

HZSM-5 分子筛用于合成聚甲醛二甲基醚

高晓晨^a, 杨为民^b, 刘志成^b, 高焕新^b

中国石油化工股份有限公司上海石油化工研究院, 上海 201208

GAO Xiaochena, YANG Weiminb, LIU Zhicheng, GAO Huanxin

Shanghai Research Institute of Petrochemical Technology, SINOPEC, Shanghai 201208, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (723KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

摘要 以磷酸二氢铵为前驱体, 使用浸渍法制备了一系列不同磷含量改性的 HZSM-5 分子筛, 并结合 X 射线衍射、N₂ 吸附和氨程序升温脱附等表征结果探讨了催化剂硅/铝比、粒径尺寸、晶体结构、孔结构及表面酸性对其催化甲醇和三聚甲醛反应生成聚甲醛二甲基醚 (PODE_n) 反应性能的影响, 同时与商业催化剂进行了比较. 结果表明, 硅铝比为 50, 粒径尺寸为 5 μm, P₂O₅ 含量较低 (0~6%) 的 HZSM-5 分子筛表现出较高的催化活性和 PODE_n 选择性. 在 130 °C, 原料甲醇和三聚甲醛的质量比为 2:1 的优化条件下反应时, 三聚甲醛转化率可达到 95.2%, PODE_n (n = 2~5) 的选择性为 62.9%, 略好于商业催化剂.

关键词: 聚甲醛二甲基醚 甲醇 三聚甲醛 HZSM-5 分子筛 燃料添加剂

Abstract: Polyoxymethylene dimethyl ethers (PODE_n) were synthesized using methanol (MeOH) and trioxymethylene (TRI) as raw materials. Catalytic performance of acidic molecular sieve HZSM-5 catalyst and PODE_n selectivity were found to be strongly dependent on silica/alumina ratio, particle size, phosphorus modified and etc. A series of HZSM-5 zeolite samples modified with various contents of phosphorus were prepared by impregnation with an ammonium dihydrogen phosphate. The crystal structure, pore structure, and surface acidity of the catalyst were studied by various characterization techniques such as X-ray diffraction, N₂-adsorption, and temperature-programmed desorption of NH₃. Under the mild reaction conditions of 130 °C and raw materials mass ratio MeOH/TRI = 2, methanol conversion and the PODE_n (n = 2 - 5) selectivity were 95.2% and 62.9%, respectively, by using the Pd-modified HZSM-5 catalyst with the optimum conditions (molar ratio of Si to Al was 50, particle size was 5 μm, low-P₂O₅ content (w = 0 - 6%) for the preparation). Catalytic performance of HZSM-5 was higher than that of reference commercial catalysts.

Keywords: polyoxymethylene dimethyl ether, methanol, trioxymethylene, HZSM-5 zeolite, fuel additive

收稿日期: 2012-03-20; 出版日期: 2012-06-15

引用本文:

高晓晨, 杨为民, 刘志成等. HZSM-5 分子筛用于合成聚甲醛二甲基醚[J] 催化学报, 2012, V33(8): 1389-1394

GAO Xiao-Chen, YANG Wei-Min, LIU Zhi-Cheng etc. Catalytic Performance of HZSM-5 Molecular Sieve for Synthesis of Polyoxymethylene Dimethyl Ethers[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012, V33(8): 1389-1394

链接本文:

http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2012.20337 或 http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I8/1389

