

论文

Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HZSM-5催化剂上丙烷脱氢反应

任英杰, 华伟明, 乐英红, 高滋

复旦大学化学系, 上海市分子催化和功能材料重点实验室, 上海 200433

摘要:

以直接水热合成和低硅沸石高温水蒸气脱铝两种方法制备了不同Si/Al摩尔比的HZSM-5载体, 考察了Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HZSM-5催化剂上丙烷脱氢制丙烯的反应性能。结合XRD, N<sub>2</sub>气吸附, <sup>27</sup>Al MAS NMR和NH<sub>3</sub>-TPD等表征方法, 讨论了催化剂酸性质和孔性质与性能的关系。实验结果表明, 减少催化剂表面的中强酸量可以显著提高反应的稳定性和丙烯的选择性; 水蒸气脱铝所增加的介孔有同样的效果, 这可能是由于介孔的存在有利于丙烯的脱附和扩散而抑制了寡聚、环化等副反应的发生, 减少了表面积炭的可能性。

关键词: Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HZSM-5 丙烷 脱氢 二氧化碳 稳定性

Dehydrogenation of Propane to Propene over Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HZSM-5 Catalysts

REN Ying-Jie, HUA Wei-Ming, YUE Ying-Hong\*, GAO Zi

Department of Chemistry and Shanghai Key Laboratory of Molecular Catalysis and Innovative Materials, Fudan University, Shanghai 200433, China

Abstract:

Dehydrogenation of propane to propene in the presence of CO<sub>2</sub> was carried out over Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts supported on HZSM-5 with different Si/Al molar ratios. The structural and acidic properties were characterized by XRD, XRF, N<sub>2</sub> adsorption, <sup>27</sup>Al MAS NMR, NH<sub>3</sub>-TPD and model acid-catalyzed reaction. It is found that the stability of supported Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts for the reaction improves with increasing Si/Al molar ratio of HZSM-5 support, which is thought to be caused by the decrease of the acidity of the catalysts, resulting in the suppression of the side reactions. The stability can also be enhanced by the mesopores generated by steaming, due to the promotion of the diffusion and desorption of the propene.

Keywords: Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HZSM-5 Propane Dehydrogenation Carbon dioxide Stability

收稿日期 2009-01-07 修回日期 网络版发布日期

DOI:

基金项目:

国家自然科学基金(批准号: 20633030, 20773027和20773028)、国家“九七三”计划项目(批准号: 2006CB806103)和上海市科学技术委员会(批准号: 08DZ2270500)资助。

通讯作者: 乐英红, 男, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事多相催化剂研究. E-mail: yhyue@fudan.edu.cn

作者简介:

扩展功能

本文信息

Supporting info

PDF(412KB)

[HTML全文]

[\({article.html\\_WenJianDaXiao} KB\)](#)

参考文献[PDF]

参考文献

服务与反馈

把本文推荐给朋友

加入我的书架

加入引用管理器

引用本文

Email Alert

文章反馈

浏览反馈信息

本文关键词相关文章

▶ Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/HZSM-5

▶ 丙烷

▶ 脱氢

▶ 二氧化碳

▶ 稳定性

本文作者相关文章

▶ 黄齐茂

▶ 肖欣

▶ 潘志权

▶ 李志远

▶ 邓鹏星

▶ 章颖

PubMed

Article by Huang, J. M.

Article by Xiao, X.

Article by Bo, Z. Q.

Article by Li, Z. Y.

Article by Deng, F. X.

Article by Zhang, Y.

