

微波耦合铁基催化剂辅助废塑料裂解脱氢研究

李文涛¹, 钱柯贞^{1,2}, 尹丽洁^{1,2}, 陈德珍^{1,2}

(1. 同济大学 机械与能源工程学院, 上海 200092; 2. 上海多源固废协同处理和能源化工程技术研究中心, 上海 200092)

摘要: 塑料裂解脱氢可以实现废塑料的高值化利用。与传统塑料热解相比, 微波催化可以在较短时间内实现更高的 H_2 产率和转化率。对比研究了不同结构的 Fe 基催化剂在微波场下对塑料脱氢产率的影响, 探讨了催化剂组成与塑料脱氢活性之间的作用机制。结果表明, Al_2O_3 负载型 Fe 催化剂和 Fe-Al 复合氧化物均可以获得较高的 H_2 产率, 并促进碳纳米管的生成, 后者的 H_2 产率可达 46 mmol/g。通过 X 射线衍射和穆斯堡尔谱的表征分析, 发现催化剂的微波吸收性能、催化剂中铁的形态和分散度是决定塑料在微波场下裂解脱氢性能的重要因素。此外, 采用 SiC 管反应器屏蔽微波电磁场, 研究了微波对塑料裂解脱氢反应的影响。在相同的温度条件下, SiC 管反应器中的塑料裂解脱氢性能显著下降, 证明微波电磁场对塑料裂解脱氢反应具有促进作用。

关键词: 微波催化; Fe 基催化剂; 塑料裂解; H_2 产率

中图分类号: TQ 116.2

文献标志码: A

Research on microwave-assisted dehydrogenation of waste plastics over iron-based catalysts

LI Wentao¹, QIAN Kezhen^{1,2}, YIN Lijie^{1,2}, CHEN Dezhen^{1,2}

(1. School of Mechanical and Energy Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China; 2. Shanghai Engineering Research Center of Multi-source Solid Wastes Co-processing and Energy Utilization, Shanghai 200092, China)

Abstract: Plastic dehydrogenation facilitates the revalorization of discarded plastic. Compared with conventional plastic pyrolysis, microwave catalysis can achieve higher H_2 yield and conversion in a shorter time. The effects of different structures of iron-based catalysts on the H_2 yield in microwave field were studied, and the interaction mechanism between catalyst composition and dehydrogenation activity of plastic was discussed. Results showed that Al_2O_3 -loaded iron catalysts and Fe-Al composite oxides can obtain high H_2 yield and promote the generation of carbon nanotubes, with the latter achieving H_2 yield up to 46 mmol/g. The microwave absorption properties, iron morphology, and dispersion of the catalysts play important roles in the dehydrogenation of plastic under microwave fields, as shown by X-ray diffractometry and Mössbauer spectroscopy. Furthermore, the effect of a microwave field shielded by a SiC tube reactor on the dehydrogenation of plastic was investigated. The

收稿日期: 2023-05-14

基金项目: 国家重点研发计划 (2020YFC1910100); 国家自然科学基金资助项目 (52106266); 国家高等教育机构通用研究与发展项目 (22120210538); 上海市自然科学基金资助项目 (22ZR1465900)

第一作者: 李文涛 (1999-), 男, 硕士研究生。研究方向: 固废热转化。E-mail: 1132390115@qq.com

通信作者: 钱柯贞 (1987-), 女, 讲师。研究方向: 固废热转化。E-mail: qiankz@tongji.edu.cn

results show that the amount of dehydrogenation of plastic in the SiC tube reactor decreases significantly under the same temperature conditions, which proves that the microwave field has a favorable effect on the dehydrogenation of plastic.

