

Pt羰基簇合物在NaY内的合成机理

李光进; 郭燮贤; 藤本俊幸; 市川胜

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, 大连 116023; 日本北海道大学触媒化学研究中心, 札幌 060, 日本

摘要:

利用IR, EXAFS, ^{13}C 同位素交换反应及与NO作用等手段研究了Pt羰基簇合物 $[\text{Pt}_3(\text{CO})_6]_{n=3,4}$ 在NaY分子筛超笼内的合成机理. 在氧化样品Pt $^{2+}$ /NaY上300—373 K的还原羰基化过程中, 首先Pt $^{2+}$ 与CO反应生成PtO(CO)物种(波数 $\sigma(\text{CO})=2110\text{ cm}^{-1}$), 然后聚集成“Pt $_3(\text{CO})_6$ ”(波数 $\sigma(\text{CO})=2112, 1896$ 和 1841 cm^{-1}), 最后生成深绿色的Pt羰基簇合物Pt $_{12}(\text{CO})_{24}$ 在NaY(波数 $\sigma(\text{CO})=2080, 1824\text{ cm}^{-1}$). “Pt $_3(\text{CO})_6$ ”的羰基在室温下能迅速地与 ^{13}C CO发生交换, 而 $[\text{Pt}_3(\text{CO})_6]_{n=3,4}$ 的羰基与 ^{13}C CO的同位素交换即使在343 K也进行得很慢, 室温下, NO能逐步破坏Pt羰基簇合物的层间和层内Pt—Pt键, 得到中间物种“Pt $_3(\text{CO})_6$ ”和PtO(CO), 同时在气相产生CO $_2$ 和N $_2\text{O}$. 而由上述两中间物种出发, 300—353 K温度下, 在CO气氛中的还原羰基化又能可逆地得到原羰基簇合物.

关键词: 分子筛 铂 羰基簇合物 ^{13}C CO交换反应 EXAFS

收稿日期 1993-04-03 修回日期 1993-08-26 网络版发布日期 1994-08-15

通讯作者: 李光进 Email:

本刊中的类似文章

1. 胡伟; 罗晴; 李申慧; 申万岭; 岳勇; 邓风. 用固体核磁共振谱定量研究脱铝HY分子筛中碱“诱导”的Brønsted酸性位[J]. 物理化学学报, 2006, 22(10): 1233-1237
2. 王必勋; 伏羲路; 方书农. Cu-ZSM-5分子筛上 $[\text{Cu}-\text{O}-\text{Cu}]^{2+}$ 物种的原位红外光谱研究[J]. 物理化学学报, 1995, 11(11): 974-978
3. 关莉莉; 段连运; 谢有畅. Ca^{2+} 交换的几种分子筛的氮氢分离性能[J]. 物理化学学报, 2002, 18(11): 998-1004
4. 姚云峰; 张迈生; 杨燕生. 纳米介孔分子筛MCM-41的微波辐射合成法 [J]. 物理化学学报, 2001, 17(12): 1117-1121
5. 巩雁军; 李志宏; 吴东; 孙予罕. 有机官能化MSU-x孔分子筛的界面特征[J]. 物理化学学报, 2001, 17(01): 1-4
6. 刘振林; 孟明; 伏羲路; 姜明; 胡天斗; 谢亚宁; 刘涛. $\gamma\text{-Mo}_2\text{N}$ 和分子筛负载的钼氮化物的结构表征[J]. 物理化学学报, 2001, 17(07): 631-635
7. 辛靖; 索继栓; 张小明; 任通; 闫亮; 张汉鹏. 以新型模板方法合成中孔 SiO_2 分子筛[J]. 物理化学学报, 2001, 17(03): 193-195
8. 袁忠勇; 陈铁红; 王敬中; 李赫啜. 中孔分子筛MCM-41形成机理的考察[J]. 物理化学学报, 1997, 13(05): 452-454
9. 翟尚儒; 蒲敏; 张晔; 吴东; 孙予罕. 合成高产率分子筛MCM-48[J]. 物理化学学报, 2003, 19(02): 167-170
10. 程志林; 晁自胜; 万惠霖. 微波诱导快速合成纳米NaY分子筛[J]. 物理化学学报, 2003, 19(06): 487-491
11. 张兆荣; 索继栓; 张小明; 李树本. MCM-41中孔 SiO_2 分子筛合成新方法[J]. 物理化学学报, 1998, 14(03): 243-248
12. 刘欣梅; 阎子峰; 王槐平. 多产低碳烯烃及柴油用分子筛的设计 [J]. 物理化学学报, 2001, 17(06): 547-551
13. 朱建华; 徐杨; 王英; 周仕禄; 周春芳. 沸石分子筛吸附和催化降解亚硝酸[J]. 物理化学学报, 2004, 20(08S): 946-952
14. 杜红宾; 周群; 周凤岐; 庞文琴. Cu-ZSM-5型分子筛的合成与结构表征[J]. 物理化学学报, 1994, 10(07): 635-638
15. 李光进; 杨亚书; 郭燮贤; 市川胜. 由分子筛笼内铂羰基簇合物得到的催化剂的分散度研究[J]. 物理化学学报, 1994, 10(06): 549-554
16. 谢有畅; 汪传宝; 唐有祺. KCl、NaCl在分子筛载体上的分散阈值研究[J]. 物理化学学报, 1993, 9(06): 735-739
17. 祁学永; 王娅娟; 杨孔章. XRD法研究 CrO_3 与NaY、NaM分子筛的表面相互作用[J]. 物理化学学报, 1997, 13(10): 938-941
18. 鞠雅娜; 沈志虹; 赵佳; 赵俊桥; 王秀林. 杂原子(B、Ti、Fe)进入Y型分子筛骨架的表征[J]. 物理化学学报, 2006, 22(01): 28-32
19. 金胜明; 邱冠周; 杨华明; 邓震霞. 海泡石制备HMS和AISBA介孔分子筛的研究[J]. 物理化学学报, 2005, 21(07): 796-799

