

碳酸二甲酯在锌铝复合氧化物上分解行为的红外研究

吴孝敏^{1,2}, 康敏^{1,2}, 李磊¹, 赵宁¹, 魏伟³, 孙予罕^{1,4}, 张炳胜⁵

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. 中国科学院大学, 北京 100049;

3. 中国科学院上海高等研究院 温室气体与环境工程研究中心, 上海 201203;

4. 中国科学院上海高等研究院 低碳转化中心, 上海 201203;

5. 肥城阿斯德化工有限公司, 山东 肥城 271600

In-situ IR study of thermal decomposition of dimethyl carbonate over Zn/Al mixed oxide catalysts

WU Xiao-min^{1,2}, KANG Min^{1,2}, LI Lei¹, ZHAO Ning¹, WEI Wei³, SUN Yu-han^{1,4}, ZHANG Bing-sheng⁵

1. State Key Laboratory of Coal Conversion, Institute of Coal Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Taiyuan 030001, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. Center for Greenhouse Gas and Environmental Engineering, Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201203, China;

4. Low Carbon Conversion Center, Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201203, China;

5. Shandong ACID Chemicals Co., LTD, Feicheng 271600, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章
- 点击分布统计
- 下载分布统计

全文: [PDF](#) (854 KB) [HTML](#) (1 KB) 输出: [BibTeX](#) | [EndNote \(RIS\)](#) [背景资料](#)

摘要 采用尿素热分解法制备锌铝水滑石, 1 073 K下煅烧得到相应的锌铝复合氧化物催化剂。通过XRD谱图确定锌铝复合氧化物ZAO-3 (1 073 K) 催化剂的组分为ZnO相和ZnAl₂O₄尖晶石相。 $\text{NH}_3(\text{CO}_2)$ -TPD结果表明, 当向ZnO中引入Al后, 催化剂的酸碱性位和酸碱性强度都发生改变。采用原位红外(*in-situ* FT-IR)手段, 研究了碳酸二甲酯(DMC)分别在ZAO-3 (1 073 K)、ZnAl₂O₄、ZnO上随着温度变化的分解行为。结果表明, ZAO-3 (1 073 K) 催化剂上大量的弱酸碱性位协同稳定DMC, 抑制DMC的分解。

关键词: 碳酸二甲酯 锌铝复合氧化物 热分解 原位红外

Abstract: ZnO, ZnAl₂O₄ and Zn/Al mixed oxide catalysts were prepared by thermal decomposition of hydrotalcite-like layered precursors derived from urea precipitation at 1 073 K. Both ZnAl₂O₄ and ZnO phases were observed in ZAO-3 catalyst at 1 073 K from XRD patterns. The NH₃-TPD and CO₂-TPD results revealed that the acidity and basicity of Zn/Al mixed oxide catalysts changed with the introduction of Al. Combined with the *in-situ* FT-IR results of dimethyl carbonate (DMC) decomposition over ZAO-3(1 073 K), ZnAl₂O₄, ZnO at various temperatures, it was found that the synergistic effect between acidic and basic sites over ZAO-3 (1 073 K) could stabilize DMC molecules and inhibit the decomposition of DMC.

Key words: dimethyl carbonate Zn/Al mixed oxide thermal decomposition *in-situ* FT-IR

收稿日期: 2013-10-18;

基金资助:

中国科学院院地合作项目。

通讯作者: 赵宁, Tel: 0351-4049612, E-mail: zhaoning@sxicc.ac.cn E-mail: zhaoning@sxicc.ac.cn

引用本文:

吴孝敏,康敏,李磊等. 碳酸二甲酯在锌铝复合氧化物上分解行为的红外研究[J]. 燃料化学学报, 2014, 42(03): 357-361.

