

## NGHIÊN CỨU CHẾ TẠO XÚC TÁC VPO BẰNG PHƯƠNG PHÁP Lò VI SÓNG VÀ ỨNG DỤNG VÀO PHẢN ỨNG ĐỐT CHÁY HỖN HỢP KHÍ HÓA LỎNG

Cổ Thanh Thiện, Nguyễn Trung Kiên, Hồ Phạm Anh Vũ

Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQG-HCM

(Bài nhận ngày 05 tháng 08 năm 2010, hoàn chỉnh sửa chữa ngày 25 tháng 04 năm 2011)

**TÓM TẮT:** Xúc tác vanadium phosphorus oxide (VPO) đã được điều chế bằng phương pháp thông thường và phương pháp lò vi sóng, cả hai phương pháp này đều thu được hiệu suất cao (> 90%). Tuy nhiên, phương pháp lò vi sóng ngoài những ưu điểm về tiết kiệm năng lượng, thời gian, còn cho xúc tác có diện tích bề mặt lớn. Xúc tác này được ứng dụng vào phản ứng đốt cháy hỗn hợp khí hóa lỏng với hiệu suất đốt cháy 100%.

**Từ khóa:** Xúc tác VPO, phản ứng oxi hóa, bức xạ vi sóng, xúc tác dị thể.

### 1. MỞ ĐẦU

Hiện nay, ở Việt nam cũng như nhiều nước trên thế giới, nguồn năng lượng từ khí thiên nhiên thông qua việc sinh ra nhiệt lượng của quá trình đốt cháy đã cung cấp cho các nhà máy nhiệt điện, đốt rác thải và nhất là cấp nhiệt cho các lò nung, lò đốt nồi hơi trong các quá trình sản xuất gốm sứ, thủy tinh, gạch ngói, sấy xà phòng, giặt ủi... Bản chất của quá trình đốt cháy chính là phản ứng oxy hóa hoàn toàn các hợp chất hữu cơ của nhiên liệu bởi oxy có trong không khí. Thông thường, người ta dùng phương pháp đốt bằng nhiệt hay còn gọi là phản ứng đốt cháy đồng thể. Phản ứng đốt cháy bằng nhiệt thường xảy ra không hoàn toàn, do đó, gây tổn kém nhiên liệu và tạo ra nhiều khí độc CO, đồng thời phải tiến hành ở nhiệt độ rất cao (1600-2200 °C) - là vùng nhiệt độ thuận lợi về mặt nhiệt động học cho sự tạo thành NOx, một loại khí thải rất có hại cho sức khỏe của con người và cho môi trường.

Trong khi đó quá trình đốt cháy nhiên liệu có sử dụng xúc tác oxy hóa sẽ đem lại lợi ích đáng kể cho các nhà sản xuất nói riêng và cho nền kinh tế quốc dân nói chung, đồng thời góp phần vào việc bảo vệ môi trường một cách triệt để nhất. Hydrocacbon và các monoxitcacbon (CO) trong quá trình đốt nhiên liệu có thể được chuyển hóa thành CO<sub>2</sub> và H<sub>2</sub>O trên các xúc tác truyền thống là các kim loại quý hiếm trên chất mang như: Pd/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.... Tuy nhiên giá thành của các xúc tác này khá cao, nguồn dự trữ các kim loại quý này ngày càng ít dần trên thế giới, ngoài ra các kim loại này dễ bị ngưng kết khi thực hiện ở nhiệt độ cao. Chính vì vậy ngày nay đã có rất nhiều nghiên cứu cho xúc tác nhằm thay thế chúng.

Xúc tác VPO dạng khối là loại hỗn hợp oxit, là loại xúc tác rẻ tiền, được xem là có hoạt tính đối với phản ứng oxi hóa các hydrocarbon [1,2]. Cho tới nay trên thế giới chỉ quan tâm việc sử dụng xúc tác này cho phản ứng oxi hóa chọn lọc [3]. Việc sử dụng xúc tác VPO này

cho phản ứng oxi hóa hoàn toàn hiện chưa có công trình nghiên cứu nào được công bố tại Việt Nam.

