

NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5 空心微球核壳复盐 催化剂的制备及歧化性能研究

沈蒙莎,程永兵,黄鸿坤,徐雨,樊俊杰,徐文媛*,陈曦,廖梦垠
(华东交通大学材料科学与工程学院,江西 南昌 330013)

摘要:利用浸渍法将复盐 NaAlCl₄ 负载在空心微球表面,对比不同硅铝摩尔比下催化剂的性能,研究了不同温度、不同 NaAlCl₄ 负载质量分数(4%、8%、12%、16%)下催化剂的催化效率,利用 XRD、BET、SEM、TEM、FT-IR、EDS 等对催化剂进行表征。结果表明,在硅铝摩尔比为 150、反应温度为 200℃、复盐负载质量分数为 8%、催化剂质量为 0.7 g 时,催化性能最好。

关键词:NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5;空心微球;核壳复盐催化剂;二甲基二氯硅烷;歧化

中图分类号:T19

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2022)08-0100-05

DOI:10.16606/j.cnki.issn0253-4320.2022.08.021

Preparation of NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5 hollow microsphere core-shell catalyst and study on its disproportionation properties

SHEN Meng-sha, CHENG Yong-bing, HUANG Hong-kun, XU Yu, FAN Jun-jie,
XU Wen-yuan*, CHEN Xi, LIAO Meng-yin

(School of Materials Science and Engineering, East China Jiaotong University, Nanchang 330013, China)

Abstract:NaAlCl₄ is loaded on the surface of hollow microspheres through an impregnation method, and NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5 hollow microsphere core-shell catalysts are prepared. The performance of the catalysts with different Si/Al ratios is compared, the catalytic efficiencies of the catalysts are investigated under different temperatures and different loading ratios of NaAlCl₄. In addition, the catalysts are characterized by means of XRD, BET, SEM, TEM, FT-IR, EDS, etc. The results suggest that the catalyst shows the best catalytic performance when the reaction temperature is at 200℃, the loading content of NaAlCl₄ is 8%, and the mass of catalyst is 0.7 g.

Key words:NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5; hollow microsphere; core-shell catalyst; dimethyldichlorosilane; disproportionation

有机硅是国民经济发展和人民生活水平提高不可或缺的新型高科技材料^[1-2]。二甲基二氯硅烷(简称为“二甲”)是制备有机硅材料的重要单体^[3],通常用于各种有机硅产品中^[4],如硅树脂、弹性体和油。主要合成方法有:直接合成法^[5]、缩合法、格氏试剂法^[6-8]和歧化法^[9]。而工业生产制备二甲时分离困难且伴随着大量有害副产物的生成^[10]。尝试采用歧化法催化副产物制备二甲^[11]。

γ-Al₂O₃ 是一种具有 Lewis 酸的亲水性材料^[12-13],很容易在歧化制备二甲的过程中导致 γ-Al₂O₃ 脱铝。研究发现,活性中心数量的减少会直接影响到催化剂的酸性密度及强度,从而影响到催化剂的反应效率。与此同时,ZSM-5 分子筛^[5,14-15]具有独特的三维交叉孔道结构^[16],有着良好的择形性和热稳定性。在各个领域都表现出优异的催化性

能。课题组前期研究也发现 γ-Al₂O₃ 和 ZSM-5 均是歧化较好的载体^[17-18],且 NaAlCl₄ 复盐负载后活性位主要居于催化剂的外表面而孔道内的活性不佳^[19]。若将上述载体制备成空心微球的催化剂并对其表面进行壳层的修饰,以期能增加其歧化活性。笔者通过溶解去除内核得到了 γ-Al₂O₃ 空心微球的内核,佐以 ZSM-5 的壳,制备了 NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5 空心微球核壳复盐催化剂,并考察其对硅烷副产物一甲基三氯硅烷和三甲基氯硅烷歧化制备二甲性能的影响。

1 材料试剂与仪器

1.1 材料与试剂

葡萄糖、正硅酸四乙酯(TEOS)、偏铝酸钠、AlCl₃、NaCl,广东西陇化工有限公司生产;一甲基三

收稿日期:2021-09-07;修回日期:2022-06-05

基金项目:国家自然科学基金(22162010,21872049)

作者简介:沈蒙莎(1998-),女,硕士研究生,研究方向为有机硅催化,1602863858@qq.com;徐文媛(1979-),女,博士,教授,研究方向为有机硅催化,通讯联系人,xwyktz@163.com。

