

单缺位型磷钨杂多化合物的 制备及催化性能的实验设计

王成君¹, 苏琼¹, 李贵贤², 王洁², 段志英¹

(1. 西北民族大学 化工学院甘肃省高校环境友好复合材料及生物质利用省级重点实验室,
甘肃 兰州 730124; 2. 兰州理工大学 石油化工学院, 甘肃 兰州 730050)

[摘要] 通过合成的一系列溴代十六烷基吡啶修饰的过渡金属取代单缺位的 Keggin 型磷钨杂多化合物 $PW_{11}O_{39}M(II/III)$ ($M=Fe, Co, Ni, Cu, Mn$), 并利用红外和 X-射线光谱对其结构进行了表征. 以其为相转移催化剂, 评价了合成的杂多化合物对苯乙烯氧化反应的催化活性. 通过观察反应温度、反应时间、催化剂用量和叔丁基过氧化氢用量对 $(C_{pyr})_5PW_{11}Co$ 催化苯乙烯氧化反应的影响, 发现合成的过渡金属取代的单缺位 Keggin 结构磷钨杂多化合物, 当反应温度为 $80\text{ }^\circ\text{C}$, 反应时间为 8 h 时, $(C_{pyr})_5PW_{11}Co$ 具有最高的催化活性, 反应物苯乙烯的转化率高达 89.3% , 目标产物环氧苯乙烷的选择性为 78% , 且催化剂的重复利用性较好.

[关键词] 单缺位杂多化合物; 催化氧化; 苯乙烯; 环氧苯乙烷

[中图分类号] O643.36

[文献标识码] A

[文章编号] 1009-2102(2020)03-0020-07

DOI:10.14084/j.cnki.cn62-1188/n.2020.03.005

苯乙烯支链活泼的 $C=C$ 容易打开或断裂, 与氧化剂发生氧化反应. 然而, 目标产物(环氧苯乙烷)的形成总是伴随着苯甲醛双键的氧化断裂和环氧苯乙烯异构化为苯乙醛^[1]. 因此, 目标产物环氧苯乙烷的生产是重要的工业反应之一, 因为它是合成香料化学品、药物中间体、制备环氧树脂、聚合物和涂料的精细化学中间体^[2-4], 其市场应用前景非常广阔.

工业上环氧苯乙烷的生产采用传统碱对苯乙烯氯醇进行脱氯化氢反应和有机过氧酸氧化苯乙烯^[5]. 这两种方法尽管工艺成熟, 但都使用危险化学品, 对苯乙烯环氧化物的选择性很差, 反应过程中有大量副产物产生, 会对环境造成严重的污染. 因此迫切需要研发一种环境友好、经济合理的环氧化技术. 文献研究表明, 以叔丁基过氧化氢(TBHP)^[6-7], H_2O_2 ^[8] 为氧化剂的催化环氧化非常有吸引力. 与有机过氧化物, 过氧酸等其他氧化剂相比, 它相对便宜, 只产生水为副产品, 并且具有很高的活性氧物种含量^[9]. 以双氧水为氧化剂的均相介质中的烯烃环氧化已经在多种催化体系中进行了研究^[10-11]. 然而, 催化剂的分离及重复使用性并没有得到有效解决, 因此, 寻求高效的、循环稳定性好的催化体系是今后的研究重点.

1 : 11 系列杂多化合物 $[XM_{11}O_{39}]^{n-}$ (X 为杂原子, M 为配原子) 是迄今为止世界上用途最广、数量最多的一类缺位型杂多阴离子, 是从完整的 Keggin 结构中, 除去一个八面体得到的^[12]. 当 1 : 11 系列的空缺位置被其他金属离子占有时, 形成了配位杂多化合物. 该类化合物具有更高的催化活性与选择性^[12]. 本文详细介绍了过渡金属取代磷钨酸盐的溴代十六烷基吡啶盐制备过程, 并以

[收稿日期] 2020-06-01

[基金项目] 西北民族大学教育教学改革研究一般项目(2020YBJG-22)

[作者简介] 王成君, 女, 讲师, 主要研究方向: 化学工程与工艺.