扩展功能

本文信息

PDF(1078KB)

服务与反馈

把本文推荐给朋友
加入我的书架
加入引用管理器
引用本文
Email Alert
文章反馈
浏览反馈信息

本文关键词相关文章

▶ 分子筛
▶ 铂
▶ 羰基簇合物
▶ ^{13}C CO交换反应
▶ EXAFS

本文作者相关文章

▶ 李光进
▶ 郭燮贤
▶ 藤本俊幸
▶ 市川胜

20. 李会英; 蒲敏; 陈标华. DFT法研究分子筛催化 $trans$ -2-丁烯的双键异构[J]. 物理化学学报, 2005,21(08): 898-902
21. 连文浩; 郑瑛; 王绪绪; 付贤智. 新戊基钛在MCM-41表面的接枝反应及产物性质[J]. 物理化学学报, 2004,20(09): 1138-1143
22. 戴志晖; 鞠焜先. 介孔分子筛上的蛋白质直接电化学[J]. 物理化学学报, 2004,20(10): 1262-1266
23. 聂春发; 索继栓. 杂化MCM-41固载催化剂的合成、表征及催化研究[J]. 物理化学学报, 2004,20(02): 149-153
24. 刘雷; 张高勇; 董晋湘. 模板剂对全硅MCM-41介孔分子筛结构的影响[J]. 物理化学学报, 2004,20(01): 65-69
25. 刘洁翔; 董梅; 秦张峰; 王建国. $AlPO_4$ -5分子筛中二氯苯吸附的分子模拟[J]. 物理化学学报, 2004,20(07): 696-700
26. 郑均林; 张晔; 魏伟; 吴东; 孙予罕; 邓凤; 罗晴; 岳勇. 具有强酸性位的高水热稳定介孔分子筛的合成[J]. 物理化学学报, 2003,19(10): 907-912
27. 师希娥; 翟尚儒; 戴立益; 单永奎; 何鸣元; 魏伟; 吴东; 孙予罕. 纳米硅铝介孔分子筛的合成及其催化裂化性能[J]. 物理化学学报, 2004,20(03): 265-270
28. 裴素朋; 张斌; 焦昆; 包任烈; 岳斌; 贺鹤勇. SBA-15负载纳米 $CoMoO_4$ 催化剂催化丙烷氧化脱氢制丙烯[J]. 物理化学学报, 2008,24(04): 561-564
29. 张国; 白福全; 周欣; 刘涛; 潘清江; 付宏刚; 张红星. 噻吩分子及其与异辛烷二元混合物在MCM-22分子筛中吸附的蒙特卡罗模拟[J]. 物理化学学报, 2009,25(02): 218-222
30. 张福顺; 吴志芸; 阚秋斌. Ti-ZSM-11的红外光谱研究[J]. 物理化学学报, 1995,11(09): 836-839
31. 唐克; 宋丽娟; 段林海; 李秀奇; 桂建舟; 孙兆林. 杂原子Y分子筛的二次合成及其吸附脱硫性能[J]. 物理化学学报, 2006,22(09): 1116-1120
32. 陈洪林; 申宝剑; 潘惠芳. 水热脱铝ZSM-5/Y复合分子筛的表征和催化裂化性能[J]. 物理化学学报, 2004,20(08): 854-859
33. 陆安慧; 李文翠; 郑经堂. 分子筛型PAN-ACF制备及表面结构的XPS研究[J]. 物理化学学报, 2001,17(03): 216-221
34. 杨鹏程; 叶学其; 计明娟; 赵柱流; 张卓娅; 侯廷军; 徐筱杰. 分子筛模型中非骨架离子位置的研究[J]. 物理化学学报, 1998,14(09): 817-820
35. 银董红; 尹笃林. 微波辐射促进 $ZnCl_2$ 与Y分子筛固相反应的研究[J]. 物理化学学报, 1998,14(05): 448-452
36. 郑均林; 翟尚儒; 杨东江; 张晔; 吴东; 孙予罕. $MSU-S_{MFI}$ 和MCM-41的催化裂化及烷基化活性比较[J]. 物理化学学报, 2005,21(03): 324-327