Keywords: microwave catalysis; iron-based catalyst; plastic pyrolysis; H_2 yield

一次性塑料的大规模生产和使用制造了大量无法降解的塑料废物,对生态环境构成了严重威胁^[1]。因此,发展废塑料回收技术对缓解塑料污染具有积极作用。

利用氢解、热解和气化等热化学回收技术,可以将废塑料转化为高附加值的化工原料和燃料^[2]。其中,催化裂解技术可将塑料同时转化为 H_2 和碳纳米材料。在这个过程中,废塑料首先被热解成短链烃,然后解聚后的短链烃被送入催化重整器中,通过金属催化剂(如 Ni 和 Fe)催化,促进氢气的产生和碳纳米材料的生长。通过调控催化剂的性质(如化学组成、粒径和形貌)和反应条件(如温度、蒸汽/塑料比和进料速率),可以优化反应后的 H_2 产率和碳纳米材料的质量^[3-8]。然而,受限于加热方式(热传导和热对流),传统的热催化裂解技术得到的 H_2 产率普遍较低(通常为 20 ~ 40 mmol/g)。

微波加热是通过微波与物质分子之间的相互作用产生热效应,具有能耗低和选择性加热的特点。除了作为一种有效的加热方式,微波的非热效应在化学反应中也起着重要作用。例如,降低反应活化能和反应温度^[9-10]。微波还能改变平行竞争反应,例如,促进 C—H 裂解而抑制 C—C 断裂,从而改变最终的反应路径^[11]。此外,由于微波只能与极性分子相互作用,因此,在常见的催化裂解反应体系中,微波无法对气态分子进行加热。相比于传统的热传导和热对流等加热方式,微波加热则可以显著减少催化裂解反应中均相的气相副反应^[12]。

在塑料热解制芳烃^[13]和裂解制氢^[14-15]过程中,研究者发现微波可以有效地增强产物的产率和选择性。Jie 等^[14]利用微波催化裂解塑料成功实现了 H_2 的高产率(大于 40 mmol/g)。其中,Fe 基金属催化剂是微波催化聚烯烃制氢中最有效的催化剂。Fe 基金属催化剂能促进聚合物中 C—H 的裂解,并具有很强的微波吸收能力。此外,过渡金属 Fe 在高温下具有较高的碳溶解度和碳扩散速

率,这有助于促进碳纳米管的生长。Jie 等^[14]通过 COMSOL 模拟研究了微波场与反应物的相互作用,发现催化剂与塑料界面的微波电场能显著提高界面的加热速率,从而加速 H_2 在催化剂表面的解吸,进而推动塑料裂解产氢反应的进行。但由于塑料在微波作用下的催化脱氢是一个较为复杂的过程,微波场和催化剂性质对于塑料的裂解脱氢性能的影响尚不明确。

本研究以 Fe 基催化剂为基础,制备了不同结构的塑料裂解脱氢催化剂,并研究了催化剂结构对塑料在微波作用下的裂解脱氢效率和碳生成的影响。同时通过 SiC 管反应器屏蔽微波电磁场,研究了微波场的强化作用。

1 实 验

1.1 催化剂制备

柠檬酸($C_6H_8O_7 \cdot H_2O$, 质量分数 99.8%)、九水硝酸铁($Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$, 质量分数 99.0%)、九水硝酸铝($Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$, 质量分数 99.0%)、无水乙醇(C_2H_5OH , 质量分数 99.7%)、氨水($NH_3 \cdot H_2O$, analytical reagent, AR)和纳米 Al_2O_3 (γ 型)。黑 SiC(α 型,粒径为 0.88~1.0 mm)。低密度聚乙烯粉末(low density polyethylene, LDPE)。

本研究制备了 FeAl, Fe/SiC 和 Fe/ Al_2O_3 这 3 种催化剂。其中,FeAl 催化剂采用溶液燃烧法(solution combustion synthesis, SCS)制备。将等物质的量比的硝酸铁、硝酸铝和柠檬酸溶于 100 mL 的去离子水中,然后用氨水将溶液的 pH 调节至中性。将混合溶液放入 90 °C 的水浴中进行搅拌,直到形成凝胶。随后,将凝胶放入真空烘箱中进行干燥。在干燥后的凝胶中加入无水乙醇后,放入马弗炉中加热至 400 °C 并保温 3 h。最后,对催化剂进行研磨以获得细粉末。

通过浸渍法制备了不同载体的 Fe/SiC 和 Fe/ Al_2O_3 催化剂。制备负载量为质量分数 20% 的 Fe/ Al_2O_3 催化剂时,将 14.42 g 的 $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$