服务

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

作者相关文章

- ▶ 吴孝敏
- ▶ 康敏
- ▶ 李磊
- ▶ 赵宁
- ▶ 魏伟
- ▶ 孙予罕
- ▶ 张炳胜

- [1] DELLEDONNE D, RIVETTI F, ROMANO U. Developments in the production and application of dimethylcarbonate[J]. *Appl Catal A: Gen*, 2001, 221(1/2): 241-251.
- [2] PACHECO M A, MARSHALL C L. Review of dimethyl carbonate (DMC) manufacture and its characteristics as a fuel additive[J]. *Energy Fuels*, 1997, 11(1): 2-29.
- [3] BALL, P, FULLMANN H, HEITZ W. Carbonates and Polycarbonates from urea and alcohol[J]. *Angew Chem Int Ed Eng*, 1980, 19(9): 718-720.
- [4] ANDERSON S A, MANTHATA S, ROOT T W. The decomposition of dimethyl carbonate over copper zeolite catalysts[J]. *Appl Catal A: Gen*, 2005, 280(2): 117-124.
- [5] FU Y, ZHU H, SHEN J. Thermal decomposition of dimethoxymethane and dimethylcarbonate catalyzed by solid acids and bases[J]. *Thermochim Acta*, 2005, 434(1/2): 88-92.
- [6] MONTANARI T, SISANI M, NOCCHETTI M, VIVANI R, DELGADO M C H, RAMIS G, BUSCA G, COSTANTINO U. Zinc-aluminum hydrotalcites as precursors of basic catalysts: Preparation, characterization and study of the activation of methanol[J]. *Catal Today*, 2010, 152(1/4): 104-109.
- [7] YANG M, MEN Y, LI S, CHEN G. Hydrogen production by steam reforming of dimethyl ether over $ZnO-Al_2O_3$ bi-functional catalyst[J]. *Int J Hydrogen Energy*, 2012, 37(10): 8360-8369.
- [8] STOIAN D C, TABOADA E, LLORCA J, MOLINS E, MEDINA F, SEGARRA A M. Boosted CO_2 reaction with methanol to yield dimethyl carbonate over Mg-Al hydrotalcite-silica lyogels[J]. *Chem Commun*, 2013, 49(48): 5489-5491.
- [9] 王谋华, 董庆年, 张文郁, 魏伟, 孙予罕. 甲醇在氧化锌表面吸附的研究[J]. 高等学校化学学报, 2006, 27(1): 108-111. (WANG Mou-hua, DONG Qing-nian, ZHANG Wen-yu, WEI Wei, SUN Yu-han. Adsorption of methanol on surface of zinc oxide[J]. Chemical Journal of Chinese Universities, 2006, 27(1): 108-111.)
- [1] 郭凤, 余剑, 牟洋, 初茉, 许光文. 宽工作温度烟气脱硝催化剂制备及反应机理研究[J]. 燃料化学学报, 2014, 42(01): 101-109.
- [2] 王瑞玉, 李忠. $CuNaY$ 分子筛的制备及其催化甲醇氧化羰基化[J]. 燃料化学学报, 2013, 41(11): 1361-1366.
- [3] 张玉涵, 凌凤香, 王少军, 赵国利. $Co-Mo/\gamma-Al_2O_3$ 催化剂的原位红外光谱表征研究[J]. 燃料化学学报, 2013, 41(06): 710-714.
- [4] 毛菟钰, 孙启文, 应卫勇, 房鼎业. 高温沉淀铁基催化剂上费托合成含氧化合物生成机理的研究[J]. 燃料化学学报, 2013, 41(03): 314-322.
- [5] 王增竹, 黄守莹, 申勇立, 王胜平, 马新宾. $Cu\beta$ 催化剂上氧化羰基合成碳酸二甲酯的原位漫反射红外光谱研究[J]. 燃料化学学报, 2012, 40(10): 1212-1221.
- [6] 李泽壮, 陈建刚, 王月伦, 孙予罕. 热分解法制备的 Co/SiO_2 催化剂上费-托合成反应性能[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(1): 54-58.
- [7] 郑华艳, 任军, 周媛, 牛燕燕, 李忠. Cu^+/SiO_2-ZrO_2 催化剂的制备及其催化甲醇氧化羰基化性能[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(04): 282-286.
- [8] 苏小威, 彭伟才, 王峰, 肖福魁, 魏伟, 孙予罕. 介孔硅铝材料上合成水杨酸甲酯的研究[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(04): 315-320.
- [9] 陈冰, 赵宁, 魏伟, 孙予罕. KBr 催化剂上DMC与苯酚甲基化合成苯甲醚的反应机理研究[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(02): 144-148.
- [10] 陈冰, 肖福魁, 赵宁, 魏伟, 孙予罕. 负载型钾盐催化剂用于合成苯甲醚的研究[J]. 燃料化学学报, 2010, 38(05): 600-603.
- [11] 申延明, 王蕾, 李悦, 吴静, 张振祥, 刘长厚. $MgAl-PdCl_4$ 水滑石的合成与表征[J]. 燃料化学学报, 2007, 35(06): 711-715.
- [12] 侯祥松, 张海, 岳光溪. 氧气的体积分数对 N_2O 热分解的影响[J]. 燃料化学学报, 2007, 35(04): 501-504.
- [13] 钱欣平, 凌忠钱, 周昊, 岑可法. 硫化氢热分解制氢过程的化学动力学研究[J]. 燃料化学学报, 2005, 33(06): 722-725.