

Theo yêu cầu của khách hàng, trong một năm qua, chúng tôi đã dịch qua 16 môn học, 34 cuốn sách, 43 bài báo, 5 sổ tay (chưa tính các tài liệu từ năm 2010 trở về trước) Xem ở đây

**DỊCH VỤ  
DỊCH  
TIẾNG  
ANH  
CHUYÊN  
NGÀNH  
NHANH  
NHẤT VÀ  
CHÍNH  
XÁC  
NHẤT**

Chỉ sau một lần liên lạc, việc dịch được tiến hành

Giá cả: có thể giảm đến 10 nghìn/1 trang

Chất lượng: Tao dựng niềm tin cho khách hàng bằng công nghệ 1. Bạn thấy được toàn bộ bản dịch; 2. Bạn đánh giá chất lượng. 3. Bạn quyết định thanh toán.

Tài liệu này được dịch sang tiếng việt bởi:

**[www.mientayvn.com](http://www.mientayvn.com)**

Tìm bản gốc tại thư mục này (copy link và dán hoặc nhấn Ctrl+Click):

<https://drive.google.com/folderview?id=0B4rAPqlxIMRDSFE2RXQ2N3FtdDA&usp=sharing>

Liên hệ để mua:

[thanhlam1910\\_2006@yahoo.com](mailto:thanhlam1910_2006@yahoo.com) hoặc [frbwrthes@gmail.com](mailto:frbwrthes@gmail.com) hoặc số 0168 8557 403 (gặp Lâm)

Giá tiền: 1 nghìn /trang đơn (trang không chia cột); 500 VND/trang song ngữ

Dịch tài liệu của bạn: [http://www.mientayvn.com/dich\\_tiang\\_anh\\_chuyen\\_nghanh.html](http://www.mientayvn.com/dich_tiang_anh_chuyen_nghanh.html)

### 3. Results and discussion

#### 3. Kết quả và thảo luận

##### 3.1. Optimization of the catalyst components for the glycerol oxidation to DHA

###### 3.1. Tối ưu hóa các thành phần xúc tác cho quá trình oxy hóa glycerol thành DHA

We reported that Pd–Ag/C showed higher catalytic performance in glycerol oxidation to DHA than Pd/C and Ag/C [26]. The performance of various Pd/C catalysts combined with Ti, Mn, Ni, Re, Ir, Au, and Bi was compared with that of Pd–Ag/C (Table 2). The amount of additive metal was fixed at 1 by the molar ratio of the additive to Pd, which is the best composition for Pd–Ag/C [26]. Pd–Ag/C showed highest DHA selectivity and conversion.

Chúng tôi phát hiện rằng trong quá trình oxy hóa glycerol thành DHA, Pd–Ag/C có đặc tính xúc tác cao hơn so với Pd/C and Ag/C [26]. Đặc tính của các chất xúc tác Pd/C khác nhau được kết hợp với Ti, Mn, Ni, Re, Ir, Au, và Bi được so sánh với đặc tính xúc tác của Pd–Ag/C (Bảng 2). Lượng kim loại thêm vào được giữ không đổi ở 1 qua tỉ số mol của chất phụ gia thêm vào Pd, đó là tỷ lệ hợp phần tốt nhất đối với Pd–Ag/C [26]. Pd–Ag/C có khả năng chọn lọc và chuyển đổi DHA cao nhất.

A variety of supports, including carbon, SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub> and CeO<sub>2</sub>, for Pd–Ag catalysts were compared in Table 3. All catalysts except Pd–Ag/CeO<sub>2</sub> showed high selectivity to DHA. DHA yield over catalysts with various supports after long reaction time (24 h) decreased in the following order: carbon > SiO<sub>2</sub>>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>>ZrO<sub>2</sub> > TiO<sub>2</sub> > CeO<sub>2</sub>. In terms of TON, carbon, SiO<sub>2</sub>, and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> supports gave high activity. However, the reaction rate over Pd–Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> rapidly decreased. Therefore, we focused on Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> as well as Pd–Ag/C in the following studies.

Vài loại nền, bao gồm carbon, SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub> và CeO<sub>2</sub>, cho các chất xúc tác Pd–Ag được so sánh trong bảng 3. Tất cả các chất xúc tác ngoại trừ Pd–Ag/CeO<sub>2</sub> có sự chọn lọc cao đối với DHA. Sản lượng DHA so với các chất xúc tác với các nền khác nhau sau khoảng thời gian phản ứng dài (24h) giảm theo thứ tự sau carbon > SiO<sub>2</sub>>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>>ZrO<sub>2</sub> > TiO<sub>2</sub> > CeO<sub>2</sub>. Theo TON, các nền carbon, SiO<sub>2</sub>, and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> có hoạt tính cao. Tuy nhiên, tốc độ phản ứng trên Pd–Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> giảm nhanh. Do đó, chúng ta tập trung vào Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> cũng như Pd–Ag/C trong các nghiên cứu sau.