Xúc tác VPO được điều chế rất phức tạp, nhiệt độ tổng hợp xúc tác cao (khoảng 120°C), thời gian điều chế dài (25 giờ), tâm xúc tác chỉ thích hợp cho phản ứng oxi hóa chọn lọc [4]. Để khắc phục vấn đề trên, việc sử dụng dung môi hữu cơ cho quá trình điều chế sẽ làm tăng diện tích bề mặt dẫn đến hoạt tính xúc tác tăng. Ngoài ra, việc sử dụng lò vi sóng trong quá trình điều chế nhằm giảm giá thành xúc tác thông qua việc giảm thời gian, năng lượng.

Trong những năm gần đây, lò vi sóng được sử dụng trong lĩnh vực tổng hợp hữu cơ và nhiều quá trình khác [5]. Tuy nhiên, việc sử dụng lò vi sóng trong điều chế xúc tác thì ít có công trình nghiên cứu nào được công bố. Sử dụng lò vi sóng có thể giúp cải thiện hiệu suất phản ứng và tạo ra sản phẩm có độ tinh khiết hơn khi dùng phương pháp đun nóng cổ điển. Đó là do sản phẩm nằm trong lò vi sóng trong một thời gian rất ngắn ở nhiệt độ cao nên giảm thiểu sự phân hủy và có thể hạn chế được một số phản ứng phụ không mong muốn. Việc sử dụng lò vi sóng trong tổng hợp hữu cơ giúp đơn giản hóa thao tác do đó sẽ rút ngắn được thời gian phản ứng, đồng thời có thể áp dụng cho các phản ứng cần mức năng lượng cao (tăng vận tốc phản ứng, tăng độ tinh khiết của sản phẩm). Mặt khác, vi sóng có khả năng chuyển dịch cân bằng phản ứng, tạo ra các phản ứng phân cực và bay hơi dễ dàng hơn.

Hỗn hợp các oxit trong VPO còn có vai trò khác nhau trong xúc tác. Thành phần V, P, O

có thể tạo một số lượng lớn các hợp chất khác nhau. Ví dụ:  $\alpha$ - và  $\beta$ -VOPO<sub>4</sub>,  $\gamma$ -VOPO<sub>4</sub>, VOHPO<sub>4</sub>, (VO)<sub>2</sub>P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, VO(PO)<sub>3</sub>, và VO(H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>. VPO có tỷ lệ V/P trong giới hạn 1:1 đến 1:2 và có số oxy hóa của V từ 4,0- 4,3. Theo các nghiên cứu đã được công bố (VO)<sub>2</sub>P<sub>2</sub>O<sub>7</sub> là pha hoạt động nhất trong phản ứng oxi hóa n-butan thành anhydric maleic. Tuy nhiên, người ta cũng không phủ nhận vai trò của các oxit khác trong hỗn hợp VPO [6]. Trong phạm vi bài này, chúng tôi đưa ra hướng giải quyết sử dụng xúc tác thích hợp cho phản ứng oxi hóa hoàn toàn hỗn hợp khí hóa lỏng (propan và butan), đồng thời điều chế xúc tác VPO có diện tích bề mặt lớn đặc biệt là sử dụng lò vi sóng.