(C_{pyr})₅[PW₁₁CoO₃₉]为相转移催化剂,叔丁基过氧化氢为氧化剂,以苯乙烯氧化为探针反应,探讨了不同过渡金属对催化活性顺序的影响,并考察了反应条件对苯乙烯氧化反应的影响。

1 实验部分

1.1 仪器与试剂

仪器:IFS66V/S型傅里叶变换红外光谱仪(德国 Bruker 公司),KBr 压片;X 射线衍射仪器为日本理学 D/max2200PC,测试条件为 Cu K α 射线,管电压 40 kV,管电流 100 mA,扫描角度 5°~80°;GC3420 II 气相色谱仪(上海天美科学仪器有限公司)。

试剂:Na₂WO₄·2H₂O、Na₂HPO₄·12H₂O、溴代十六烷基吡啶、Co(NO₃)₂·6H₂O、Ni(NO₃)₂·6H₂O、Fe(NO₃)₃·9H₂O、MnSO₄·H₂O、Cu(NO₃)₂·3H₂O、苯乙烯、叔丁基过氧化氢,二氯甲烷,试剂使用前未经进一步纯化。

1.2 催化剂的制备

单缺位型杂多酸盐 Na₇PW₁₁O₃₉的合成过程如下^[13]:将 0.020 mol 的 Na₂HPO₄·12H₂O 和 0.225 mol Na₂WO₄·2H₂O 溶解在 150 mL 去离子水中,充分搅拌,使其完全溶解,用浓硝酸调节 pH 至 4.8,继续搅拌并加热至 85 °C。当混合溶液体积减少为原来的一半时,停止加热。冷却后加入 80~100 mL 丙酮,静置过夜。移除上层丙酮液,下层体系置于 50 °C 烘箱中干燥,得白色固体,即为 Na₇PW₁₁O₃₉ 单缺位杂多化合物。

Keggin 型 Co 取代的杂多酸盐 Na₅PW₁₁O₃₉Co(II)(H₂O)合成过程如下:在 Co(NO₃)₂·6H₂O 水溶液中添加一定化学计量比的 Na₇PW₁₁O₃₉,90 °C 回流反应 2 h,蒸发浓缩,冷却后加入丙酮,过滤,除去沉淀,收集滤液,60 °C 真空干燥,即得 Na₅PW₁₁O₃₉Co(II)(记作 PW₁₁Co)。其他金属 Fe、Ni、Cu、Mn 取代的杂多化合物 Na₅PW₁₁O₃₉M(II/III)(H₂O)制备方法如上,分别记为 PW₁₁Fe, PW₁₁Ni, PW₁₁Cu, PW₁₁Mn。

功能化修饰的 Keggin 型杂多化合物的合成:将一定量的 Na₅PW₁₁O₃₉Co(II)(H₂O)溶解在装有适量的去离子水烧杯中,在磁力搅拌下将一定量的饱和溴代十六烷基吡啶滴加到 Na₅PW₁₁O₃₉Co(II)(H₂O)溶液中,搅拌 1 h,静置过夜。抽滤,洗涤得到固体,在 60 °C 烘干得到 (C_{pyr})₅PW₁₁O₃₉Co(II)粉末(记作 (C_{pyr})₅PW₁₁Co)。经计算,(C_{pyr})₅PW₁₁Co 的产率为 91.3%。