## 参考文献:

- [1]Gascón J., Téllez C., Herguido J., *et al.* Appl. Catal. A: General[J], 2003, 248(1/2): 105—116
- [2]Barías O. A., Holmen A., Blekkan E. A. J. Catal.[J], 1996, 158(1): 1—12
- [3]Zhaorigetu B., Kieffer R., Hindermann J. P.. 11th International Congress on Catalysis-40th Anniversary, Pts A and B[C], USA: Baltimore MD, 1996, 101: 1049—1058
- [4]Takahara I., Saito M.. Chem. Lett.[J], 1996, (11): 973—974
- [5]Michorczyk P., Ogonowski J.. Appl. Catal. A: General[J], 2003, 251(2): 425—433
- [6]ZHENG Bo(郑波), HUA Wei-Ming(华伟明), YUE Ying-Hong(乐英红), *et al.* Chem. J. Chinese Universities (高等学校化学学报)[J], 2005, 26(9): 1726—1731
- [7]Xu B. J., Zheng B., Hua W. M., *et al.* J. Catal.[J], 2006, 239(2): 470—477
- [8]Zheng B., Hua W. M., Yue Y. H., *et al.* J. Catal.[J], 2005, 232(1): 143—151
- [9]Kazansky V. B., Subbotina I. R., Rane N., *et al.* Phys. Chem. Chem. Phys.[J], 2005, 7(16): 3088—3092
- [10]Frash M. V., van Santen R. A.. J. Phys. Chem. A[J], 2000, 104(11): 2468—2475
- [11]Himei H., Yamadaya M., Kubo M., *et al.* J. Phys. Chem.[J], 1995, 99(33): 12461—12465
- [12]Gonzales N. O., Chakraborty A. K., Bell A. T.. Top. Catal.[J], 1999, 9(3/4): 207—213
- [13]Xu B. J., Li T., Zheng B., *et al.* Catal. Lett.[J], 2007, 119: 283—288
- [14]Xu B. J., Zheng B., Hua W. M., *et al.* Studies in Surface Science and Catalysis[C], Amsterdam: Elsevier, 2007: 1072—1079
- [15]Zatta A., Rabaioli M. R., Radici P., *et al.* Preparation of ZSM-5 Zeolites Comprises Preparing Two Aqueous Solutions of Sodium Aluminate and Sodium Silicate Containing Alumina and Sodium Oxide, and Silicon Dioxide and Sodium Oxide, Followed by Contacting, Adding and Heating. WO2006048188-A1[P], 2006
- [16]Song Y. Q., Zhu X. X., Song Y., *et al.* Appl. Catal. A: General[J], 2006, 302(1): 69—77
- [17]Li Y. N., Liu S. L., Zhang Z. K., *et al.* Appl. Catal. A: General[J], 2008, 338(1/2): 100—113

## 本刊中的类似文章

1. 孙建敏,王亚丽,屈学俭,蒋大振,肖丰收,藤田进一郎,荒井正彦. 溴化四丁铵催化苯乙烯一步合成苯乙烯环状碳酸酯[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(8): 1522-1525
2. 邢滨,李万万,窦红静,孙康.CdTe量子点在液体石蜡体系的制备[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(2): 230-234
3. 徐爱菊,林勤,照日格图,贾美林. Ni-V-O催化剂的合成、表征及其催化性能[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(2): 341-345
4. 罗永明,侯昭胤,郑小明. 高水热稳定的有序介孔硅铝分子筛的合成与表征[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(5): 801-805
5. 陈洁,李惟,喻凌,王丽萍. 合成Exendin-4的体外人血浆稳定性研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(4): 683-685
6. 郑燕玉,胡炳环,林金火. 用混合乳化剂UE20/PVA制备的水包油型生漆乳液的性能[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(7): 1466-1472
7. 余长林,徐恒泳,葛庆杰,李文钊. Zn对Pt-Sn/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>催化剂中Sn的活性状态及丙烷脱氢反应的影响[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(8): 1492-1495
8. 刘钰,路福绥,陈甜甜,高翠丽,朱恒营,赵辉. 不同金属反离子对含高效氯氟菊酯微乳液形成规律及其稳定性的研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(5): 909-912
9. 张志森;张小华;徐伟箭;熊远钦;张正华;夏新年. 新型三官能团脂环族环氧化合物的合成、表征及其阳离子引发光固化活性研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(7): 1380-1384
10. 梁远军,何军林,徐亮,张迪,刘克良. 烷基修饰寡聚脱氧核苷酸磷酸残基的化学合成及稳定性研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(3): 467-471
11. 孙建敏,王路,王亚丽,屈学俭,蒋大振,肖丰收. 溴化锌-卤化正四丁基铵高效催化合成苯乙烯环状碳酸酯[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(3): 502-505
12. 宋学良,金佳科,董浩宇,唐本忠,孙景志. 外围带咪唑基的联苯桥联PPV齐聚物的稳定性[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(11): 2209-2212
13. 朱宇君,李静,杨向光,吴越. 醋酸对环己烷气相氧化脱氢产物选择性影响的研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(6): 1118-1120
14. 曹现福,陈德宏,张靓靓,许凯,陈鸣才. 超临界二氧化碳中丙烯酸与苯乙烯共聚[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(11): 2188-2192
15. 张贻亮,杨忠志. 异构现象与最大硬度原理[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(10): 1941-1944
16. 杨胥微,张晓丰,阚秋斌,付威,黄家辉,吴通好. 微量吸附量热技术在NH<sub>2</sub>-SBA-15合成中的应用[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(6): 1147-1150
17. 李建辉,夏文生,万惠霖. Nb<sup>+</sup>离子活化甲烷脱氢反应机理密度泛函(DFT)研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(12): 2357-2361
18. 戚朝荣,江焕峰,刘海灵,杨少容,邹波. 超临界二氧化碳中马来酸锌催化合成环状碳酸酯[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(6): 1084-1087
19. 高波,朱广山,付学奇,滕利荣,陈静,王春艳,裘式纶. 介孔材料的修饰及固定青霉素酰化酶的稳定性研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(10): 1823-1826
20. 倪哲明,夏盛杰,王力耕,邢方方,潘国祥,胡军. 诺氟沙星插层镁铝水滑石新型药物-无机复合材料的超分子