氯硅烷、三甲基氯硅烷,星火化工有限公司生产;Al(NO₃)₃·9H₂O、四丙基氢氧化氨(TPAOH),国药集团化学试剂有限公司生产。

1.2 仪器

日立SU8010场发射扫描电镜、JEM-2010型透射电镜、Pekin Elmer Spectrum One傅里叶红外光谱仪;D8 ADVANCE多晶X-射线衍射仪,德国Bruker公司生产;Thermo Fisher Scientific K-AlphaX射线光电子能谱;Jw型吸附分析仪,北京精微高博科技有限公司生产。

2 实验方法

2.1 催化剂的制备

2.1.1 碳小球的制备

配置1 mol/L的葡萄糖溶液,待完全溶解后,取70 mL该溶液并将其置于100 mL的内衬四氟乙烯反应釜中,180℃水热反应8 h,待反应釜温度冷却至室温,得到棕色产物。所得到的产物用无水乙醇和去离子水交替洗涤4次,80℃干燥5 h后留作待用。

2.1.2 γ-Al₂O₃空心微球的制备

称取15 g Al(NO₃)₃·9H₂O加入无水乙醇,配制成0.4 mol/L的硝酸铝乙醇溶液。取60 mL该溶液,加入0.2 g碳小球,搅拌1 h,充分溶解,然后倒入内衬四氟乙烯的反应釜中,在180℃水热反应6 h,冷却至室温,得到黑色沉淀。经过滤、洗涤,再将其放置烘箱中80℃干燥5 h,得到C@Al₂O₃。再将其放入马弗炉中600℃焙烧4 h,得到γ-Al₂O₃空心微球。

2.1.3 γ-Al₂O₃@ZSM-5空心微球载体的制备

称取一定量的γ-Al₂O₃空心微球,倒入无水乙醇中预处理。同时按照n(Al₂O₃):n(TPAOH):n(TEOS):n(H₂O)=0.167:9:25:480加入上述试剂并于常温下磁力搅拌4 h,得到ZSM-5分子筛前驱体溶液。在该溶液中加入预处理的γ-Al₂O₃空心微球,且按质量比1:1混合,加入一定量的NaOH固体,调节pH=10,然后一起倒入晶化釜中,在180℃下晶化18 h以上。冷却至室温取出后,用去离子水和无水乙醇交替过滤洗涤、烘干,再放入马弗炉中,550℃后焙烧5 h,即得到γ-Al₂O₃@ZSM-5空心微球载体。

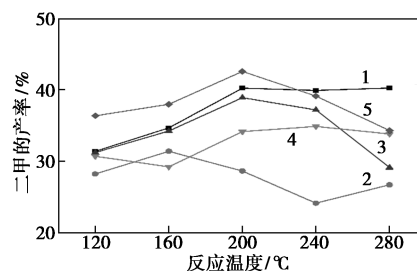
2.1.4 NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5空心微球催化剂的制备

称取制备好的γ-Al₂O₃@ZSM-5空心微球载体4 g,将载体浸渍在一定比例的NaCl溶液中1 h。放

入干燥箱中100℃干燥2 h,再倒入0.041 5~0.166 8 mol/L比例配置的AlCl₃溶液中,浸渍一段时间,然后一起倒入晶化釜中,在190℃下晶化17 h以上。取出后于80℃进行干燥处理,即得NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5空心微球催化剂。

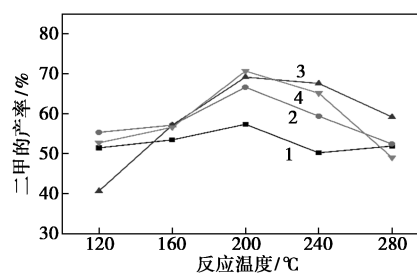
2.2 催化剂歧化活性评价

在不同反应温度下,考察了载体硅铝摩尔比(分别为25、50、75、100和150)、NaAlCl₄复盐负载质量分数(4%、8%、12%、16%)、浸渍时间(1、2、3、4 h)和催化剂质量(0.4、0.5、0.6、0.7 g)对催化剂催化活性的影响,结果如图1所示。由图1中可以看出,当n(Si):n(Al)=150、反应温度为200℃时,二甲的产率为42.59%。当催化剂质量为0.7 g、反应温度为200℃时,二甲的产率最好,高达70.67%。当浸渍时间为2 h、反应温度200℃时,二甲的产率为69.15%。当NaAlCl₄负载质量分数为8%、反应温度200℃时,二甲的产率最高,为69.15%。