1.3 催化性能测试

在三口烧瓶中依次加入底物苯乙烯、一定量的催化剂和氧化剂叔丁基过氧化氢,磁力搅拌,80 °C 回流。反应结束后,冷却、过滤,分离出催化剂,取滤液进行定性定量分析。

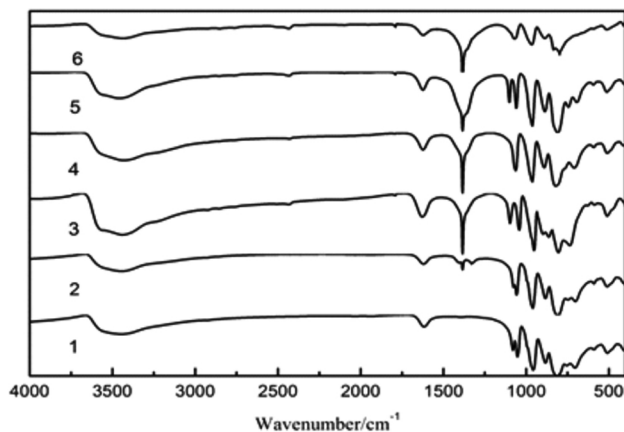
1.4 分析条件

用内标法(正烷作内标物)对苯乙烯及环氧产物进行定量分析。色谱条件为:SE-54 毛细管柱(0.32 mm×0.5 μm×30 m),载气为高纯氮气,FID 检测,检测器温度为 250 °C,进样器温度为 250 °C,柱压 0.6 MPa,分流,柱温 80 °C。

2 结果与讨论

2.1 红外表征

FT-IR 表征的是杂多化合物的一级结构,Keggin 型的杂多酸盐 Na₃PW₁₂O₄₀ 在 700~1 100 cm⁻¹ 的范围内有四个特征峰^[14-15],1 079 cm⁻¹,983 cm⁻¹,850~890 cm⁻¹,760~800 cm⁻¹ 分别为 P-O_a, W=O_d, W-O_b-W, W-O_c-W 的反对称伸缩振动。当结构中缺失一个 WO 单元成为 Na₇PW₁₁O₃₉ 后,仍然保持 Keggin 型的几何结构。但由于存在结构缺陷,导致对称性由 T_d 降为 C_s,四面体中心的 P-O_a 键和八面体桥氧键 W-O_b-W、W-O_c-W 的振动吸收均分裂为两个吸收峰。从图 1 中可以看到,P-O_a 的反对称伸缩振动吸收峰分裂为 1 079 cm⁻¹ 和 1 053 cm⁻¹ 两个峰;W-O_b-W 分裂为 885 cm⁻¹ 和 813 cm⁻¹;而 W-O_c-W 则分裂为 754 cm⁻¹ 和 705 cm⁻¹;W=O_d 的振动吸收峰虽未分裂,但振动减弱,频率由 983 cm⁻¹ 降为 956 cm⁻¹。



1 为 PW_{11} ; 2 为 $PW_{11}Co$; 3 为 $PW_{11}Mn$; 4 为 $PW_{11}Ni$; 5 为 $PW_{11}Cu$; 6 为 $PW_{11}Fe$
图 1 催化剂的 FTIR 谱

过渡金属取代单缺位的 Keggin 型磷钨杂多化合物得到的产物在 IR 图上显示出了 Keggin 结构的五个特征振动吸收峰, 分别对应 $P-O_a$ 、 $W=O_d$ 、 $W-O_b-W$ 和 $W-O_c-W$ 的反对称伸缩振动. 过渡金属离子接到 $PW_{11}O_{39}^{7-}$ 的准八面体空位之后, 形成 $M(II/III)(H_2O)$ 单元, 弥补了 $PW_{11}O_{39}^{7-}$ 的空缺. 此外, 在图中的 1625 cm^{-1} 和 1384 cm^{-1} 处, 还可以观察到结构水和配位水的振动吸收峰. 测试结果表明, 合成的样品保持了 Keggin 型结构.

