

КАТАЛИТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ПРОДУКТОВ ТЕРМОЛИЗА ВОЛЬФРАМОМЕТАЛЛАТОВ В РЕАКЦИЯХ ОКИСЛЕНИЯ

Лопанов А.Н.,^б Мороз Я.А.,^а Савоськин М.В.^а

^а*Институт физико-органической химии и углехимии им. Л.М. Литвиненко,
283114, Донецк, ул. Р. Люксембург, 70,
e-mail: jaroslavchem@mail.ru*

^б*Белгородский государственный технологический университет им. В.Г. Шухова,
308012, Белгород, ул. Костюкова, 46*

Гетерополисоединения и продукты их термоллиза входят в состав многокомпонентных катализаторов переработки и гидроочистки углеводородного сырья, окислительных реакций органического синтеза, каталитических электродов для водородных и метанольных топливных элементов и т. д. Целью данной работы является исследование каталитической активности продуктов термического разложения гетерополивольфрамовых соединений с общими формулами: $M_6[(OH)_2XW_9O_{30}] \cdot nH_2O$, $M - Na^+, K^+, NH_4^+$; $X - Fe^{2+}, Co^{2+}, Ni^{2+}$ в реакциях высокотемпературного гетерогенного окисления пропана и акролеина кислородом воздуха.

Продуктами термоллиза калийных солей вольфрамометаллатов железа, кобальта и никеля являются соединения переменного состава со структурой типа пирохлора $K_{1,2}H_{0,4}X_{0,2}W_{1,8}O_{6,4}$, а аммонийных солей – со структурой типа гексагональных вольфрамовых бронз $(NH_4)_{2x}H_{2x}X_xW_{1-x}O_3$, $X - Fe, Co, Ni$. При изучении кислотных характеристик их поверхности установлено наличие кислотных центров средней силы $+1,5 \leq H_0 \leq +3,3$. Концентрация кислотных центров Бренстеда зависит от природы щелочного металла, входящего в состав катализатора. Наибольшую Бренстедовскую кислотность имеют продукты термоллиза аммонийных солей вольфрамометаллатов.

Активность катализаторов в реакции гетерогенного окисления пропана кислородом воздуха возрастает в ряду $Na^+ - K^+ - NH_4^+$ и $Fe - Ni - Co$, т. е. наибольшей активностью обладает вольфрамокобальтат аммония. Рассчитаны константы скоростей окисления пропана в предположении псевдопервого порядка реакции по углеводороду.

Окисление акролеина на вольфрамометаллатах натрия, калия и аммония протекает с образованием акриловой и уксусной кислот. Активность катализаторов при оптимальной температуре возрастает с увеличением концентрации кислотных центров Бренстеда на их поверхности.

Установленные закономерности будут полезны при прогнозировании каталитических свойств аналогичных соединений при создании новых каталитических систем.