.....The effect of Ag loading on the catalytic activity was examined on the Pd–Ag/SiO<sub>2</sub>. The amount of Ag was varied from 0.5 to 2 in the molar ratio of Ag to Pd (entries 3–5). The catalysts with more Ag tend to be more selective for DHA formation, and this trend was also observed for Pd–Ag/C [26]. On the other hand, the catalysts with more Pd tend to be more active for glycerol oxidation, and this monotonous trend was different from that of Pd–Ag/C where the catalyst with Ag/Pd = 1 was most active. The reaction time dependences of the aerobic glycerol oxidation over Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> and pretreated Pd–Ag/C (Ag/Pd = 1) were compared ( Fig. 1 ).

Ảnh hưởng của việc tải Ag đến hoạt động xúc tác được kiểm tra trên Pd–Ag/SiO<sub>2</sub>. Lượng Ag thay đổi từ 0.5 đến 2 trong tỉ lệ mol của Ag so với Pd (entries 3–5). Các chất xúc tác với nhiều Ag hơn có khuynh hướng chọn lọc hơn với sự hình thành DHA, và điều này có khuynh hướng xuất hiện đối với Pd–Ag/C [26]. Mặt khác, các chất xúc tác với nhiều Pd hơn có khuynh hướng hoạt động hơn đối với sự oxy hóa glycerol, và khuynh hướng đơn điệu này khác với khuynh hướng của Pd–Ag/C trong đó chất xúc tác

có Ag/Pd = 1 hoạt động mạnh nhất. Sự phụ thuộc thời gian phản ứng của quá trình oxy hóa glycerol aerobic trên Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> và Pd–Ag/C (Ag/Pd = 1) tiền xử lý (được xử lý trước) được so sánh (Hình 1).

.....Both SiO<sub>2</sub>- and C-supported catalysts showed high selectivity to DHA. The initial reaction rate over Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> was comparable to that over Pd–Ag/C. Unlike in the case of Pd–Ag/C which has an induction period, it is speculated that the active structure of Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> is easily formed by the reduction. However, the reaction rate over Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> was decreased faster than over Pd–Ag/C and the reaction stopped at lower conversion.

Cả chất xúc tác nền SiO<sub>2</sub> và C có tính chọn lọc cao đối với DHA. Tốc độ phản ứng ban đầu trên Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> vào cỡ trên Pd–Ag/C. Không giống trường hợp Pd–Ag/C, nó có một khoảng thời gian cảm ứng, có thể đoán là cấu trúc hoạt động của Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> dễ được hình thành qua quá trình khử. Tuy nhiên, tốc độ phản ứng trên Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> giảm nhanh hơn trên Pd–Ag/C và phản ứng dừng với sự chuyển đổi thấp hơn.

We have reported the recyclability of Pd–Ag/C[26] : The activity of the used catalyst is a little lower than that of the fresh one. To ensure that the reaction system is truly heterogeneous, we investigated the reaction time dependence of glycerol oxidation over Pd–Ag/C (Ag/Pd = 1) at O<sub>2</sub> atmosphere and the catalyst was filtered out after 2 h at the reaction temperature (353 K) ( Supplementary Material Fig. S3). Further treatment of the filtrate at the reaction temperature under O<sub>2</sub> did not afford any products. ICP analysis of the filtrate showed that the leaching of Pd and Ag was very small (0.5% and 0.4%, respectively). It can be concluded that the glycerol oxidation over Pd–Ag/C is the heterogeneous system. The deactivation of Pd–Ag/C may be caused by the reversible process such as the poisoning by by-products [26] . The more rapid deactivation of Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> may be caused by the structure change of the catalyst, as discussed below.