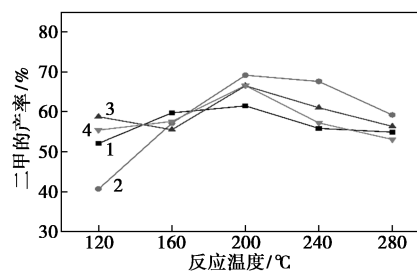


1— $n(\text{Si}):n(\text{Al})=25$; 2— $n(\text{Si}):n(\text{Al})=50$;
3— $n(\text{Si}):n(\text{Al})=75$; 4— $n(\text{Si}):n(\text{Al})=100$;
5— $n(\text{Si}):n(\text{Al})=150$

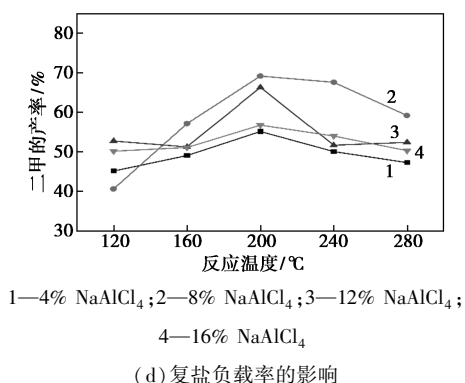
(a) 载体硅铝摩尔比的影响



1—0.4 g; 2—0.5 g; 3—0.6 g; 4—0.7 g
(b) 催化剂质量的影响



1—1 h; 2—2 h; 3—3 h; 4—4 h
(c) 浸渍时间的影响

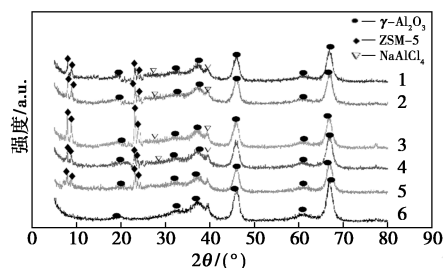


(d) 复盐负载率的影响
图 1 催化剂活性评价结果

3 催化剂表征

3.1 X 射线衍射分析 (XRD)

利用粉末 X 射线衍射仪 (XRD) 对样品中粉末的晶相和结晶度进行表征, 结果如图 2 所示。从图 2 中谱线 1 可以看出, 材料的 XRD 图谱有 γ -Al₂O₃ 反射特性峰存在, 说明合成的 γ -Al₂O₃ 空心球为晶态。从图 2 中谱线 2 可以看出, 其与典型的 ZSM-5 分子筛完全相同, 证明了 ZSM-5 前驱液成功地负载在 γ -Al₂O₃ 的表面。从图 2 中谱线 2 和谱线 3 的对比可以看出, 在 $2\theta = 29.923^\circ$ 有新峰生成, 说明 NaAlCl₄ 晶相成功地负载在 γ -Al₂O₃@ZSM-5 空心载体表面。从图 2 中谱线 3~谱线 6 中可以看出, 负载不同质量分数的复盐中 8% NaAlCl₄ 的衍射峰最高。



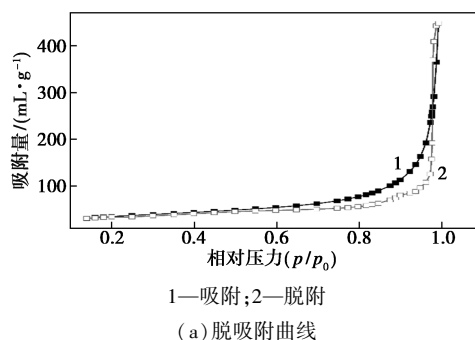
1— γ -Al₂O₃; 2— γ -Al₂O₃@ZSM-5; 3—4% NaAlCl₄;
4—8% NaAlCl₄; 5—12% NaAlCl₄; 6—16% NaAlCl₄

图 2 载体及催化剂的 XRD 图

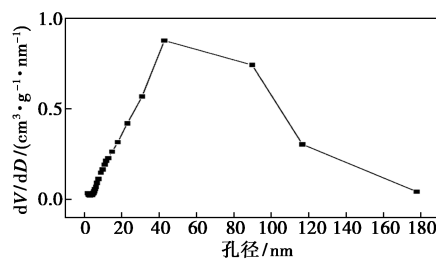
3.2 比表面积测试分析 (BET)

