catal*, 2008, 253: 22 
- [12] 杜建平, 宋昌, 宋金玲, 赵江红, 朱珍平. *燃料化学学报* (Du J P, Song Ch, Song J L, Zhao J H, Zhu Zh P. *J Fuel Chem Technol*), 2009, 37: 468 
- [13] 黄钟斌, 严新焕, 江玲超, 蒋虹. *催化学报* (Huang Zh B, Yan X H, Jiang L Ch, Jiang H. *Chin J Catal*), 2010, 31: 90
- [14] Jiang M, Zhang X G, Liu Y, Hao G M, Lin J. *Mater Sci Eng B*, 2001, 87: 66 
- [15] Tsang S C, Caps V, Paraskevas I, Chadwick D, Thompsett D. *Angew Chem, Int Ed*, 2004, 43: 5645 
- [16] Teranishi T, Miyake M. *Chem Mater*, 1998, 10: 594 
- [17] 程传焯. *表面物理化学*. 北京: 科学技术文献出版社 (Cheng Ch X. *Physical Chemistry of Surfaces*. Beijing: Sci Technol Literature Press), 1995. 354
- [18] Lee A F, Chang Z, Ellis P, Hackett S F J, Wilson K. *J Phys Chem C*, 2007, 111: 18844 
- [19] Ferri D, Mondelli C, Krumeich F, Baiker A. *J Phys Chem B*, 2006, 110: 22982 
- [20] Borasio M, de la Fuente O R, Rupprechter G, Freund H-J. *J Phys Chem B*, 2005, 109: 17791 
- [21] Fu X Y, Wang Y, Wu N Z, Gui L L, Tang Y Q. *J Colloid Interf Sci*, 2001, 243: 326 
- [22] Kereszegi C, Ferri D, Malat T, Baiker A. *J Catal*, 2005, 234: 64 
- [23] Meier D M, Urakawa A, Baiker A. *J Phys Chem C*, 2009, 113: 21849 
- [24] Mallat T, Baiker A. *Chem Rev*, 2004, 104: 3037 
- [25] Mondelli C, Ferri D, Grunwaldt J-D, Krumeich F, Mangold S, Psaro R, Baiker A. *J Catal*, 2007, 252: 77 
- [26] Steinhoff B A, Stahl S S. *J Am Chem Soc*, 2006, 128: 4348 
- [27] 刘成, 谭蓉, 银董红, 喻亚宁, 周裕旭. *催化学报* (Liu Ch, Tan R, Yin D H, Yu Y N, Zhou Y X. *Chin J Catal*), 2010, 31: 1369
- [1] 张岩, 黄翠英, 王俊芳, 孙琪, 王长生.  $\text{Ti}/\text{SiO}_2$  催化  $\text{H}_2\text{O}_2$  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
- [2] 祝贞科 1, 谭蓉 1,a, 孙文庆 1, 银董红 1,2,b.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
- [3] 余育生, 孙伟华, 詹瑛瑛, 林性贻, 郑起\*.  $\text{Au}/\text{Cu}_x\text{Mn}_y\text{O}_z$  催化剂的制备、表征及其 CO 消除性能[J]. *催化学报*, 2011,32(7): 1220-1226
- [4] 袁程远1,2, 陈静1,\*.介孔硅担载磷钨杂多酸催化剂的制备及其对环戊烯氧化反应的催化性能[J]. *催化学报*, 2011,32(7): 1191-1198
- [5] 方雯 1,2, 葛庆杰 1,a, 俞佳枫 1,2, 徐恒泳 1,b.组合催化剂上丙烷选择氧化制丙烯酸[J]. *催化学报*, 2011,32(6): 1022-1026
- [6] 于涛, 李莹, 姚成福, 吴海虹, 刘月明, 吴鹏.一种高效可循环的有机介孔树脂负载的 N-杂卡宾络合钯催化剂催化的 Sonogashira 反应[J]. *催化学报*, 2011,32(11): 1712-1718
- [7] 刘钢 1, 张秀艳 1, 徐跃 2, 张敏 1, 贾明君 1, 张文祥 1, 吴通好 1.纳米孔炭负载 MnOx 催化剂上苯甲醇氧化反应性能[J]. *催化学报*, 2010,26(8): 1025-1030
- [8] 盛学斌;马红;李德财;何静;徐杰.固体磺酸促进亚硝酸异戊酯催化氧化苯甲醇反应[J]. *催化学报*, 2010,31(7): 822-826
- [9] 沈加春;郭建平;孙艳美;唐斌艳;陈小华;尹笃林.SBA-15 固载离子液体功能化脯氨酸的制备及其催化 Knoevenagel 缩合反应[J]. *催化学报*, 2010,31(7): 827-832
- [10] 肖质文;何红运.双杂原子 Fe-V- $\beta$  沸石的合成、表征及催化性能[J]. *催化学报*, 2010,31(6): 705-710
- [11] 刘成 1, 谭蓉 1, 银董红 1,2, 喻亚宁 1, 周裕旭 1.Pd/PMO-SBA-15 催化剂催化苯甲醇选择氧化反应性能[J]. *催化学报*, 2010,31(11): 1369-1373
- [12] 赵婧;高保娇;高学超.在聚合物微球 GMA/MMA 表面同步合成与固载卟啉及固载化金属卟啉的催化氧化性能[J]. *催化学报*, 2010,31(1): 126-132
- [13] 庄大英;金勇;喻宁亚;秦亮生;刘建福;银董红;杨翠清.有机官能化介孔硅基材料负载纳米金催化剂的制备及其催化性能[J]. *催化学报*, 2009,30(9): 896-900
- [14] 王心亮;梁鑫淼.温和条件下 $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3/4\text{-OH-TEMPO}$ 催化需氧化醇制备羰基化合物[J]. *催化学报*, 2008,29(9): 935-939
- [15] 张建国;郑景省;张纯希;王树东.Pt/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ 涂层金属蜂窝催化剂的制备及其CO选择性氧化催化性能[J]. *催化学报*, 2008,29(5): 421-425