## 2. THỰC NGHIỆM

### 2.1. Nguyên vật liệu và thiết bị

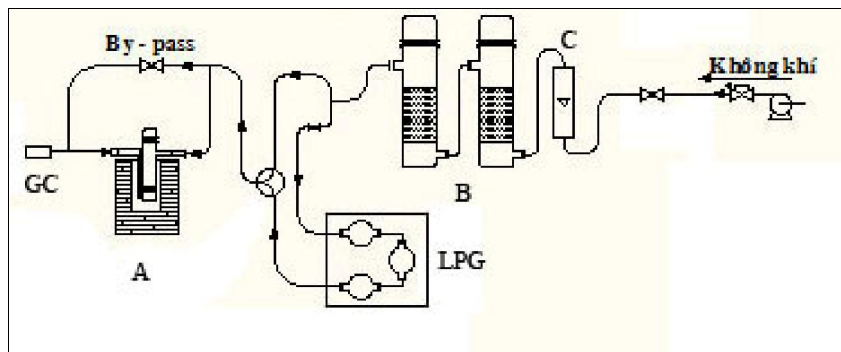
Hỗn hợp khí hóa lỏng được mua từ Sài Gòn Gas, tỉ lệ trung bình propan (25 – 50%) và butan (75-50%). Vanadium oxit 98% và axit phosphoric 85% được mua từ Aldrich, 2-butanol 99%, iso-butanol 99% và alcohol benzyl 99% tiêu chuẩn phân tích được mua từ Merck và sử dụng ngay khi nhận. Phổ nhiễu xạ tia X được thực hiện trên máy Philip X-Ray diffraction với bức xạ Cu K $\alpha$  tại 35 kV/30 mA với góc quét 2 $\theta$  từ 5° – 75° và bước quét 0,2°/phút. Diện tích bề mặt được đo trên máy Single point BET Micromeritic Chembet 3000 sử dụng khí mang N<sub>2</sub>/He ở -198 °C. Quang phổ hồng ngoại được chạy trên máy Bruker-Equinox 55 trong vùng 400-4000 cm<sup>-1</sup>, ép trên KBr. Sắc ký khí ghép khối phổ được đo trên

máy GC HP Agilent Tech 6890N, cột HP5, khí mang là He. Phản ứng điều chế xúc tác được thực hiện trong lò vi sóng Akira 900w.

## 2.2 Điều chế xúc tác VPO bằng phương pháp thông thường

Trong bình cầu 2 cổ dung tích 100 ml trang bị hệ thống hoàn lưu, cho vào lần lượt

vanadium oxit (10 g, 55 mmol) và hỗn hợp 2-butanol (30 ml)/alcohol benzyl (15 ml). Hỗn hợp phản ứng được đun hoàn lưu trong 14 giờ ở 150 °C. Sau đó, thêm vào 8 ml dung dịch axit phosphoric 85%, tiếp tục đun thêm 6 giờ. Kết tủa màu xanh lục được lọc ra và sấy qua đêm ở 110 °C, sau đó nung ở 480 °C trong 8 giờ. Thu được 15 g VPO, hiệu suất 88%.



Hình 1. Sơ đồ phân ứng đốt cháy hỗn hợp LPG

Trong đó A: Bình phản ứng; B: Bình hút âm; C: Lưu lượng kế.

## 2.3 Điều chế xúc tác VPO bằng phương pháp vi sóng

a) *Mẫu VPO-1S*. Trong bình cầu 2 cổ dung tích 100 ml trang bị hệ thống hoàn lưu, cho vào lần lượt Vanadium oxit (2,5 g, mol) và hỗn hợp 2-butanol (10 ml)/alcohol benzyl (5 ml) và axit phosphoric 85% (3,5 g). Hỗn hợp phản ứng được cho vào lò vi sóng đun hoàn lưu trong 1 giờ. Lọc lấy kết tủa và sấy qua đêm ở nhiệt độ 110 °C và nung ở 400 °C trong 8 giờ. Hiệu suất phản ứng thu được 3,8 g, 91%.

b) *Mẫu VPO-2S*. Phản ứng được thực hiện tương tự phản ứng a), nhưng axit phosphoric được thêm vào sau khi đun hỗn hợp trong lò vi sóng được 30 phút và đun tiếp 30 phút trong

cùng điều kiện trước khi lọc lấy kết tủa. Hiệu suất đạt trên 93%, 3,9 g.

c) *Mẫu VPO-2H*. Phản ứng được thực hiện tương tự phản ứng a), nhưng axit phosphoric được thêm vào sau khi đun hỗn hợp trong lò vi sóng được 1 giờ và đun tiếp 1 giờ trong cùng điều kiện trước khi lọc lấy kết tủa. Hiệu suất cô lập trên 91%, 3,8 g.