2.2 XRD 表征

XRD 表征的是杂多化合物的二级或三级结构. $PW_{11}O_{39}M(II/III)(H_2O)$ 的 XRD 谱图如图 2 所示, $(Cpyr)_5PW_{11}Co$ 的衍射峰主要集中在 $2\theta=8\sim 10^\circ$ 、 $16\sim 20^\circ$ 、 $26\sim 30^\circ$ 和 $33\sim 35^\circ$, 这与文献[16]报道的结果一致, 说明所合成的杂多化合物具有 Keggin 结构.

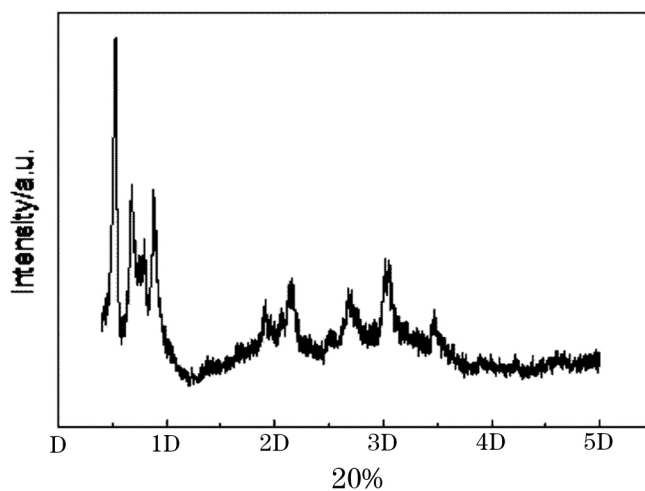


图 2 催化剂 $(Cpyr)_5PW_{11}Co$ 的 XRD 谱

2.3 催化性能分析

2.3.1 催化剂种类对苯乙烯氧化反应的影响

由表 1 可知, 五种过渡金属取代单缺位杂多化合物对苯乙烯催化都具有一定的活性, 产物主要有苯甲醛、苯乙醛、环氧苯乙烯、苯甲酸. 各催化剂对苯乙烯氧化生成苯甲醛的活性系列依次为 $(Cpyr)_5PW_{11}Co > (Cpyr)_5PW_{11}Ni > (Cpyr)_5PW_{11}Cu > (Cpyr)_5PW_{11}Mn > (Cpyr)_5PW_{11}Fe$. 生成环氧苯乙烯的选择性为 $(Cpyr)_5PW_{11}Co > (Cpyr)_5PW_{11}Ni > (Cpyr)_5PW_{11}Mn > (Cpyr)_5PW_{11}Fe > (Cpyr)_5PW_{11}$

Cu, 其中 $(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Co}$ 的催化活性最高.

表 1 过渡金属取代杂多化合物对苯乙烯催化活性的影响结果

催化剂种类	苯乙烯的 转化率/%	产物选择性/%			
		苯甲醛	苯乙醛	环氧苯乙烷	苯甲酸
$(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Fe}$	45.78	31.02	14.11	48.36	6.42
$(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Co}$	89.3	15.21	3.93	78	2.84
$(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Ni}$	82.17	13.68	9.76	71.96	4.11
$(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Cu}$	57.91	48.19	36.51	12.22	3.07
$(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Mn}$	56.12	22.02	23.38	50.15	4.34

注: 反应条件苯乙烯为 8.7 mmol、氧化剂 TBHP 为 25 mmol、催化剂 $(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Co}$ 为 0.04 mmol, 溶剂 1,2-二氯乙烷为 10 mL, 反应温度为 80 °C, 反应时间为 8 h.

2.3.2 反应条件对苯乙烯氧化反应的影响

以 $(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Co}$ 为催化剂、1,2-二氯乙烷为溶剂, 分别考察了催化剂用量、氧化剂用量、反应温度、反应时间对苯乙烯氧化反应的影响.