- 结构、热稳定性和缓释性能[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(7): 1214-1219
21. 倪哲明, 夏盛杰, 王力耕, 邢方方, 潘国祥, 胡军. 诺氟沙星插层镁铝水滑石新型药物-无机复合材料的超分子结构、热稳定性和缓释性能[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(7): 1214-1219
22. 王雷, 孟跃中, 王拴紧, 朱光明. 用于质子交换膜的磺化聚酰亚胺的合成与性能研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(7): 1408-
23. 吉定豪, 刘钢, 贾明君, 张文祥, 王国甲, 吴通好, 王振旅. 溶胶-凝胶和浸渍法制备的铜催化剂在仲丁醇脱氢反应中的研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(8): 1543-1546
24. 毕云枫, 解桂秋, 高仁钧, 鲁静, 曹淑桂. 超嗜热酯酶APE1547中特殊位置氢键对酶活力和热稳定性的影响[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(10): 1914-1916
25. 曹绪龙, 何秀娟, 赵国庆, 宋新旺, 王其伟, 曹嫣嫔, 李英. 表面活性剂疏水链长对高温下泡沫稳定性的影响[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(11): 2106-2111
26. 涂宗财, 汪菁琴, 李金林, 刘成梅, 阮榕生, 李雪婷. 大豆蛋白动态超高压微射流均质中机械力化学效应[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(11): 2225-2228
27. 解桂秋, 高仁钧, 毕云枫, 王中禹, 刘娜, 冯雁, 曹淑桂. 古细菌 *Aeropyrum pernix* K1 超嗜热酯酶APE1547 的热稳定性[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(1): 109-112
28. 王佩, 张艳, 杨振军, 张亮仁, 张礼和. 环腺苷二磷酸核糖类似物的合成、表征及性质[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(2): 314-318
29. 李海丽, 李连之, 郭玉静, 田素燕, 薛泽春, 姜玉岗. 神经红蛋白突变体Tyr44Phe的制备、表征和稳定性研究[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(5): 928-933
30. 宋相伟, 王雪丽, 熊新辉, 牛建丽, 王仕擎, 王丽萍, 李惟. Exendin-4类似物的生物活性及结构[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(6): 1163-1165
31. 张敏, 来水利, 宋洁, 邱建辉. 1,4-环己烷二甲醇对可生物降解聚酯PBS的共聚改性[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(6): 1243-1246
32. 李美超, 胡佳琦, 刘艳娜, 马淳安. 红外光谱法研究苯胺和环氧丙烷的共聚机理及共聚物的表征[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(8): 1544-1548
33. 姜平月, 薛赛凤, 吴明强, 肖昕, 祝黔江, 陶朱. 七元瓜环与 *N,N'*-二烷基-1,3-(4,4'-二吡啶基)丙烷衍生物的相互作用[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(8): 1573-1577
34. 李劼, 郑建明, 郭晓健, 龚正良, 杨勇. 锂离子电池正极材料  $\text{LiNi}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$  的合成、表征及电化学性能[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(7): 1311-1314
35. 张唐志, 陈娣, 侯雪龙, 戴立信. 手性环蕃单膦配体在脱氢氨基酸衍生物的不对称催化氢化中的应用[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(10): 2015-2019
36. 王发祥, 夏立秋, 丁学知, 赵新民, 单世平, 莫湘涛, 张友明, 喻子牛. W544F定点突变提高苏云金杆菌Cry1Ac蛋白的稳定性[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(10): 1999-2002