## 2.4 Phản ứng đốt cháy hỗn hợp khí hóa lỏng

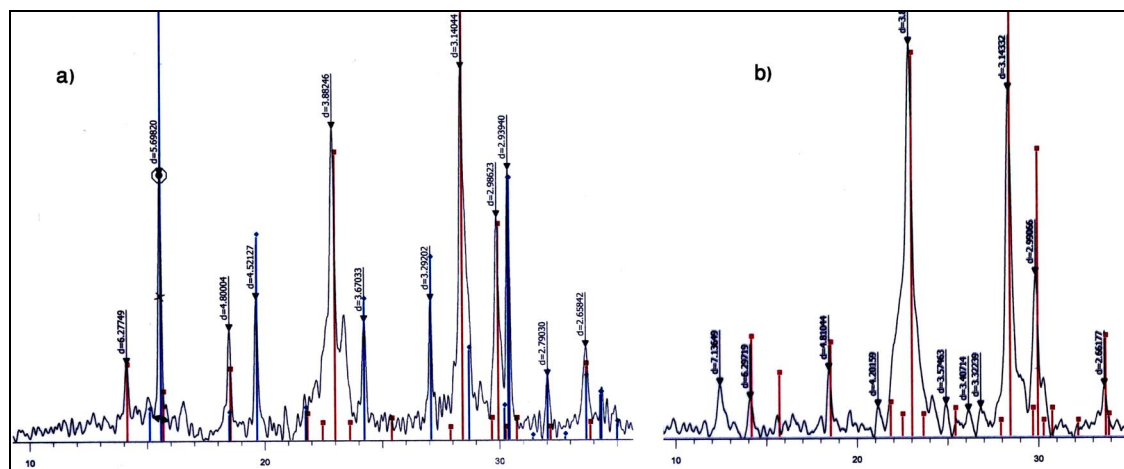
Hỗn hợp khí hóa lỏng được kết nối với hệ thống phản ứng qua đồng hồ chỉnh lưu lượng theo hình 1. Nhiệt độ phản ứng được điều chỉnh thông qua lò phản ứng có bộ điều khiển giới hạn 30 ÷ 600 °C. Vận tốc dòng khí được điều chỉnh cố định ở mức 0,45 lít/giờ. Khí ra

được đưa vào máy GC thông qua kim tiêm chuyên dùng.

### 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Có nhiều phương pháp để điều chế VPO khác nhau nhưng được ưa chuộng nhất trong công nghiệp là phản ứng giữa  $V_2O_5$  và  $H_3PO_4$  tạo  $VOHPO_4 \cdot 0,5H_2O$ . Chất này sau đó được đun nóng để tách nước và hình thành vanadyl pyrophosphat  $(VO)_2P_2O_7$ , đây là pha hoạt tính cho phản ứng oxi hóa hoàn toàn. Phản ứng của  $V_2O_5$  và  $H_3PO_4$  để tạo  $VOHPO_4 \cdot 0,5H_2O$  có thể tiến hành trong môi trường nước hoặc dung môi hữu cơ như isobutyl alcohol. Việc sử dụng dung môi hữu cơ sẽ làm tăng diện tích bề mặt của  $VOHPO_4 \cdot 0,5H_2O$  [7].

Cho đến nay cấu trúc của pha hoạt tính vẫn chưa hoàn toàn sáng tỏ, liệu  $(VO)_2P_2O_7$  tồn tại một mình hay liên kết với các pha khác để tạo pha hoạt tính nhất. Xúc tác vanadium phosphorus oxide không bền, có xu hướng mất P theo thời gian ở nhiệt độ phản ứng. Những điểm nóng trên xúc tác cũng tăng lên cùng với sự mất P này. Vì vậy, dẫn tới giảm độ chọn lọc của phản ứng. Để khắc phục vấn đề trên có thể thêm vào lò phản ứng hợp chất hữu cơ ở dạng hơi có chứa P [7]. Việc thêm vào P giúp kiểm soát được độ chuyển hóa và tăng được độ chọn lọc của xúc tác.