- [1] Burger J, Siegert M, Ströfer E, Hasse H. Fuel, 2010, 89: 3315 
- [2] Arvidson M, Fakley M E, Spencer M S. J Mol Catal, 1987, 41: 391 
- [3] Bulai A Kh, Oreshenkova T F, Gruzov A G, Slonim I Ya, Urman Ya G, Romanov L M. Vysokomol Soedin, Ser A, 1976, 18: 1371
- [4] Sanfilippo D, Patrini R, Marchionna M. US 2004/0187380 A1. 2004
- [5] 赵启, 王辉, 秦张峰, 吴志伟, 武建兵, 樊卫斌, 王建国. 燃料化学学报 (Zhao Q, Wang H, Qin Zh F, Wu Zh W, Wu J B, Fan W B, Wang J G. J Fuel Chem Technol), 2011, 39: 918 
- [6] Boyd R H. J Polym Sci, 1961, 50: 133 
- [7] Lahaye J, Prado G. Soot in Combustion Systems and Its Toxic Properties. New York: Plenum Press, 1983. 243
- [8] Fleisch T H, Sills R A. Stud Surf Sci Catal, 2004, 147: 31 
- [9] Wang Y, Li G B, Zhu W, Zhou L B. Fuel Process Technol, 2008, 89: 1272 

