

# Au/NTS-1 催化丙烯气相直接环氧化

刘义武<sup>1,2</sup>, 张小明<sup>1,\*</sup>, 索继栓<sup>1</sup>

1中国科学院成都有机化学研究所, 四川成都 610041; 2内江师范学院化学化工学院, 四川内江 641100

LIU Yiwu<sup>1,2</sup>, ZHANG Xiaoming<sup>1,\*</sup>, SUO Jishuan<sup>1</sup>

1Chengdu Institute of Organic Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610041, Sichuan, China; 2College of Chemistry and Chemical Engineering, Neijiang Normal University, Neijiang 641100, Sichuan, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (560KB) [HTML \(1KB\)](#) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

**摘要** 以高温氨气处理制得含氮微孔钛硅分子筛 (NTS-1) 为载体, 用沉积-沉淀法制得了一系列纳米金催化剂。考察了纳米金催化剂在氯气和氧气共存下催化丙烯气相环氧化制环氧丙烷反应中的催化性能。结果表明: 高温氨气处理钛硅分子筛 (TS-1) 载体降低了其酸性, 提高了纳米金催化剂制备中金的利用率和纳米金催化剂中金的分散度, 显著提高纳米金催化剂的催化活性。载体酸性降低和载体表面-NH<sub>2</sub> 配位效应增强了催化剂活性。

**关键词:** 金 含氮钛硅分子筛 环氧化 氯化 环氧丙烷 钛硅分子筛相

**Abstract:** Nitrogen-incorporated titanium silicalite-1 (NTS-1) was used to prepare a supported gold catalyst for direct gas-phase epoxidation of propylene using H<sub>2</sub> and O<sub>2</sub>. The NTS-1 was synthesized by direct calcination of the TS-1 powder in a flow of NH<sub>3</sub> at high temperature. Gold catalyst supported on NTS-1 was synthesized by the deposition-precipitation method. The samples were characterized by X-ray diffraction, N<sub>2</sub> adsorption-desorption, diffuse reflectance ultraviolet-visible spectroscopy, inductively coupled plasma optical emission spectrometry, elemental analysis, X-ray photoelectron spectroscopy, and transmission electron microscopy. The results indicated that nitrogen was incorporated into the TS-1 framework, and that the NTS-1 preserved the multidimensional fatigue inventory (MFI) structure well. It was found that NH<sub>3</sub>-treatment resulted in decreased acidity of the TS-1 zeolite support and improved both the Au capture efficiency and dispersion, which remarkably improved the catalytic performance. The enhanced activity was ascribed to the decrease in acidic surface sites and the ligand effect of the terminal NH<sub>2</sub> groups on the support surface.

**Keywords:** gold, nitrogen-incorporated titanium silicalite-1, epoxidation, nitridation, propylene oxide, titanium silicalite-1

收稿日期: 2012-09-21; 出版日期: 2012-11-27

引用本文:

刘义武, 张小明, 索继栓 .Au/NTS-1 催化丙烯气相直接环氧化[J] 催化学报, 2013,V34(2): 336-340

LIU Yi-Wu, ZHANG Xiao-Ming, SUO Ji-Shuan .Gold supported on nitrogen-incorporated TS-1 for gas-phase epoxidation of propylene[J] Chinese Journal of Catalysis, 2013,V34(2): 336-340

链接本文:

[http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067\(11\)60474-9](http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(11)60474-9) 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2013/V34/I2/336>**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**

- ▶ 刘义武
- ▶ 张小明
- ▶ 索继栓

[1] Stephen A, Hashmi K. Angew Chem, Int Ed, 2006, 45: 7896

[2] Nijhuis T A, Makkee M, Moulijn J A, Weckhuysen B M. Ind Eng Chem Res, 2006, 45: 3447

[3] 戴茂华, 汤丁亮, 袁友珠. 催化学报 (Dai M H, Tang D L, Yuan Y Zh. Chin J Catal), 2006, 27: 1063

[4] 方向青, 王钰宁, 邓秀娟, 吴海虹, 吴鹏, 刘月明, 何鸣元. 催化学报 (Fang X Q, Wang Y N, Deng X J, Wu H H, Wu P, Liu Y M, He M Y. Chin J Catal), 2011, 32: 333

[5] Oyama S T, Zhang X M, Lu J Q, Gu Y F, Fujitani T. J Catal, 2008, 257: 1

[6] Qi C X, Akita T, Okumura M, Kuraoka K, Haruta M. Appl Catal A, 2003, 253: 75

[7] Sinha A K, Seelan S, Tsubota S, Haruta M. Angew Chem, Int Ed, 2004, 43: 1546

[8] Chowdhury B, Bravo-Suarez J J, Date M, Tsubota S, Haruta M. Angew Chem, Int Ed, 2006, 45: 412