File: VPO.raw - Type: 2Th/Th locked - Start: 5.000 ° - End: 40.000 ° - Step: 0.010 ° - Step time: 1. s - Temp.: 25 °C (Room) - Time Started: 10 s - 2-Theta: 5.000 ° - Theta: 2.500 ° - Chi: 0.00 ° - Phi: 0. °  
 Left Angle: 15.230 ° - Right Angle: 15.880 ° - Left Int.: 2.93 Cps - Right Int.: 2.46 Cps - FWHM: 0.154 ° - Obs. Max: 15.535 ° - d (Obs. Max): 5.69950 - Net Height: 30.2 Cps - Int. Breadth: 0.175 °  
 Operations: Smooth 0.107 | Smooth 0.089 | Strip kAlpha2 0.500 | Background 0.813,1.000 | Import  
 00-050-0380 (\*) - Vanadyl Phosphate -  $(VO)_2P_2O_7$  - Y: 121.70 % - d x by: 1. - WL: 1.5406 - Monoclinic - a 7.73440 - b 16.59840 - c 9.58560 - alpha 90.000 - beta 90.047 - gamma 90.000 - P 1mitve - P  
 01-084-0761 (C) - Vanadyl Hydrogen Phosphate Hydrate -  $VO(HPO_4)(H_2O) \cdot 5$  - Y: 121.72 % - d x by: 1. - WL: 1.5406 - Orthorhombic - a 7.42000 - b 9.60900 - c 5.69310 - alpha 90.000 - beta 90.000 - g

Hình 2. Phổ nhiễu xạ tia X của VPO điều chế bằng vi sóng, a) trước khi hoạt hóa; b) sau khi hoạt hóa

Daxiang và Mark A. Barteau đã điều chế xúc tác VPO theo phương pháp chưng cất đẳng phí không sử dụng lò vi sóng [8], kết quả cho thấy tâm xúc tác chỉ thích hợp cho phản ứng oxy hóa chọn lọc n-butan. Hơn nữa, Andreas Martin và các cộng sự cũng đã điều chế xúc tác VPO [9] với thời gian điều chế dài, mất hàng chục giờ, hiệu suất thu được cũng không cao, sấp xỉ 85%. Việc đưa lò vi sóng vào lĩnh vực điều chế xúc tác đã được nhóm nghiên cứu của Unnikrishnan R. Pillai [7] và nhóm nghiên cứu của Geoffrey A. Tompsett [10] cho thấy hiệu quả rõ rệt của việc sử dụng các tia vi sóng, thời gian điều chế giảm một cách đáng kể dẫn đến việc tiết kiệm được năng lượng. Ngoài ra, sử dụng lò vi sóng còn cho thấy xuất hiện các tâm xúc tác mới, tạo ra sản phẩm đồng nhất hơn phương pháp thông thường. Tuy nhiên, cơ chế cho việc tăng hiệu quả tổng hợp vẫn chưa được hiểu một cách rõ ràng. Dây sóng sử dụng trong công nghiệp, khoa học, y học và gia dụng được

án định ở bước sóng  $\geq 12,2$  cm tức ở tần số  $f = 2.450$  MHz.

### 3.1 Xác định cấu trúc bằng nhiễu xạ tia X

Các mẫu VPO sau khi điều chế được phân tích phổ nhiễu xạ tia X trên máy Phillips Analytical X-ray diffractometer. Kết quả phân tích cho thấy mẫu xúc tác VPO trước và sau khi hoạt hóa (400 °C) có sự khác biệt về cấu trúc và thành phần.