8% NaAlCl₄/ γ -Al₂O₃@ZSM-5 的脱吸附和孔径分布如图 3 所示。从图 3 中可以看出, 混合载体催化剂的等温线为 IV 型滞后回线, 表明有中孔存在。在相对高压下, 磁滞回线与 H₃ 型相似, 催化剂的 N₂ 吸附-解吸等温线显示, 在 $p/p_0 = 0.7$ 附近有一个突变台阶的 H₂ 磁滞回线存在。这说明当 $p/p_0 < 0.7$ 时, 曲线变化平缓, 此时的材料存在微孔特性。当

$p/p_0 > 0.7$ 时, 曲线急剧上升, 变化非常迅猛, 表明存在狭缝状孔隙, 此时的材料存在介孔特性^[20]。在相对压力接近 1.0 左右等温线具有高吸附值, 催化剂具有大介孔和大孔特性, 但所占的比例不大。说明催化剂是一种微-介孔材料。由图 3(b) 中可以看出, 孔径约为 40 nm 的多峰结构。催化剂孔隙度主要表现为微孔和介孔, 微孔体积在 0~0.1 cm³/g 之间; 介孔体积在 0.1~0.8 cm³/g 之间; 大孔体积在 0.1~0.5 cm³/g 且含量较少, 证实催化剂是一种微-介孔材料。由于催化剂中存在大量的孔隙, 而复盐的堆叠造成催化剂表面形成大量的微孔。复盐沉积后, 微-介孔结构得到很好地保留, 使得微-介孔数量 and 孔隙率也得到了提高。这些孔道是理想的气体输送通道, 能够使反应气体分子进入载体的内部空间, 也为反应提供了良好的催化环境。



1—吸附; 2—脱附
(a) 脱吸附曲线



(b) 孔径分布曲线

图 3 8% NaAlCl₄/ γ -Al₂O₃@ZSM-5 的脱吸附曲线和孔径分布

3.3 扫描电子显微镜分析 (SEM)

用扫描电镜对所有的载体及催化剂组分进行表征, 结果如图 4 所示。从图 4(a) 中可以看出, γ -Al₂O₃ 是一个空心微球的样貌, 其没有微小的隆起, 但由大量球形颗粒物质组成且分布不均匀, 大量的颗粒物质堆叠造成其表面呈现絮凝状, 使之不像之前的 γ -Al₂O₃ 分子筛那样致密, 相对更加疏松, 证实了 γ -Al₂O₃ 空心微球制备成功。从图 4(b) 中可以看出, γ -Al₂O₃ 空心微球上负载的 ZSM-5 影响了原始沸石的形貌, 该核壳结构上有明显的白色小圆球

即 ZSM-5 新壳层。从图 4(c) 中可以看出, NaAlCl₄ 复盐晶体通过水热合成法外延生长, 得到“草场”形貌。从图 4(c) 中可以看出, 疏松多孔的表面上有少量的类似叶片嫩芽状的结构, 表面还有大部分载体未被覆盖。从图 4(d) 中可以看出, 当负载 NaAlCl₄ 为 8% 时, 此时的“草场”已经长得非常繁盛, 排列规则且密集, 载体的表面被充分利用, 且活性位均匀分布, 故歧化活性最高。从图 4(e) 和图 4(f) 中可以看出, 由于负载量的增加, 导致活性组分在生长过程中不得不挤在一起和在表面二次成核, 从而使表面活性位数量下降。