Chúng tôi đã phát hiện khả năng tái chế của Pd–Ag/C[26]: Hoạt tính của chất xúc tác được sử dụng thấp hơn của chất mới. Để đảm bảo hệ phản ứng thực sự không đồng nhất, chúng tôi đã nghiên cứu sự phụ thuộc thời gian phản ứng của quá trình oxy hóa glycerol trên Pd–Ag/C (Ag/Pd = 1) trong môi trường O<sub>2</sub> và chất xúc tác được lọc sau hai giờ tại nhiệt độ phản ứng (353K) (Tài liệu bổ sung Hình.S3). Tiếp tục xử lý phân lọc tại nhiệt độ phản ứng trong môi trường oxy không cho ra bất kỳ sản phẩm nào. Phân tích ICP của phần lọc cho thấy rằng tính chiết lọc ( leaching) của Pd và Ag rất nhỏ (tương ứng là 0.5% và 0.4%). Vì thế có thể kết luận rằng quá trình oxy hóa glycerol trên Pd–Ag/C là một hệ không đồng nhất. Sự mất hoạt tính của Pd–Ag/C có thể là do quá trình ngược chẳng hạn như sự nhiễm độc bởi sản phẩm phụ [26]. Sự mất hoạt tính của Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> nhanh hơn nữa có thể là do sự thay đổi cấu trúc của chất xúc tác, như thảo luận bên dưới.

### 3.2. Catalyst characterization

#### 3.2 Xác định tính chất xúc tác

Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> catalysts were characterized by TPR, XRD, TEM, and adsorption studies. The TPR of Pd/SiO<sub>2</sub>, Ag/SiO<sub>2</sub>, and Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> after the calcination at 573 K was carried out. The TPR profile showed that Pd/SiO<sub>2</sub> was completely reduced at ambient temperature and the reduction of Ag/SiO<sub>2</sub> was completed below 473 K. Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> was reduced at lower temperature than Ag/SiO<sub>2</sub>. The TPR profiles confirmed that the reduction of Pd and Ag was completed below 473 K, similarly to Pd–Ag/C [26] . Fig.

2 shows XRD patterns of Pd–Ag/SiO<sub>2</sub>, Pd/SiO<sub>2</sub>, and Ag/SiO<sub>2</sub> after reduction. The pattern of Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> after catalytic use was also shown. The pattern of reduced Pd/SiO<sub>2</sub> showed peaks of Pd metal (Fig. 2 a).

Các chất xúc tác Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> được nghiên cứu bằng các phương pháp TPR, XRD, TEM, và hấp thụ. TPR của Pd/SiO<sub>2</sub>, Ag/SiO<sub>2</sub>, và Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> sau khi canxi hóa ở 573 K được thực hiện. Biên dạng TPR cho thấy rằng Pd/SiO<sub>2</sub> hoàn toàn bị khử ở nhiệt độ môi trường xung quanh và sự khử Ag/SiO<sub>2</sub> là hoàn toàn dưới 473 K. Ag/SiO<sub>2</sub> được khử ở nhiệt độ thấp hơn Ag/SiO<sub>2</sub>. Các biên dạng TPR xác nhận sự khử hoàn toàn Pd và Ag dưới 473 K, tương tự với Ag/SiO<sub>2</sub>. Hình 2 biểu diễn các vân XRD của Pd–Ag/SiO<sub>2</sub>, Pd/SiO<sub>2</sub>, và Ag/SiO<sub>2</sub> sau khi khử. Vân của Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> sau khi sử dụng xúc tác cũng đã biết. Vân của Pd/SiO<sub>2</sub> bị khử có các peak của kim loại Pd (Hình 2a).

.....The pattern of reduced Ag/SiO<sub>2</sub> showed peaks of Ag metal ( Fig. 2 f). The Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 0.5, 1, and 2) after reduction exhibited broad peaks located between the corresponding lines of pure Ag and Pd, which indicate the presence of Pd–Ag alloy phase (Fig. 2 b–d). Pd–Ag/C after the pretreatment with glycerol + O<sub>2</sub>, which shows higher activity than Pd–Ag/C after the reduction, has also the peak of Pd–Ag alloy phase (Fig. 2h) [26]. The peak position of Pd–Ag alloy in Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> shifted to lower angle with increasing Ag content. The presence of unalloyed silver is clearly evident in Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 2) from the two peaks being characteristic of Ag metal. The Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 1) after catalytic use showed peaks of PdO ( Fig. 2 e), showing that Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> was oxidized during catalytic use. The oxidation of the catalyst may be the major cause of the more rapid deactivation of the Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> than Pd–Ag/C.

Vân của Ag/SiO<sub>2</sub> bị khử có các peak của kim loại Ag (Hình 2f). Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 0.5, 1, và 2) sau khi khử có các peak rộng nằm giữa các đường Ag và Pd tinh khiết, nó cho thấy sự hiện diện của pha hợp kim Pd–Ag (Hình 2 b–d). Pd–Ag/C sau khi xử lý trước với glycerol + O<sub>2</sub>, có hoạt tính cao hơn Pd–Ag/C sau khi khử, cũng có peak của pha hợp kim Pd–Ag (Hình.2h) [26]. Vị trí peak của hợp kim Pd–Ag trong Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> dịch sang góc thấp hơn khi hàm lượng Ag tăng. Sự hiện diện của bạc không hợp kim dễ thấy trong Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 2) từ hai peak là đặc trưng của kim loại Ag. Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 1) sau khi dùng để xúc tác có các peak của PdO (hình 2e), cho thấy rằng Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> bị oxy hóa khi sử dụng xúc tác. Sự oxy hóa của chất xúc tác có thể là nguyên nhân lớn làm cho sự mất hoạt tính của Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> nhanh hơn Pd–Ag/C.