Trên phổ đồ hình 2a, mẫu xúc tác được sấy trong 4 giờ ở 110 °C, so sánh các vạch của phổ với ngân hàng phổ chuẩn ta thấy có sự hiện diện của hai pha là  $\text{VO}(\text{HPO}_4) \cdot 0,5\text{H}_2\text{O}$  và  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$ . Nhưng khi ta tiếp tục nung thêm 4 giờ (hình 2b) ở 400 °C thì sản phẩm được loại hết nước và chỉ tồn tại một pha duy nhất vanadyl pyrophosphat  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$ , các mũ ở vị trí  $23,1^\circ$ ,  $28,4^\circ$  và  $29,9^\circ$  là những mũ đặc trưng đại diện cho pha này. Vai trò chính của  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$  trong phản ứng oxy hóa chọn lọc n-butan được xem là pha hoạt động nhất.

**Bảng 1:** Diện tích bề mặt riêng của xúc tác VPO

STT	Mẫu	Diện tích bề mặt riêng BET ( $\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ )
1	VPO-1S	2,95
2	VPO-2S	78,10
3	VPO-2H	8,56
4	VPO-R <sup>[7]</sup>	16,8

### 3.2 Phản ứng oxy hóa hỗn hợp khí hóa lỏng với xúc tác VPO

Hệ thống phản ứng được lắp đặt theo sơ đồ hệ kín trình bày trên hình 1. Trong đó tốc độ dòng khí vào là 0,45 lít/giờ. Nhiệt độ phản ứng

được thay đổi bằng hệ điều chỉnh nhiệt. Dòng khí ra được kiểm tra bằng máy sắc ký khí GC.

Trên bảng 1 ta thấy mẫu VPO-1S có diện tích bề mặt rất thấp  $2,95 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ . Trong khi đó, VPO-2S và VPO-2H có diện tích bề mặt tương

đổi lớn. Điều này có thể lý giải thông qua cơ chế phản ứng như sau: Trước hết,  $V_2O_5$  sẽ tạo phức liên kết với alcohol thành vanadium alcoholate. Sau đó benzyl alcohol sẽ khử phức này về dạng  $V_2O_4$ . Khi ta thêm  $H_3PO_4$  vào hỗn hợp, thì  $V_2O_4$  sẽ phản ứng với acid để tạo nên VPO, cụ thể là  $(VO)HPO_4 \cdot 0,5H_2O$ . Sau khi nung sẽ chuyển thành  $(VO)_2P_2O_7$ . Nếu như ta bắt đầu phản ứng bằng một hỗn hợp các chất kể cả  $H_3PO_4$  thì phản ứng sẽ xảy ra với  $V_2O_5$  thay

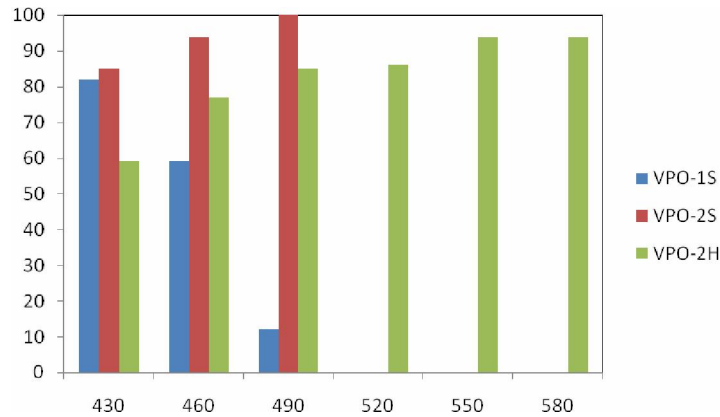
vì  $V_2O_4$ , dẫn đến hiệu suất kém và sản phẩm tạo ra phức tạp. Điều này có thể được lý giải dựa vào yếu tố diện tích bề mặt thu được thấp và phổ nhiễu xạ tia X của mẫu VPO-1S thể hiện trạng thái vô định hình. Cũng chính vì vậy mà trên bảng 2 ta thấy hoạt tính xúc tác của mẫu VPO-1S phức tạp và có khuynh hướng mất hoạt tính khi tăng nhiệt độ phản ứng lên tới  $490\text{ }^\circ\text{C}$ .