Service

- ▶ 把本文推荐给朋友
- ▶ 加入我的书架
- ▶ 加入引用管理器
- ▶ Email Alert
- ▶ RSS

作者相关文章

- ▶ 高晓晨
- ▶ 杨为民
- ▶ 刘志成
- ▶ 高焕新

- [10] Zhao X M, Ren M F, Liu Zh G. Fuel, 2005, 84: 2380 
- [11] Russo M, Mortilla L, Nissim G, Fiore L. Chem Ind, 1966, 48: 1284
- [12] Lindamere G W F, Brooks R E, Del E T. US 2 449 469. 1948
- [13] Hagen G P, Spangler M J. US 5 959 156. 1999
- [14] Hagen G P, Spangler M J. US 6 265 528. 2001
- [15] Ströfer E, Schelling H, Hasse H, Blagov S. US 2008/0207955 A1. 2008
- [16] Ströfer E, Hasse H, Blagov S. US 7 700 809. 2010
- [17] Ströfer E, Hasse H, Blagov S. US 7 671 240. 2010
- [18] 舍林 H, 施特勒费尔 E, 平科斯 R, 豪纳特 A, 特贝恩 G D, 哈塞 H, 布拉戈夫 S (Schelling H, Ströfer E, Pincus R, Hunat A, Turbehn G D, Hasse H, Blagov S). CN 101 048 357. 2007
- [19] Chen J, Song H Y, Xia C G, Zhang X Zh, Tang Zh H. US 2010/0056830 A1. 2010
- [20] 雷艳华, 孙清, 陈兆旭, 沈俭一. 化学学报 (Lei Y H, Sun Q, Chen Zh X, Shen J Y. Acta Chim Sin), 2009, 67: 767
- [21] 刘现立, 田恒水, 王贺玲, 潘冬冬. 广东化工 (Liu X L, Tian H Sh, Wang H L, Pan D D. Guangdong Chem), 2009, 36(9): 23
- [22] 李丰, 冯伟樑, 高焕新, 孙洪敏, 杨为民 (Li F, Feng W L, Gao H X, Sun H M, Yang W M). CN 102040491A. 2011
- [23] 李丰, 冯伟樑, 高焕新, 孙洪敏, 杨为民 (Li F, Feng W L, Gao H X, Sun H M, Yang W M). CN 102040488A. 2011
- [24] 滕加伟, 赵国良, 谢在库, 陈庆龄. 催化学报 (Teng J W, Zhao G L, Xie Z K, Chen Q L. Chin J Catal), 2004, 25: 602
- [25] 毛东森, 张斌, 杨为民, 陈庆龄, 卢冠忠. 催化学报 (Mao D S, Zhang B, Yang W M, Chen Q L, Lu G Zh. Chin J Catal), 2006, 27: 1005
- [26] 赵国良, 滕加伟, 金文清, 杨为民, 谢在库, 陈庆龄. 催化学报 (Zhao G L, Teng J W, Jin W Q, Yang W M, Xie Z K, Chen Q L. Chin J Catal), 2004, 25: 3
- [27] 谢有畅, 唐有祺. 北京大学学报 (自然科学版) (Xie Y Ch, Tang Y Q. Acta Sci Nat Univ Peking), 1998, 34: 302
- [28] Zhuang J Q, Ma D, Yang G, Yan Zh M, Liu X M, Liu X Ch, Han X W, Bao X H, Xie P, Liu Zh M. J Catal, 2004, 228: 234 
- [1] 司维峰, 李焕巧, 尹杰, 李书双, 谢妍, 李佳, 吕洋, 刘元, 邢永恒, 徐缓, 宋玉江. 球形分枝结构 Pt 纳米催化剂的合成、纯化及电催化性能[J]. 催化学报, 2012,33(9): 1601-1607
- [2] 刘成, 谭蓉, 孙文庆, 银董红. 离子液体功能化有序介孔 SBA-15 孔壁定域化磷酸铈催化活性中心构建及其催化性能研究[J]. 催化学报, 2012,33(6): 1032-1040
- [3] 林丹, 赵会民, 张小月, 蓝冬雪, 淳远. 甲苯甲醇侧链烷基化反应中甲酸盐的形成及其作用[J]. 催化学报, 2012,33(6): 1041-1047
- [4] 郭荷芹, 李德宝, 陈从标, 范志宏, 孙子罕. V_2O_5/CeO_2 催化剂上甲醇氧化一步法合成二甲氧基甲烷[J]. 催化学报, 2012,33(5): 813-818
- [5] 代新, 高保娇, 雷海波. 交联聚苯乙烯微球固载的双齿席夫碱型氧钒 (IV) 配合物催化分子氧氧化苯甲醇[J]. 催化学报, 2012,33(5): 885-890
- [6] 袁翠峪, 魏迎旭, 许磊, 李金哲, 徐舒涛, 周游, 陈景润, 王全义, 刘中民. 振荡天平结合微反研究程序升温条件下 SAPO-34 催化的甲醇转化[J]. 催化学报, 2012,33(5): 768-770
- [7] 杜治平, 周彬, 黄丽明, 黄晨, 吴元欣, 王存文, 孙炜. $Cu(phen)Cl_2$ 催化甲醇氧化羰基化合成碳酸二甲酯[J]. 催化学报, 2012,33(4): 736-742
- [8] 张敏, 朱万春, 刘钢, 张秀艳, 祖艳红, 张文祥, 闫文付, 贾明君. 以原位形成的磷酸铝骨架为模板制备纳米孔炭[J]. 催化学报, 2012,33(3): 465-472
- [9] 施梅勤, 陈宁宁, 马淳安, 李琪, 魏爱平. 双功能 WC/HZSM-5 催化剂上正己烷芳构化反应性能[J]. 催化学报, 2012,33(3): 570-575
- [10] 张岩, 黄翠英, 王俊芳, 孙琪, 王长生. Ti/SiO_2 催化 H_2O_2 氧化苯甲醇制苯甲醛反应机理的理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(2): 360-366
- [11] 袁翠峪, 魏迎旭, 李金哲, 徐舒涛, 陈景润, 周游, 王全义, 许磊, 刘中民. 程序升温条件下甲醇转化反应及流化床催化剂 SAPO-34 的积碳[J]. 催化学报, 2012,33(2): 367-374
- [12] 张元华, 陈世萍, 袁成龙, 方维平, 杨意泉. 焙烧温度对甲硫醇催化剂 K_2WO_4/Al_2O_3 结构和性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(2): 317-322
- [13] 尹诗斌, 朱强强, 强颖怀, 罗林. 快速功能化碳纳米管载 Pt 催化剂的醇氧化性能研究[J]. 催化学报, 2012,33(2): 290-297
- [14] 王晟, 高艳龙, 王驹, 王栋良, 丁源维, 许学飞, 张晓龙, 江国华. 紫外光还原法制备铂填充硅钛复合纳米管及其光催化性能[J]. 催化学报, 2011,32(9): 1513-1518
- [15] 祝贞科, 谭蓉, 孙文庆, 银董红. 分子印迹聚合物负载纳米金催化剂的制备及其底物识别性能[J]. 催化学报, 2011,32(9): 1508-1512