2.3.2.1 催化剂用量对苯乙烯氧化反应的影响

催化剂用量对苯乙烯氧化反应的影响如图 3 所示, 其他条件不变, 随着催化剂 $(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Co}$ 用量从 0.01 mmol 到 0.04 mmol, 苯乙烯的转化率逐渐增大, 在 0.04 mmol 之后转化率略微下降, 可能是由于催化剂过量导致氧化剂的分解速度过快, 有效利用率反而降低. 而环氧苯乙烷的选择性随催化剂用量的增加先增加后减少, 在 0.04 mmol 达到最大值. 因此, 为了兼顾苯乙烯的转化率和环氧苯乙烷的选择性, 适宜的催化剂用量应为 0.04 mmol.

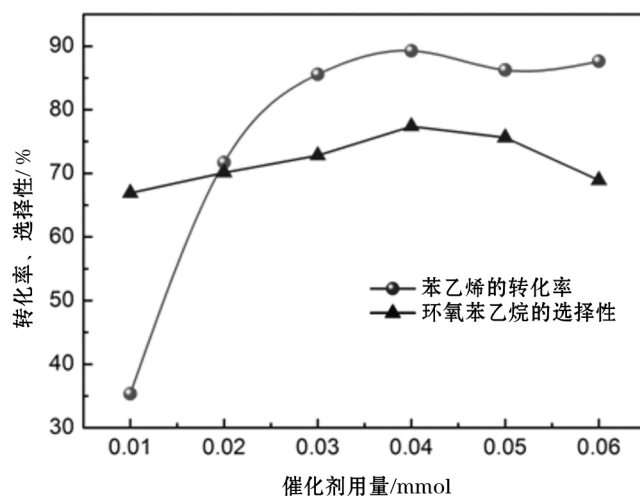


图 3 催化剂用量对苯乙烯氧化反应的影响

注: 反应条件苯乙烯为 8.7 mmol, 氧化剂叔丁基过氧化氢用量为 25 mmol, 1,2-二氯乙烷 10 mL, 反应温度为 80 °C, 反应时间为 8 h.

2.3.2.2 氧化剂用量对苯乙烯氧化反应的影响

其他条件不变, 由图 4 可知, 随着叔丁基过氧化氢用量增加, 苯乙烯的转化率和环氧苯乙烷选择性都随之增大. 当氧化剂叔丁基过氧化氢用量继续增加至 25 mmol 时, 苯乙烯的转化率基本不变, 但环氧苯乙烷的选择性快速降低. 这可能是苯乙烯发生深度氧化, 生成了其他产物. 因此, 叔丁基过氧化氢的较佳用量是 25 mmol.

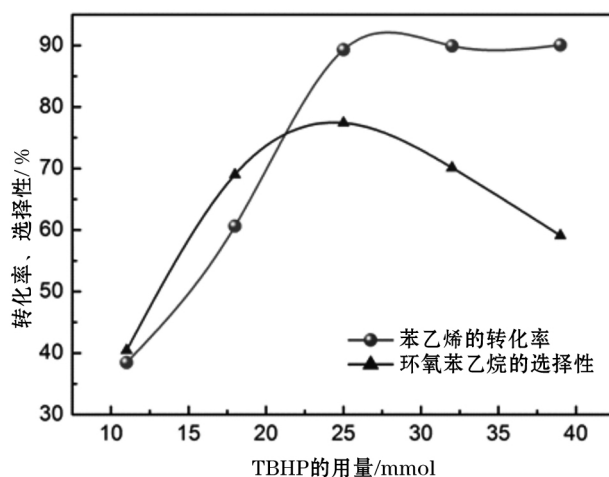


图4 氧化剂用量对苯乙烯氧化反应的影响

注:反应条件苯乙烯为 8.7 mmol, 催化剂 $(\text{Cpyr})_3\text{PW}_{11}\text{Co}$ 用量为 0.04 mmol, 溶剂 1,2-二氯乙烷用量为 10 mL, 反应温度为 80 °C, 反应时间 8 h.