**Bảng 2.** Phản ứng đốt cháy hỗn hợp LPG với xúc tác VPO

STT	Tên mẫu	Nhiệt độ ( $^\circ\text{C}$ )	Hiệu suất đốt cháy (%)		
			Propan	Butan	LPG
1	VPO-1S	430	82	83	82
2	VPO-1S	460	58	62	59
3	VPO-1S	490	8	13	12
4	VPO-2S	460	94	94	94
5	VPO-2S	490	100	100	100
6	VPO-2H	430	58	61	59
7	VPO-2H	460	77	77	77
8	VPO-2H	490	84	86	85
9	VPO-2H	520	84	91	86
10	VPO-2H	550	93	97	94
11	VPO-2H	580	93	97	94

Trong khi đó, đối với mẫu VPO-2S, phản ứng qua hai giai đoạn từ  $V_2O_4$  và  $H_3PO_4$  nên diện tích bề mặt thu được lớn, đạt trên  $78\text{ m}^2/\text{g}$ . Kết quả này cao hơn nhiều so với công trình trước đây được công bố bởi Unnikrishnan R. Pillai [7] chỉ có  $16,5\text{ m}^2/\text{g}$ . Đồng thời, phổ

nhiều xạ tia X thể hiện rõ ràng một pha  $(VO)_2P_2O_7$  sau khi nung khử  $H_2O$ . Điều này được thể hiện rõ hơn trong bảng 2, hoạt tính xúc tác của VPO-2S đạt đến tuyệt đối, hỗn hợp khí hóa lỏng bị đốt cháy hoàn toàn (100%) ở nhiệt độ  $490\text{ }^\circ\text{C}$ .



**Hình 3.** Đồ thị biểu diễn hoạt tính của xúc tác

Mặt khác, với mẫu xúc tác VPO-2H, khi tăng thời gian phản ứng trong lò vi sóng từ 30 phút lên 1 giờ, sau khi thêm vào hỗn hợp phản ứng axit phosphoric và tiếp tục phản ứng thêm 1 giờ nữa. Do bức xạ vi sóng trong thời gian khá dài, hình thái bề mặt của sản phẩm có thay đổi, thể hiện diện tích bề mặt giảm đi đáng kể [5] dưới  $10 \text{ m}^2/\text{g}$ , bảng 2. Điều này phù hợp với kết quả được công bố trước đây, hoạt tính xúc tác cho phản ứng oxy hóa chọn lọc của cyclohexane giảm xuống dưới 40% hiệu suất chuyển hóa [7]. Chính vì vậy, mặc dù nhiệt độ phản ứng được tăng lên đến  $490 \text{ }^\circ\text{C}$ , nhưng hiệu suất đốt cháy chỉ đạt 85% và 94% ở nhiệt độ  $550 \text{ }^\circ\text{C}$ . Khi tăng nhiệt độ phản ứng lên cao nữa  $580 \text{ }^\circ\text{C}$ , thì hoạt tính xúc tác bắt đầu giảm. Vì điều kiện phòng thí nghiệm hạn chế, nên chúng tôi không khảo sát nhiệt độ phản ứng cao hơn  $600 \text{ }^\circ\text{C}$ . Tuy nhiên, theo nghiên cứu của nhóm Doshi [11], xúc tác VPO sẽ hoàn toàn mất hoạt tính ở nhiệt độ cao hơn  $700 \text{ }^\circ\text{C}$ .

#### 4. KẾT LUẬN

Xúc tác VPO được điều chế bằng phương pháp lò vi sóng đã thể hiện được những ưu điểm vượt trội so với phương pháp thông thường. Hiệu suất phản ứng điều chế xúc tác thu được trên 90% và diện tích bề mặt tính theo BET đạt trên  $78 \text{ m}^2/\text{g}$  trong thời gian chỉ có 1 giờ. Bên cạnh đó, không chỉ về khía cạnh tiết kiệm năng lượng, thời gian mà xúc tác VPO còn thể hiện hoạt tính cao bằng phản ứng oxy hóa hoàn toàn hỗn hợp khí hóa lỏng (propan và butan) đạt 100% hiệu suất oxy hóa.