37. 王绪绪; 傅贤智. MCM-41表面羟基与四新戊基锆的反应[J]. 物理化学学报, 2001,17(02): 165-168
38. 晋春; 贾银娟; 王宝骏; 范彬彬; 马静红; 李瑞丰. Y型分子筛中对称与不对称Co(II)Salen型席夫碱配合物的结构和催化性能[J]. 物理化学学报, 2006,22(08): 947-952
39. 郝志显; 赵海涛; 王利军; 解丽丽; 田震; 李庆华. 微波辐射法合成SAPO-5分子筛中硅铝比对产物结晶度和甲苯吸附性能的影响[J]. 物理化学学报, 2009,25(05): 829-834
40. 臧小亚; 梁德青; 樊栓狮; 唐翠萍. 5A分子筛粉末对四氢呋喃水合物的生成及分解过程的影响[J]. 物理化学学报, 2009,25(06): 1047-1052
41. 孙秀良; 黄崇品; 张傑; 陈标华. Beta分子筛中Al的分布和Brønsted酸的酸性强度[J]. 物理化学学报, 2009,25(06): 1136-1142
42. 冯利利; 赵威; 刘洋; 焦亮; 李星国. MCM-41分子筛担载纳米 TiO_2 复合材料光催化降解罗丹明B[J]. 物理化学学报, 2009,25(07): 1347-1351
43. 陈善俊; 戴伟; 罗江山; 唐永建; 王朝阳; 孙卫国. 甲烷在AFS型分子筛中的吸附模拟[J]. 物理化学学报, 2009,25(02): 285-290
44. 罗小林; 陈亚芍; 常鹏梅; 杨德锁; 姜奕. 离子胶束诱导微波合成SAPO-11分子筛微球[J]. 物理化学学报, 2009,25(01): 137-144
45. 赵瑞花; 董梅; 秦张峰; 丁建飞; 郭星翠; 王建国. 不同钴含量CoAPO-5分子筛的合成、表征及其催化环己烷氧化性能[J]. 物理化学学报, 2008,24(12): 2304-2308
46. 钟依均; 许晓华; 肖强; 姜丽; 朱伟东; 马淳安. NaA分子筛膜催化剂上CO和 C_2H_4 混合气的选择性氧化反应[J]. 物理化学学报, 2008,24(10): 1875-1878
47. 杨晓峰; 秦张峰; 王建国. 分子在纯硅 β 分子筛内扩散的随机行走模型[J]. 物理化学学报, 2008,24(11): 2128-2132
48. 范闽光; 李斌; 张飞跃; 李望良; 邢建民; 刘自力. 铜离子在CuLaHY分子筛中的分布与吸附脱硫性能[J]. 物理化学学报, 2009,25(03): 495-501
49. 王洪国; 姜恒; 徐静; 孙兆林; 张晓彤; 朱赫礼; 宋丽娟. 苯和1-辛烯对Ce(IV)Y分子筛选择性吸附脱硫的影响[J]. 物理化学学报, 2008,24(09): 1714-1718
50. 马娜; 季生福; 吴平易; 胡林华; 聂平英. $W_xC/SBA-16$ 催化剂的制备、表征及催化加氢脱硫性能[J]. 物理化学学报, 2007,23(08): 1189-1194
51. 袁昊; 李庆华; 沙菲; 解丽丽; 田震; 王利军. 紫外光解法在制备低介电常数氧化硅分子筛薄膜中的应用[J]. 物理化学学报, 2007,23(08): 1219-1223
52. 丁冰晶; 黄世萍; 汪文川. 酸性分子筛催化乙烯二聚反应[J]. 物理化学学报, 2007,23(12): 1864-1868
53. 陈玉平; 吕玲红; 邵庆; 黄亮亮; 陆小华. 烷烃在丝光沸石型分子筛中吸附和扩散行为[J]. 物理化学学报, 2007,23(06): 905-910