2.3.2.3 反应温度对苯乙烯氧化反应的影响

从 60 °C 到 100 °C 的范围内, 考察了温度对苯乙烯氧化反应的影响. 由图 5 可以看出, 反应温度较低时, 苯乙烯的转化率不到 50%, 环氧苯乙烷的选择性也较低. 原因可能是温度低, 化学反应速率较慢. 随着温度的升高, 反应速率加快, 反应物转化率和产物选择性逐步提高. 当温度继续上升达到 80 °C 时苯乙烯转化率最大, 而环氧苯乙烷的选择性却略微下降. 当温度大于 80 °C 时, 苯乙烯的转化率呈现略微下降, 可能是由于温度过高, 催化剂的表面发生变化, 影响了催化活性, 也可能是温度过高, 氧化剂的有效利用率反而较低, 从而导致目标产物的选择性也大幅度降低. 温度高有利于生成较多的苯甲醛、苯乙醛和深度氧化产物甲酸. 因此最适宜的反应温度为 80 °C.

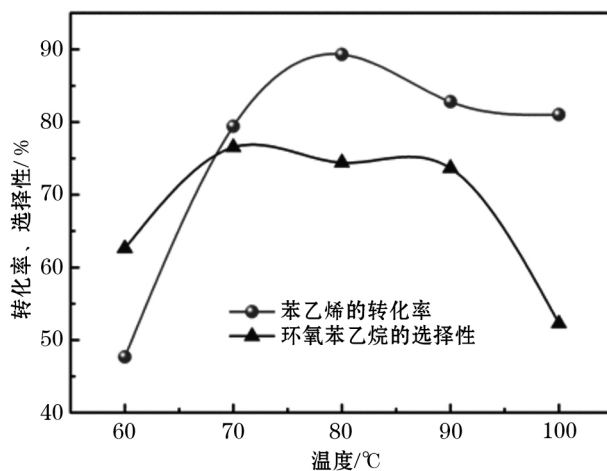


图5 反应温度对苯乙烯氧化反应的影响

注:反应条件苯乙烯为 8.7 mmol, 催化剂 $(\text{Cpyr})_3\text{PW}_{11}\text{Co}$ 用量为 0.04 mmol, 溶剂 1,2-二氯乙烷用量为 10 mL, 氧化剂叔丁基过氧化氢用量为 25 mmol, 反应时间 8 h.

2.3.2.4 反应时间对苯乙烯氧化反应的影响

如图 6 所示, 随着反应时间的延长, 苯乙烯的转化率增大, 但环氧苯乙烷的选择性呈现减小趋势. 当反应时间大于 8 h 时, 苯乙烯的转化率增加幅度不大, 但环氧苯乙烷的选择性却明显降低, 这与生成了其他副产物有关, 可能是生成的苯甲醛又深度氧化生成过多的苯甲酸, 环氧苯乙烷异构化生成了苯乙醛, 从而影响了目标产物选择性. 综合各种因素, 较佳反应时间为 8 h.

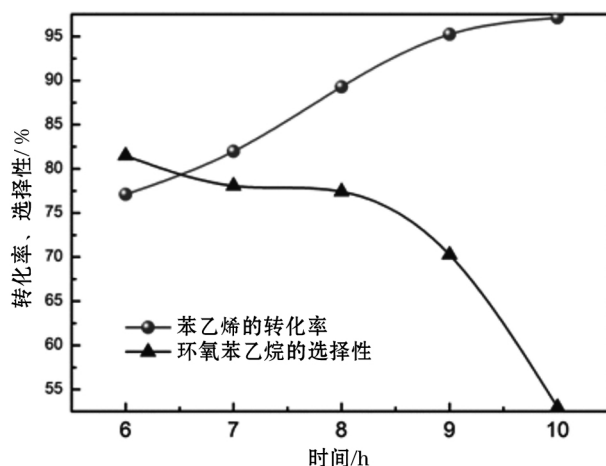


图 6 反应时间对苯乙烯氧化反应的影响

注:反应条件苯乙烯为 8.7 mmol, 催化剂 $(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Co}$ 用量为 0.04 mmol, 溶剂 1,2-二氯乙烷用量为 10 mL, 氧化剂叔丁基过氧化氢用量为 25 mmol, 反应温度为 80 °C.