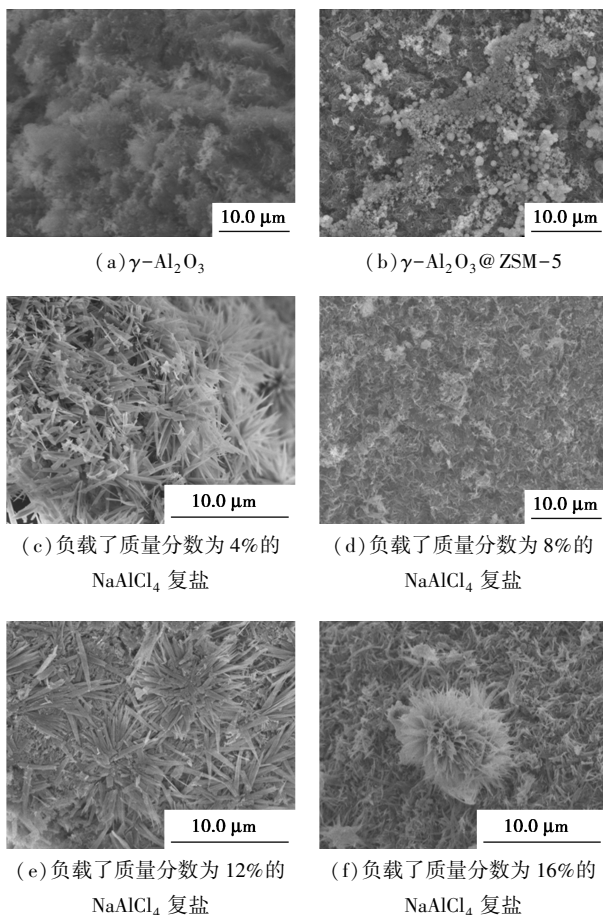
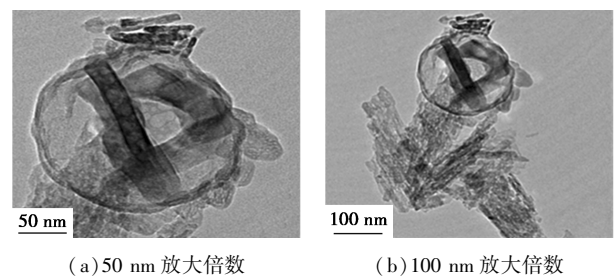


图 4 扫描电镜图

3.4 透射电子显微镜分析 (TEM)

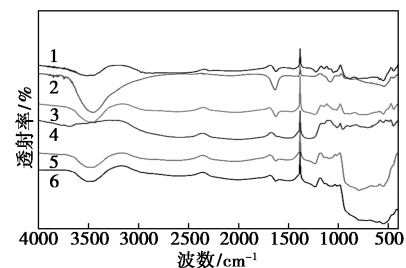
8% NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5 的透射电镜如图 5 所示。从图 5(a) 中可以看出, 合成的 γ-Al₂O₃ 晶体上有大面积的亮区, 说明是空心结构。粒子的快速生长导致了初级粒子的融合生长晶间孔隙率降低。γ-Al₂O₃ 沸石载体断面的晶界显示颗粒在内部共生, 证实初级聚集体交叉在不同的方向生长。在乙醇作用下, Al(OH)₃ 层连续包覆在芯层上的粒子表面, 形成 C-Al(OH)₃ 核壳纳米粒子。碳核的尺

寸也决定了 C-Al(OH)₃ 核壳纳米粒子的尺寸, 因此 γ-Al₂O₃ 空心球的厚度也被相应的控制。在水热合成法中, 四丙基氢氧化铵作为连接剂将前驱液连接在 γ-Al₂O₃ 空心球的表面, 造成 ZSM-5 分子筛生长的晶体是无定形的, 结构杂乱无序, 厚度也很不均匀, 因此在边界出现了一层不规则的壳层。由图 5(b) 中可以看出, 当负载 NaAlCl₄ 复盐时, 由于 γ-Al₂O₃@ZSM-5 沸石载体有丰富的孔道且通过浸渍法制备复盐, 使得小部分 NaAlCl₄ 分子通过孔道进入到空心微球中, 而大部分的复盐还是在微球外形成晶体。

图 5 8% NaAlCl₄/γ-Al₂O₃@ZSM-5 的透射电镜图

3.5 红外光谱分析 (FT-IR)

γ-Al₂O₃ 空心球形纳米颗粒的 FT-IR 光谱如图 6 所示。由图 6 中可以看出, 3 450 cm⁻¹ 附近为—OH 的吸收峰, 这是由于在 γ-Al₂O₃ 中含有的少量 H₂O。吸收峰 400~700 cm⁻¹ 附近为 γ-Al₂O₃ 空心球的红外吸收峰。在 560 cm⁻¹ 附近为 ZSM-5 的骨架原子峰, 1 099 cm⁻¹ 处的特征峰对应的是四面体 Si(Al)O₄ 中的 Si/Al—O 能带伸缩振动峰, 从而证明了 ZSM-5 负载在 γ-Al₂O₃ 空心微球表面。当负载复盐后, 催化剂所携带的 L 酸和 B 酸的总量和强度增强, 在 1 450 cm⁻¹ 处属于 L 酸的频带, 1 540 cm⁻¹ 处属于 B 酸的频带。从负载不同质量分数 NaAlCl₄ 复盐的红外图谱可知, 在 L 酸的吸收峰中, 负载质量分数为



