

Влияние температуры и продолжительности реакции окислительной конденсации метана на строение поверхности и магнитные свойства катализатора MnNaW/SiO₂

© Исмаилов^{1*} Этибар Гуммат оглы, Тагиев¹ Дильгам Бабир, Османова¹⁺ Севиндж Насиб, Азимова¹ Гюнел Рамиз гызы, Зульфугарова¹ Сима Мамед гызы, Садыгов² Назим Магеррам оглы, Абдуллаев² Махаммадали Исахан оглы, Тибаут³ Йорис В.

¹ Институт катализа и неорганической химии имени академика М. Нагиева. пр. Г. Джавида, 113. г. Баку, AZ1143. Азербайджан. Тел.: (+994 12) 539-93-82. E-mail: o.sevinc1985@rambler.ru

² Институт Геологии и Геофизики. пр. Г. Джавида, 119. г. Баку, AZ1143. Азербайджан.

³ Лаборатория химической технологии. Университет Гент. Технопарк 125. 9052 Гент. Бельгия.

*Ведущий направление; +Поддерживающий переписку

Ключевые слова: катализатор MnNaW/SiO₂, строение поверхности, магнитные свойства, окислительная конденсация метана.

Аннотация

Синтезированы образцы Mn,Na,W – содержащего катализатора окислительной конденсации метана (ОКМ) с основой из мезопористого кремнезема и охарактеризованы методами сканирующей электронной микроскопии с энергодисперсионным элементным анализом (СЭМ/ЭДС), рентгеновской дифрактометрии (РФА), электронного парамагнитного резонанса (ЭПР), измерения адсорбции-десорбции газообразного азота. Показано, что под воздействием реакционной смеси метан-кислород с мольным соотношением CH₄-O₂ с CH₄:O₂ = 4:1 изменяется элементный состав и строение поверхности, и если до реакции отношение W/Mn на поверхности катализатора меньше 1, то через 10 ч реакции отношение W/Mn больше 1, т.е. под действием реакционной смеси в условиях реакции поверхность катализатора обогащается вольфрам-содержащими частицами. Под влиянием реакционной смеси в условиях реакции изменяются также магнитное состояние и фазовый состав катализатора. Для этого катализатора в рентгеновских дифрактограммах зарегистрированы фазы MnOx, Na₂WO₄, MnWO₄ и SiO₂. Предполагается, что при температуре реакции ОКМ 750-850 °C фаза Na₂WO₄ находится в расплавленном состоянии и в условиях реакции поверхность кристаллического SiO₂ покрывается расплавленным Na₂WO₄, содержащим наноразмерные частицы MnOx и продукты реакции MnOx с Na₂WO₄. Обнаружено два набора спектров ЭПР для этих образцов с: а) g = 2.01-2.1 и сверхтонкой константой ~ 94 Гс до и б) неразрешенной сверхтонкой структурой и ΔH ~ 600 Гс после реакции, принадлежащих наночастицам MnOx, которые принадлежат MnOx, первый, скорее всего, – наночастицам Mn₂O₃ и второй – MnO. Оцененный размер наблюдаемых наночастиц MnOx составляет менее 10 нм. Резонансный сигнал при g = 2.0 приписан ионам Mn²⁺ с локальным окружением октаэдрической симметрии из кислородных анионов. Сигналы при g = 3.9 и 4.3 приписаны ионам Mn²⁺ в тетраэдрически искаженном ромбическом поле ионов кислорода. Этот пример показывает особенности высокотемпературных реакций, катализируемых многокомпонентными системами, компоненты которых в условиях реакции находятся в различных агрегатных состояниях.

Выходные данные для цитирования русскоязычной версии статьи:

Исмаилов Э.Г. оглы, Тагиев Д.Б., Османова С.Н., Азимова Г.Р. гызы, Зульфугарова С.М. гызы, Садыгов Н.М. оглы, Абдуллаев М.И. оглы, Тибаут Й.В. Влияние температуры и продолжительности реакции окислительной конденсации метана на строение поверхности и магнитные свойства катализатора MnNaW/SiO₂. *Бутлеровские сообщения*. 2022. Т.72. №10. С.95-101. DOI: 10.37952/ROI-jbc-01/22-72-10-95

или

Etibar H. Ismailov, Dilgam B. Taghiyev, Sevinj N. Osmanova, Gunel R. Azimova, Sima M. Zulfgarova, Nazim M. Sadigov, Mahammadali I. Abdullayev, Joris W. Thybaut. Influence of temperature and reaction time of oxidative condensation of methane on the surface structure and magnetic properties of the MnNaW/SiO₂ catalyst. *Butlerov Communications*. 2022. Vol.72. No.10. P.95-101. DOI: 10.37952/ROI-jbc-01/22-72-10-95. (Russian)