2.3.3 催化剂的重复利用性能

为了研究催化剂的循环稳定性,笔者进行了催化剂的重复使用试验.催化反应完成之后,冷却过滤分离出催化剂,用去离子水冲洗多次,真空干燥,适量补充新鲜催化剂,结果如表 2 所示.催化剂重复利用 3 次,催化活性未见明显降低,说明该催化剂循环稳定性好.

表 2 催化剂的重复使用对苯乙烯催化活性的影响结果

催化剂	苯乙烯转化率 / %	环氧苯乙烯的选择性 / %
新鲜 $(\text{Cpyr})_5[\text{PW}_{11}\text{CoO}_{39}]$	89.3	78.0
循环 1 次 $(\text{Cpyr})_5[\text{PW}_{11}\text{CoO}_{39}]$	88.6	77.5
循环 2 次 $(\text{Cpyr})_5[\text{PW}_{11}\text{CoO}_{39}]$	85.4	76.6
循环 3 次 $(\text{Cpyr})_5[\text{PW}_{11}\text{CoO}_{39}]$	81.7	76.2

注:反应条件苯乙烯为 8.7 mmol, 催化剂 $(\text{Cpyr})_5\text{PW}_{11}\text{Co}$ 用量为 0.04 mmol, 溶剂 1,2-二氯乙烷用量为 10 mL, 氧化剂叔丁基过氧化氢用量为 25 mmol, 反应温度为 80 °C, 反应时间为 8 h.

3 结论

用溴代十六烷基吡啶改性的多金属氧酸盐催化剂,在叔丁基过氧化氢作氧化剂的条件下,以苯乙烯催化氧化制环氧苯乙烯作为探针反应,考察了催化性能.结果表明,过渡金属 Co 和杂多阴离子的相互作用使催化活性提高,溴代十六烷基吡啶的加入使催化剂便于分离、回收和利用.这为开发环境友好的多功能杂多酸催化剂提供了思路.

参考文献:

- [1] PATELA. Ru-exchanged Supported 12-tungstophosphoric Acid for Selective Liquid Phase Aerobic Oxidation of Styrene under Solvent-free Conditions[J]. Recent Patents on Catalysis, 2013, 2(1): 82-87.
- [2] PAN D, XU Q, DONG Z, et al. Facile synthesis of highly ordered mesoporous cobalt-alumina catalysts and their application in liquid phase selective oxidation of styrene[J]. RSC Advances, 2015, 5(119): 98377-98390.
- [3] YANG H H, WANG G, YAN S S, et al. Liquid-Phase Catalytic Oxidation of Styrene by a Fiber-Supported Copper(II) Complex with High Catalytic Performance[J]. Advanced Materials Research, 2014, 1033-1034: 61-64.
- [4] 贾赞蓉, 杜立永, 丁玉强. 氧气压力对钴基催化剂催化苯乙烯环氧化的影响[J]. 工业催化, 2019(11): 37-43.
- [5] 屈金兰, 张世祖, 廖九英, 等. 一步合成介孔碳-金复合催化剂及其在苯乙烯环氧化中的应用[J]. 湖南师范大学(自然