Độ bền hóa lý và khả năng tái sử dụng của xúc tác cũng như yếu tố động học để xây dựng một cơ chế phản ứng hoàn chỉnh đang được tiến hành nghiên cứu. Kết quả khảo sát bước đầu cho thấy xúc tác gần như không mất hoạt tính ở nhiệt độ phản ứng  $490 \div 550 \text{ }^\circ\text{C}$  hứa hẹn khả năng mở rộng phạm vi ứng dụng của xúc tác VPO.

**PREPARATION OF VANADIUM PHOSPHORUS OXIDE CATALYST BY USING  
MICROWAVE IRRADIATION AND THEIR APPLICATION TO HYDROCARBON  
COMBUSTION**

**Co Thanh Thien, Nguyen Trung Kien, Ho Pham Anh Vu**

University of Science, VNU - HCM

**ABSTRACT:** Vanadium phosphorus oxide catalysts were prepared by conventional and microwave irradiation method. Both methods generated high yield (> 90%). Nevertheless, VPO catalysts prepared via microwave irradiation method appears to have different surface morphology from that of the catalysts prepared by conventional method. All the catalysts show excellent activities on hydrocarbon combustion reaction (up to 100%).

**Keywords:** VPO catalysts, oxidation, microwave irradiation, heteroheneous catalyst.

**TÀI LIỆU THAM KHẢO**

- phosphate catalysts, Catalysis Communications, 9: 2449–2454 (2008).
- [1]. T.Okuhara, M.Misono, *Key reaction steps and active surface phase of Vanadyl pyrophosphate for seletive oxidation of Butane*, Catal. Today, 16: 61-67 (1993).
- [2]. C. T. Thien, H. P. A. Vu. *Preparation of vanadium phosphorus oxide catalyst by microwave irradiation and their application to cyclohexane oxidation*. J. Chemistry, T.48: 116-120 (2010).
- [3]. J. Guan, H. Xu, S. Jing, S. Wu, Y. Ma, Y. Shao, Q. Kan, *Selective oxidation of isobutane and isobutene over vanadium phosphorus oxides*, Catalysis Communications, 10: 276–280 (2008).
- [4]. P. Nagaraju, N. Lingaiah, P.S. Sai Prasad, V. Narayana Kalevaru, A. Martin, *Preparation, characterization and catalytic properties of promoted vanadium*
- [5]. P. Lidstrom, J. Tierney, B. Wathey, J. Westman, *Microwave-assited organic synthesis – a review*, Tetrahedron, 57: 9225-9283 (2001).
- [6]. K. E. Birkeland, S. M. Babitz, G. K. Bethke, H. H. Kung, *Supported VPO Catalysts for Selective Oxidation of Butane. II. Characterization of VPO/SiO2 Catalysts*, J. Phys. Chem. B, 101: 6895-6902 (1997).
- [7]. U. R. Pillai, E. S. Demessie, *Alternative routes for catalyst preparation: use of ultrasound and microwave irradiation for the preparation of vanadium phosphorus oxide catalyst and their activity for hydrocarbon oxidation*, Applied Catal. A: General, 252: 1-8 (2003).
- [8]. D. Wang and M. A. Barteau, *Kinetics of Butane Oxidation by a Vanadyl*



- pyrophosphate catalyts*, J. Catal. 197: 17-25 (2001).
- [9]. A. Martin, V. N. Kalevaru, B. Lycke, *Defined vanadium phosphorus oxides and their use as highly effective catalysts in ammoxidation of methyl aromatics*, Catal. Today, 78: 311-317 (2003).
- [10]. G. A. Tompsett, W. C. Conner, and K. S. Yngvesson, *Microwave synthesis of hydrid inorganic-organic porous materials*, Chem. Phys. 7: 296-299 (2006).
- [11]. Doshi, M. Bharat, *Patent US 6194587*.