37. 燕永利, 何飞, 张家明, 屈撑国, 张宁生. 单一非离子表面活性剂制备胶质气体泡沫的稳定性[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(10): 2044-2048
38. 查全性, 黄红良, 王强, 陆君涛, 庄林. 利用pH-电位-稳定性图分析含水聚合物电解质膜电化学反应器中贵金属和贱金属元素的稳定性[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2479-2483
39. 许秀芳, 尚贞锋, 李瑞芳, 赵学庄. 富勒烯衍生物C50X(X=SiH<sub>2</sub>, PH, S)的结构及稳定性的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2413-2419
40. 宋波, 张茜, 彭孝军, 马文辉, 王炳帅, 付新梅. 新型水溶性荧光标示剂吡啶方酸菁染料的合成及光谱性能[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(5): 932-935
41. 庄占兴, 路福绥, 陈甜甜, 刘月, 罗万春. 苯乙烯丙烯酸共聚物分散剂在氟铃脲颗粒界面的吸附性能[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(2): 332-336
42. 杨儒, 李毓姝, 钟旭峰, 李敏.  $\text{CePO}_4$  纳米线的热稳定性及光学性能[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(3): 450-455
43. 田素燕, 李连之, 李海丽, 薛泽春, 杜为红. 重组人细胞红蛋白的表达纯化及谱学表征[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(3): 483-488
44. 高蓉, 马海霞, 严彪, 宋纪蓉, 王迎辉. TDNAZ·HNO<sub>3</sub>和DNAZ·HCl的结构及性能[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(3): 577-582
45. 赵仁保. CO<sub>2</sub>对硅酸钠-丙烯酰胺溶液聚合行为及产物性质的影响[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(3): 596-600
46. 陈兰慧, 胡冬华, 王道武, 杨双阳, 苏忠民, 刘淑莹. 小檗碱质谱碎片离子稳定性分析及碎裂机理的量子化学研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(5): 905-908
47. 王敏, 张晓玉, 龚茂初, 陈清泉, 陈耀强. 高热稳定性、高比表面积低铈型铈钴钨储氧材料的制备及其性能研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(5): 944-947
48. 李霄, 金宁一, 李昌, 田明尧, 陈澍, 贾鹏, 刘立明, 刘妍, 高鹏. 抗肿瘤双特异免疫导向治疗制剂CAtin的表达及活性分析[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(4): 682-686
49. 刘文剑, 路慧哲, 肖玉梅, 王明安, 杜凤沛, 付滨, 李楠, 覃兆海. 炔丙型硫Ylide环丙烷化反应及其立体选择性[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(7): 1357-1360
50. 石国升, 丁益宏. 双取代铵氧化物(R<sub>2</sub>HNO)与双取代羟胺(R<sub>2</sub>NOH)的相互转换机制的理论研究——取代基的电负性和立体效应影响[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(5): 1010-1013
51. 黄嘉, 蒋亚东, 唐先忠, 杜晓松, 毕娟. 新型铱(III)配合物有机磷光材料的合成及性能研究[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(6): 1085-1091
52. 霍志鹏, 戴松元, 张昌能, 刘伟庆, 方霞琴, 蔡墨朗, 郭磊, 王孔嘉, 姜年权, 郑亦庄. 四(十二烷基)氯化铵基小分子凝胶电解质染料敏化太阳电池[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(6): 1214-1218

53. 许秀芳, 尚贞锋, 李瑞芳, 赵学庄.  $C_{50}(D_{5h})$  衍生物-异质富勒烯  $C_{48}P_2$  的分子行为理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(6): 1219-1226

---

文章评论

序号	时间	反馈人	邮箱	标题
				META http Type cont charse Appreciat st