1— $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$; 2— $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$; 3—4% NaAlCl₄; 4—8% NaAlCl₄; 5—12% NaAlCl₄; 6—16% NaAlCl₄

图 6 载体及催化剂 FT-IR 图

8%的复盐的吸收面积最大,12%的复盐的吸收面积最小,其余的都相差不大。在 B 酸的吸收峰中,12%的复盐的吸收面积最大,8%的复盐的吸收面积次之,4%的复盐的吸收面积最小。从酸面积整体来看,催化剂的酸性越多,其催化性能越好,这与前面的催化剂评价是一致的。

3.6 催化剂的能谱分析

负载质量分数分别为 4%、8%、12% 和 16% 的 $\text{NaAlCl}_4/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$ 催化剂元素分布及其质

表 1 不同质量分数 $\text{NaAlCl}_4/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$ 催化剂的元素分析结果

元素	原子数	质量分数/%				归一化质量/%				原子/%			
		(a)	(b)	(c)	(d)	(a)	(b)	(c)	(d)	(a)	(b)	(c)	(d)
O	8	30.24	43.77	33.34	33.97	45.73	51.17	47.05	45.73	58.86	64.07	60.20	59.77
Al	13	30.79	35.27	30.13	31.09	46.55	41.23	42.52	46.55	35.53	30.61	32.26	32.44
Si	14	4.74	4.16	6.03	6.80	7.16	5.39	8.51	7.16	5.25	3.85	6.20	6.82
Cl	17	0.32	1.28	0.86	0.87	0.48	1.47	1.21	0.48	0.28	0.84	0.70	0.69
Na	11	0.05	0.61	0.50	0.31	0.08	0.71	0.71	0.08	0.07	0.62	0.63	0.28
合计		85.54	66.14	70.87	85.54	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00

注:(a)为 4% $\text{NaAlCl}_4/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$, (b)为 8% $\text{NaAlCl}_4/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$, (c)为 12% $\text{NaAlCl}_4/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$; (d)为 16% 的 $\text{NaAlCl}_4/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$ 。

4 结论

制备了 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$ 空心微球核壳载体,再用浸渍法将复盐负载在催化剂的表面,成功制备了 $\text{NaAlCl}_4/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3@ZSM-5$ 空心微球核壳催化剂,并对催化剂进行 SEM、SEM-EDS、XRD、FI-IR、TEM、BET 等系列表征。对催化剂用于歧化一甲基三氯硅烷和三甲氯硅烷的催化活性进行了评价,并对载体硅铝摩尔比、 NaAlCl_4 负载质量分数、浸渍时间、反应温度、催化剂质量等进行了筛选,结果表明,在硅铝摩尔比为 150、反应温度为 200℃、复盐负载质量分数为 8%、浸渍时间为 2 h、催化剂质量为 0.7 g 时催化性能最好,二甲基二氯硅烷的产率为 70.67%。

参考文献

- [1] Francis A. Biological evaluation of preceramic organosilicon polymers for various healthcare and biomedical engineering applications: A review [J]. *J Biomed Mater Res B Appl Biomater*, 2021, 109: 744-764.
- [2] Li Y L, Zhu C S, Jiang J, *et al.* Hydrothermal liquefaction of macroalgae with in-situ-hydrogen donor formic acid: Effects of process parameters on products yield and characterizations [J]. *Industrial Crops and Products*, 2020, 153: 112513.
- [3] 朱清,李成胜,鲍雨,等. TiO_2 空心微球在 $\text{NaYF}_4:\text{Yb}^{3+},\text{Er}^{3+}$ /商业 TiO_2 染料敏化太阳能电池中的应用 [J]. *化工新型材料*, 2021, 49: 218-222.
- [4] Wang Y J, Cao J P, Ren X Y, *et al.* Synthesis of ZSM-5 using different silicon and aluminum sources nature for catalytic conversion of lignite pyrolysis volatiles to light aromatics [J]. *Fuel*, 2020, 268: 117286.
- [5] Li J, Ni Z B, Ji Y J, *et al.* ZnO supported on $\text{Cu}_2\text{O}\{100\}$ enhances charge transfer in dimethyldichlorosilane synthesis [J]. *Journal of Catalysis*, 2019, 374: 284-296.
- [6] Rostamizadeh M, Sadatnia B, Norouzbahari S, *et al.* Enhancing the gas separation properties of mixed matrix membranes via impregnation of sieve phases with metal and nonmetal promoters [J]. *Separation and Purification Technology*, 2020, 245: 116859.
- [7] Huang P, Liu Z, Shao Y, *et al.* Mechanistic investigation of zinc-promoted silylation of phenylacetylene and chlorosilane: A combined experimental and computational study [J]. *Phys Chem Chem Phys*, 2020, 22: 22935-22942.
- [8] Li Z C, Jiang X, Xiong G, *et al.* Towards the preparation of binderless ZSM-5 zeolite catalysts: The crucial role of silanol nests [J]. *Catalysis Science & Technology*, 2020, 10: 7829-7841.
- [9] Chen Y, Li Y M, Xu C H. Facile preparation of hydrochlorosilane by alkali metal halide catalyzed Si-H/Si-Cl redistribution reaction [J]. *Tetrahedron Letters*, 2020, 61 (41): 152235.
- [10] Van Speybroeck V, Hemelsoet K, Joos L, *et al.* Advances in theory and their application within the field of zeolite chemistry [J]. *Chem Soc Rev*, 2015, 44: 7044-7111.