[9] Yang H W, Tang D L, Lu X N, Yuan Y Z. J Phys Chem C, 2009, 113: 8186

- [10] Liu T, Hacarlioglu P, Oyama S T, Luo M F, Pan X R, Lu J Q. *J Catal*, 2009, 267: 202 
- [11] 刘义武, 余欢, 张小明, 索继栓. *物理化学学报* (Liu Y W, Yu H, Zhang X M, Suo J S. *Acta Phys-Chim Sin*), 2010, 26: 1585
- [12] Cumaranatunge L, Delgass W N. *J Catal*, 2005, 232: 38 
- [13] Sacaliuc-Parvulescu E, Friedrich H, Palkovits R, Weckhuysen B M, Nijhuis T A. *J Catal*, 2008, 259: 43 
- [14] Huang J H, Takei T, Akita T, Ohashi H, Haruta M. *Appl Catal B*, 2010, 95: 430 
- [15] Li H, Lei Q, Zhang X M, Suo J S. *ChemCatChem*, 2011, 3: 143 
- [16] Li H, Lei Q, Zhang X M, Suo J S. *Microporous Mesoporous Mater*, 2012, 147: 110 
- [17] Khomane R B, Kulkarni B D, Paraskar A, Sainkar S R. *Mater Chem Phys*, 2002, 76: 99 
- [18] Lu J Q, Zhang X M, Bravo-Suarez J J, Fujitani T, Oyama S T. *Catal Today*, 2009, 147: 186 
- [19] Lee W S, Akataj M C, Stach E A, Ribeiro F H, Delgass W N. *J Catal*, 2012, 287: 178. 
- [20] Mul G, Zwijnenburg A, van der Linden B, Makkee M, Moulijn J A. *J Catal*, 2001, 201: 128. 
- [21] 武光军, 关乃佳, 李兰冬. *催化学报* (Wu G J, Guan N J, Li L D. *Chin J Catal*), 2012, 33: 51
- [22] Chino N, Okubo T. *Microporous Mesoporous Mater*, 2005, 87: 15 
- [23] Wells D H, Delgass W N, Thomson K T. *J Am Chem Soc*, 2004, 126: 2956 
- [1] 王自庆, 马运翠, 林建新, 王榕, 魏可镁. 碱土金属对锆基钙钛矿材料负载钉催化剂氨合成性能的影响[J]. *催化学报*, 2013, 34(2): 361-366
- [2] 张鸿鹏, 刘海超. Ce-Zr 复合氧化物负载 Au 纳米粒子催化甲醇氧化反应中的载体效应[J]. *催化学报*, 2013, 34(1): 235-242
- [3] 吴天斌, 张鹏, 马珺, 樊红雷, 王伟涛, 姜涛, 韩布兴. 超临界流体中制备微孔和介孔结构金属有机框架负载 Ru 及其催化性能[J]. *催化学报*, 2013, 34(1): 167-175
- [4] 蔡雯佳, 周琰, 包任烈, 岳斌, 贺鹤勇. 介孔硅负载 Keggin 型钨磷酸催化环己烯环氧化[J]. *催化学报*, 2013, 34(1): 193-199
- [5] 李小云, 孙明慧, ROOKE Joanna Claire, 陈丽华, 苏宝连. 多级孔催化剂的合成及应用[J]. *催化学报*, 2013, 34(1): 22-47
- [6] 马璇璇, 朱银华, 李力成, 王昌松, 陆小华, 杨祝红. 介孔 TiO<sub>2</sub> 晶须担载 Au 的热稳定性[J]. *催化学报*, 2012, 33(9): 1480-1485
- [7] 贾燕子, 杨清河, 孙淑玲, 聂红, 李大东. 渣油加氢处理过程中 Mo-V/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的催化性能及协同效应[J]. *催化学报*, 2012, 33(9): 1546-1551
- [8] 尹伟, 林华香, 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
- [9] 樊启佳, 刘建华, 陈静, 夏春谷. 环氧化合物羧基化反应研究新进展[J]. *催化学报*, 2012, 33(9): 1435-1447
- [10] 闫少伟, 范辉, 梁川, 李忠, 于智慧. 二硝基甲苯低压加氢 Ni-La-B 非晶态合金催化剂的制备及结构表征[J]. *催化学报*, 2012, 33(8): 1374-1382
- [11] 张慧丽, 任丽会, 陆安慧, 李文翠. Au/CeO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 催化 CO 低温氧化反应过程中 CeO<sub>2</sub> 的作用[J]. *催化学报*, 2012, 33(7): 1125-1132
- [12] 王兆宇, 李晓辉, 张跃, 石雷, 孙琪. 碱土金属氧化物对丙三醇和苯胺气相合成 3-甲基吲哚的 Cu/SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂的作用[J]. *催化学报*, 2012, 33(7): 1139-1145
- [13] 朱凤霞, 周建峰, 朱惠琴, 李和兴. 有序介孔有机金属 Au(I) 催化剂催化水相炔烃水合制备甲基酮[J]. *催化学报*, 2012, 33(6): 1061-1066
- [14] 邱文革, 王昱, 李传强, 展宗城, 訾学红, 张桂臻, 王锐, 何洪. 活化温度对 CuBTC 催化 CO 氧化反应性能的影响[J]. *催化学报*, 2012, 33(6): 986-992
- [15] 刘健, 刘羹, 石鑫, 杨启华. 多壁碳纳米管固载金鸡纳生物碱季铵盐类手性相转移催化剂的制备及其催化烷基化反应性能[J]. *催化学报*, 2012, 33(5): 891-897