The TEM images of Pd/SiO<sub>2</sub>, Ag/SiO<sub>2</sub>, and Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> after the reduction were shown in Fig. 3. The average sizes of the particles were 5–6 nm for Pd/SiO<sub>2</sub> and Ag/SiO<sub>2</sub> (Table 4), while this average sizes agreed well with that from XRD patterns. Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 0.5 and 1) exhibited a similar size distribution, while the average size of particles was 5–6 nm. In Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 2) (Fig. 3f), the average size of particles was 12 nm. This size distribution was caused by the coexistence of the Pd–Ag alloy phase and the unalloyed silver in Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 2). The mean sizes of Pd–Ag alloy particles were slightly larger than that from XRD patterns. These differences may be due to a distribution of composition. The higher magnification TEM images of Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 1) ( Fig. 3e) were used to resolve the d-spacing.

Các ảnh TEM của Pd/SiO<sub>2</sub>, Ag/SiO<sub>2</sub>, và Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> sau khi khử được biểu diễn trong hình 3. Kích thước trung bình của các hạt là 5-6 nm đối với Pd/SiO<sub>2</sub> và Ag/SiO<sub>2</sub> (bảng 4), trong khi đó kích thước trung bình phù hợp tốt với kích thước từ các vân XRD. Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 0.5 và 1) có phân bố

kích thước tương tự, trong khi kích thước trung bình của các hạt là 5-6 nm. Trong Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 2) (Hình. 3f), kích thước trung bình của các hạt là 12 nm. Phân bố kích thước này là do sự tồn tại đồng thời của pha hợp kim Pd–Ag và bạc không hợp kim trong Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 2). Kích thước trung bình của các hạt hợp kim Pd–Ag khá lớn hơn giá trị đó từ các vân XRD. Những sự khác biệt này là do sự phân bố thành phần. Ảnh TEM phóng đại lớn hơn của Pd–Ag/SiO<sub>2</sub> (Ag/Pd = 1) (Hình 3e) được sử dụng để phân giải khoảng cách d.

.....The d-spacing was around 0.231 nm, corresponding to the (1 1 1) planes of the crystallite. For solid solution alloys such as Pd–Ag systems, usually Vegard’s law [29] type behavior is observed which describes a lin-ear variation of the lattice parameter with composition. In order to apply Vegard’s law to the results of this catalyst, the d-spacing of the Pd–Ag alloy was calculated using the lattice constant of pure Pd (0.3980 nm) and pure Ag (0.4086 nm). From the comparison between the line of Vegard’s law and the d-spacing obtained from the TEM image, it is possible to estimate the actual composition. The calculated molar ratio of Ag/Pd is 1.2 for 0.231 nm d-spacing. The calculated molar ratio of Ag/Pd for other three particles was within the range 0.7–1.2 (Supplementary Material Fig. S4). Although some distribution of composition existed and might cause the broadening of XRD peaks, most particles were well alloyed.

Khoảng cách d xung quanh 0.231 nm, tương ứng với các mặt phẳng (111) của tinh thể. Đối với các hợp kim dung dịch rắn chẳng hạn như các hệ Pd–Ag, đặc tính kiểu định luật Vegard [29] thường xuất hiện, nó mô tả sự biến đổi tuyến tính của tham số mạng theo thành phần. Để áp dụng định luật Vegard cho các kết quả của các chất xúc tác này, khoảng cách d của hợp kim Pd–Ag được tính toán dùng hằng số mạng của Pd tinh khiết (0.3980 nm) và Ag tinh khiết (0.4086 nm). Từ việc so sánh giữa các đường của định luật Vegard và khoảng cách d thu được từ ảnh TEM, có thể ước tính thành phần thực sự. Tỷ lệ mol tính toán của Ag/Pd là 1.2 đối với khoảng cách d bằng 0.231 nm. Tỷ lệ mol tính toán của Ag/Pd đối với ba hạt khác nằm trong khoảng 0.7–1.2 (Tài liệu bổ sung Hình. S4). Mặc dù một số phân bố của thành phần tồn tại và có thể gây ra sự mở rộng các peak XRD, đa số các hạt đều hợp kim.