

研究论文

不同前驱体制备的Mn-H4SiW12O40/SiO2 催化剂对二甲醚催化氧化制取甲缩醛反应性能的影响

张清德 谭猗生 杨彩虹 韩怡卓

(1. 中国科学院山西煤炭化学研究所 煤转化国家重点实验室, 山西 太原 030001; 2. 中国科学院研究生院, 北京 100039)

摘要 采用浸渍法分别用硫酸锰、醋酸锰、氯化锰和硝酸锰为原料制备了Mn-H4SiW12O40/SiO2 杂多酸催化剂。在常压连续流动固定床反应器中, 考察了二甲醚选择氧化制取甲缩醛的反应活性。实验结果表明, 催化剂的催化活性顺序为Mn-Cl2H4SiW12O40/SiO2>Mn(NO3)2H4SiW12O40/SiO2>MnSO4H4SiW12O40/SiO2>Mn(AC)2H4SiW12O40/SiO2。并进一步考察了反应温度对不同锰盐前驱体催化剂性能的影响。结果表明, 随温度的升高, 硫酸锰修饰的H4SiW12O40/SiO2 催化剂催化氧化比较剧烈, 在613K时二甲醚转化率高达42.4%, 但此时甲缩醛选择性仅为0.9%。采用氯化锰修饰的H4SiW12O40/SiO2催化剂, 二甲醚催化氧化反应较缓和, 并且甲缩醛的选择性明显高于分别采用硫酸锰、醋酸锰和硝酸锰改性的催化剂, 在593K反应1h时, 二甲醚转化率为8.6%, 甲缩醛选择性达到37.5%。H2-TPR结果显示, 硫酸锰改性的催化剂高温氧化性能明显强于另外三种催化剂, 氯化锰的修饰使得催化剂的低温氧化性能变强。XRD结果表明, MnCl2 H4SiW12O40/SiO2催化剂的衍射特征峰明显强于其他三种催化剂, 并且发现了MnO2衍射特征峰。

关键词 [二甲醚](#); [甲缩醛](#); [催化氧化](#); [前驱体](#); [Mn-H4SiW12O40/SiO2](#)

收稿日期 2006-10-12 修回日期 2007-1-27

通讯作者 韩怡卓 hanyz@sxicc.ac.cn

DOI 分类号 0643