(下转第 112 页)

- [3] Yao P, Li S B, Lambert A, *et al.* Amino acid-based imidazole ionic liquid: A novel soft matrix for electrochemical biosensing applications [J]. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 2021, 9 (11): 4157–4166.
- [4] Liu Y, Li M, Lu Y, *et al.* Simple, efficient and recyclable palladium catalytic system for heck reaction in functionalized ionic liquid network [J]. *Catalysis Communications*, 2006, 7 (12): 985–989.
- [5] 黄金艳, 杨文娟, 蒋丽红, 等. 咪唑类离子液体催化合成正龙脑 [J]. *精细化工*, 2021, 38 (5): 1002–1022.
- [6] Tarkhanova I G, Anisimov A V, Buryak A K, *et al.* Immobilized ionic liquids based on molybdenum-and tungsten-containing heteropoly acids: Structure and catalytic properties in thiophene oxidation [J]. *Petroleum Chemistry*, 2017, 57 (10): 859–867.
- [7] 贾晓丽, 王鑫, 赵三虎. 咪唑类离子液体在蒜素提取中的应用 [J]. *化学试剂*, 2020, 42 (7): 862–867.
- [8] 吴莉娟, 彭效明, 汤晨洋, 等. 咪唑类离子液体应用于天然物中萜类化合物提取的研究进展 [J]. *中医药学报*, 2021, 49 (5): 97–102.
- [9] Shen C H, Li D N, Zhang L, *et al.* Dissolution of konjac glucomannan with room temperature ionic liquids [J]. *Journal of Wuhan University of Technology-Mater Sci Ed*, 2011, 26: 703–709.
- [10] 王干, 郑忠宇, 段玮嘉, 等. 咪唑类离子液体热不稳定性的试验研究 [J]. *中国安全科学学报*, 2021, 31 (4): 163–170.
- [11] 叶天旭, 张予辉, 刘金河, 等. 烷基咪唑类室温离子液体的合成及其溶解性能研究 [J]. *现代化工*, 2003, 23 (s1): 117–119.
- [12] Xie W L, Wang Y B. Synthesis of high fatty acid starch esters with 1-butyl 3-methylimidazolium chloride as a reaction medium [J]. *Starch*, 2011, 63 (4): 190–197.
- [13] Zehner B, Schmidt F, Korth W, *et al.* Determination of the critical micelle concentration of imidazolium ionic liquids in aqueous hydrogen peroxide [J]. *Langmuir*, 2019, 49 (35): 16297–16303.
- [14] 王升泽, 侯海云, 黄银蓉. 1-乙基-3-甲基咪唑醋酸盐的制备及黏度和折光率的测定 [J]. *西安工程大学学报*, 2012, 26 (1): 41–44.
- [15] Liu F S, Li Z, Yu S T, *et al.* Environmentally benign methanolysis of polycarbonate to recover bisphenol A and dimethyl carbonate in ionic liquids [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, 174 (1): 872–875.
- [16] Liu F S, Li L, Yu S T, *et al.* Methanolysis of polycarbonate catalysed by ionic liquid [Bmim][Ac] [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 189 (1): 249–254.
- [17] 马小玲. 超声辅助咪唑类离子液体提取茶叶中绿原酸的研究 [J]. *当代化工研究*, 2020, 24: 147–148.
- [18] 李洪飞, 王媛, 付金伦, 等. 聚乙烯氯化原位接枝马来酸酐离聚体的制备、表征及性能 [J]. *弹性体*, 2014, 24 (3): 1–4.
- [19] 王蒙, 崔丽虹, 李积华, 等. 离子液体[Emin]Ac对甘蔗渣纤维素溶解性能的研究 [J]. *化工新型材料*, 2014, 42 (6): 122–128.
- [20] Wang T H, Li W H, Chang H C. Structural reorganization of imidazolium ionic liquids induced by pressure-enhanced ionic liquid—polyethylene oxide interactions [J]. *International Journal of Molecular Sciences*, 2021, 22 (2): 1–16.