54. 宋春敏; 阎子峰; Max Lu. 高表面积MCM-41的合成与性能 [J]. 物理化学学报, 2002,18(03): 279-283
55. 邓风; 董晋湘; 杜有如; 叶朝辉. 用固体核磁共振研究Al/P>1的磷酸铝分子筛 $\text{AlPO}_4\text{-5}$ [J]. 物理化学学报, 1997,13(09): 780-785
56. 姜明; 伏羲路. Cu(I)Y分子筛的固态离子交换制备及其表征[J]. 物理化学学报, 1997,13(09): 822-826
57. 杨鹏程; 叶学其; 计明娟; 赵柱流; 张卓娅; 侯廷军; 徐筱杰. 分子筛结构框架铝取代位置的理论研究[J]. 物理化学学报, 1998,14(08): 686-690
58. 计明娟; 杨鹏程; 叶学其; 侯廷军; 徐筱杰. 模型分子筛对水分子的吸附[J]. 物理化学学报, 2000,16(06): 487-490
59. 胡军; 汪建军; 周丽绘; 谢颂海; 刘洪来. Ti-Si介孔分子筛的转晶与控制[J]. 物理化学学报, 2006,22(06): 679-683
60. 张兆荣; 索继栓; 张小明; 李树本. MCM-41分子筛合成与模版剂回收新方法[J]. 物理化学学报, 1999,15(04): 333-337
61. 赵琦; 韩秀文; 刘秀梅; 刘宪春; 翟润生; 包信和; 林励吾; 郭新闻; 张法智; 王祥生. 高硅ZSM-5分子筛和二次合成Ti-ZSM-5分子筛的结构[J]. 物理化学学报, 1998,14(04): 320-326
62. 赵琦; 韩秀文; 刘秀梅; 翟润生; 林励吾; 包信和; 郭新闻; 李钢; 王祥生. 以四丙基溴化铵为模板剂合成TS-1分子筛的研究[J]. 物理化学学报, 1998,14(10): 906-912
63. 周丹红; 王玉清; 贺宁; 杨刚. Cu(I), Ag(I)/分子筛化学吸附脱硫的n-络合机理[J]. 物理化学学报, 2006,22(05): 542-547
64. 汪哲明; 阎子峰. 杂原子取代型磷酸铝分子筛上丁烯异构化反应[J]. 物理化学学报, 2003,19(03): 216-220
65. 裘式纶; 翟庆洲; 肖丰收; 张宗韬; 韩宇. 新型沸石分子筛主体-纳米客体复合材料研究进展[J]. 物理化学学报, 1998,14(12): 1116-1122
66. 张婉静; 稽天浩; 孟宪平; 刘英骏; 林炳雄. 嵌入Y型分子筛中钨簇合成与结构的研究[J]. 物理化学学报, 1996,12(07): 609-614
67. 林承志; 蔡小海; 谢有畅. CuCl_2/NaY 体系表面分散态研究[J]. 物理化学学报, 1996,12(06): 523-526
68. 赵大庆; 张建国; 吴亦洁; 裴奉奎; 裘式纶; 庞文琴. SAPO-5分子筛骨架结构研究[J]. 物理化学学报, 1993,9(05): 706-708
69. 单绍纯; 沈少波; 黄敏明. 固体离子交换法将钒引入高硅分子筛[J]. 物理化学学报, 1992,8(03): 339-344