- 科学学报), 2018(4):59-65.
- [6] 王洁. 功能修饰 Keggin 型过渡金属取代的杂多化合物的合成、表征及催化性能研究[D]. 兰州: 兰州理工大学, 2012.
- [7] 李贵贤, 高云艳, 张雪梅, 等. 叔丁基过氧化氢一步氧化乙苯合成苯乙酮[J]. 石油化工, 2011, 40(6):599-602.
- [8] LI WW, CAI SN, TIAN ZF, et al. A sandwich-type tungstoantimonatederivative; Synthesis, characterization and catalytic in H_2O_2 -based oxidation of cyclooctene[J]. Inorganic Chemistry Communications, 2019, 104:36-39.
- [9] 李贵贤, 王成君, 王小瑞, 等. $H_3PW_{12}O_{40}/H_2O_2/H_2O$ 体系催化氧化苯甲醇合成苯甲醛[J]. 兰州理工大学学报, 2012, 38(4):58-63.
- [10] 王志强, 孙文晶, 储伟, 等. 过氧化氢与苯乙烯环氧化的反应机理及溶剂效应[J]. 物理化学学报, 2011(2):68-74.
- [11] DUARTE T A G, ESTRADA A C, SIMões, MÁRIO M. Q, et al. Homogeneous catalytic oxidation of styrene and styrene derivatives with hydrogen peroxide in the presence of transition metal-substituted polyoxotungstates[J]. Catal. sci. technol., 2015, 5(1):351-363.
- [12] 吴云. 单缺位 Keggin 型磷钨杂多酸盐催化 H_2O_2 环氧化烯烃[D]. 湘潭: 湘潭大学, 2013, 31-43.
- [13] BREVARD C, SCMPF R, TOURNE G, et al. Tungsten-183 NMR; A complete and unequivocal assignment of the tungsten-tungsten connectivities in heteropolytungstates via two-dimensional 183W NMR techniques[J]. J. Am. Chem. Soc., 1983, 105:7059-7063.
- [14] 李贵贤, 王成君, 周洋, 等. 改性二氧化硅固载磷钨酸催化合成环己酮甘油缩酮[J]. 精细化工, 2012(5):61-64, 109.
- [15] QU H, LIU B, LI L, et al. A bifunctional recoverable catalyst based on phosphotungstic acid for cellulose hydrolysis to fermentable sugars[J]. Fuel Processing Technology, 2020, 199:106272.
- [16] 王敬平. Keggin 结构单缺位阴离子 $PW_{11}O_{39}^{8-}$ 稀土衍生物的合成、结构及性质研究[C]// 中国化学会学术年会无机与配位化学分会场, 2008.

Preparation of Mono-vacancy Phosphotungstic heteropoly Compounds and Experimental Design of Their Catalytic Performance

WANG Cheng-jun¹, SU Qiong¹, LI Gui-xian², WANG Jie², DUAN Zhi-ying¹

(1. Key Laboratory of Utility of Environmental Friendly Composite Materials and Biomass in Universities of Gansu Province, School of Chemical Engineering, Northwest Minzu University, Lanzhou 730030, China;
2. College of Petrochemical Engineering, Lanzhou University of Technology, Lanzhou 730050, China)

[Abstract] A series of transition metal substituted mono-vacancy Keggin-type phosphotungstic heteropoly compounds $PW_{11}O_{39}M$ (II/III) ($M=Fe, Co, Ni, Cu, Mn$), modified by cetylpyridinium bromide were synthesized and characterized by IR and X-ray spectra. Using it as a phase transfer catalyst, the catalytic activity of the synthesized heteropoly compounds for the oxidation of styrene was evaluated. The effects of reaction temperature, reaction time, the amount of catalyst and tert-butyl hydrogen peroxide on the oxidation of styrene catalyzed by $(Cpyr)_5PW_{11}Co$ were investigated. The results show that, $(Cpyr)_5PW_{11}Co$ has the highest catalytic activity when the transition metal substituted mono-vacancy Keggin structure phosphotungstic heteropoly compound is synthesized when the reaction temperature is $80\text{ }^\circ\text{C}$ and the reaction time is 8 hours. The conversion of styrene is as high as 89.3%, and the selectivity of the target product ethylene oxide is 78%. The reusability of the catalyst is good.

[Key words] Mono-vacancy heteropoly compounds; Catalytic oxidation; Styrene; Ethylene oxide

(责任编辑 朱兴红)