- [21] 宋红兵. 碱性离子液体的合成、表征及其在催化反应中的应用研究 [D]. 广州: 华南理工大学, 2012.
- [22] Xu H, Zhang D D. Viscosities and conductivities of [BMIM]Zn(Ac)_xCl_y (x = 1, 1, 2, 3; y = 3, 2, 1, 0) ionic liquids at different temperatures [J]. *Journal of Chemistry*, 2017, 45 (8): 1–5.
- [23] Tokuda H, Hayamizu K, Ishii K, *et al.* Physicochemical properties and structures of room temperature ionic liquids. 2. variation of alkyl chain length in imidazolium cation [J]. *The Journal of Physical Chemistry B*, 2005, 109 (13): 6103–6110.
- [24] 于颖敏. 咪唑类离子液体的制备、性质及其在燃料油脱硫中的应用 [D]. 青岛: 中国石油大学, 2008. ■
- (上接第 104 页)
- [11] Chen Y, Ai L Q, Li Y M, *et al.* Borohydride catalyzed redistribution reaction of hydrosilane and chlorosilane: A potential system for facile preparation of hydrochlorosilanes [J]. *RSC Advances*, 2020, 10: 17404–17407.
- [12] Weber Stockbauer M, Gutiérrez O Y, Bermejo Deval R, *et al.* The role of weak Lewis acid sites for methanol thiolation [J]. *Catalysis Science & Technology*, 2019, 9: 509–516.
- [13] Chen Z W, Li Z, Zhang Y, *et al.* A green route for the synthesis of nano-sized hierarchical ZSM-5 zeolite with excellent DTO catalytic performance [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 388: 124322.
- [14] Magzoub F, Li X, Lawson S, *et al.* 3D-printed HZSM-5 and 3D-HZM5@SAPO-34 structured monoliths with controlled acidity and porosity for conversion of methanol to dimethyl ether [J]. *Fuel*, 2020, 280: 118628.
- [15] Gu Y, Wang X H, Qin Z X, *et al.* Intra-crystalline mesoporous ZSM-5 zeolite by grinding synthesis method [J]. *Microporous and Mesoporous Materials*, 2020, 306: 110437.
- [16] Xu W Y, Wang Y, Li S Y, *et al.* Study on the mechanism of catalytic synthesis of dimethyldichlorosilane by AlCl₃/MIL-53 (Al) @ γ -Al₂O₃ [J]. *Applied Organometallic Chemistry*, 2020, 35 (1): e6030.
- [17] Xu W Y, Yan F, Yang S M, *et al.* Mechanism on the disproportionating synthesis of dichlorodimethyl-silane by ZSM-5 (5 T) @ γ -Al₂O₃ series core-shell catalysts [J]. *Applied Organometallic Chemistry*, 2020, 34 (3): e5419.
- [18] Xu W Y, Yang M, Liu Y X, *et al.* Disproportionation mechanism of methylchlorosilanes catalyzed by different clusters AlCl₃/ZSM-5 [J]. *Journal of Chemical Sciences*, 2018, 58: 130.
- [19] Xu W Y, Yang M, Li X Y, *et al.* Study on the Mechanism of Methylchlorosilanes Disproportionation Catalyzed by AlCl₃/(AlCl₂)^{Z+}- γ -Al₂O₃ [J]. *Russian Journal of Physical Chemistry A*, 2019, 92: 2634–2639.
- [20] 徐文媛, 李素颖, 汪焱, 等. 微污染源水处理技术研究进展 [J]. *现代化工*, 2021, 41 (7): 51–55. ■