置于无水乙醇中, 在 40 ℃ 下搅拌 30 min, 待 $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ 完全溶解后, 加入 10.00 g 的 Al_2O_3 。在 50 ℃ 下使用恒温磁力搅拌器搅拌混合溶液数小时, 直至溶液变成浆状, 然后放入恒温控制的烘箱中以 120 ℃ 干燥 12 h。将干燥后的固体进行球磨处理, 使颗粒小于 0.08 mm。随后, 将所制备的材料放入 600 ℃ 的空气氛围中以 10 ℃/min 的升温速率煅烧 2 h, 得到的催化剂样品标记为 20Fe/ Al_2O_3 。使用相同的方法, 并根据不同的 Fe 与 SiC、Fe 与 Al_2O_3 配比制备了 20Fe/SiC, 50Fe/SiC, 50Fe/ Al_2O_3 和 100Fe/ Al_2O_3 催化剂。如果未指明负载量, 则默认为质量分数 20 %。

1.2 催化剂表征

使用 Bruker D8 Advance 衍射仪 (Cu-K α , $k = 0.15418$ nm, $10^\circ \sim 80^\circ$) 进行 X 射线衍射 (XRD) 分析, 以确定样品的成分。使用物理吸附仪 (Micromeritics ASAP-2010) 在 -196 ℃ 下通过 N_2 物理吸附测量 SiC 和 Al_2O_3 样品的孔隙结构特性, 并在 200 ℃ 的真空条件下脱气 6 h, 用 Brunauer-Emmett-Teller (BET) 方法计算比表面积。使用 WissEl/MSPCA 光谱仪, 以 ^{57}Co 源记录了室温下 Fe 的穆斯堡尔谱 (MES)。使用扫描电子显微镜 (SEM) 检查反应后催化剂的结构和形貌。使用气相色谱分析仪 (7820 A, Agilent, 美国) 对气体产物进行分析。使用热重分析 (TGA) 测试反应后生成的碳材料的热稳定性, 取 10 mg 样品, 在 50 mL/min 的空气中以 10 ℃/min 的升温速率从室温升温至 800 ℃。此外, 使用拉曼光谱仪在 514 nm 的激发波长下对反应后的催化剂进行扫描, 以检测沉积碳的石墨化程度, 扫描范围为 $800 \sim 2500$ cm^{-1} 。

1.3 催化剂耦合微波辅助塑料裂解脱氢测试

为了对比不同催化剂的催化性能, 采用与文献 [12] 相同的微波反应系统进行实验。该系统由微波发生器 (2.45 GHz)、气体供应系统、谐振腔和固定床石英管反应器组成。在微波催化塑料裂解脱氢实验中, 将 0.5 g 的 LDPE 与 2 g 的催化剂混合, 在使用 Fe/ Al_2O_3 催化剂反应时, 还额外添加了 10 g 的 SiC 作为微波吸收剂。然后将混合物放置在内径为 10 mm、外径为 12 mm 的石英反应器底部。在进行反应之前, 首先对石英管进行抽真空处理, 并使用 N_2 进行冲洗。将催化剂与 LDPE 粉末混合后装入石英管中, 然后在 700 W 的微波功率下进行塑料裂解脱氢反应。

为了研究微波电磁场对塑料裂解脱氢的影响, 在石英管反应器和 SiC 管反应器中进行了对比实验。在反应前进行了升温测试, 并通过底部的红外控温将反应器升温至 800 ℃。此外, 在石英管反应器中进行实验时, 向其中加入了 10 g SiC, 以确保催化剂与塑料混合物能够吸波升温。对比实验中使用的催化剂为 Fe/ Al_2O_3 。

2 结果与讨论

2.1 未负载时在微波场下不同材料上的塑料裂解反应

首先, 研究了在微波条件下不同载体与塑料混合时的升温和反应情况。从图 1 可以看出, 当只有 SiC 存在时, 塑料主要经历热裂解反应。塑料裂解后产生的气体产物主要包括 H_2 , CO 和 $\text{C}_2\text{-C}_3$ 烃类化合物。尽管 SiC 具有较强的吸波性, 但由于缺乏催化能力, 其反应后产生的 H_2 产率较低 (仅为 8.51 mmol/g)。此外, 由于 Al_2O_3 的微波吸收能力较弱, 且塑料无法吸波升温, 因此, Al_2O_3 与塑料混合时无法产生足够的热量来启动反应。当使用 Fe_3O_4 催化剂时, 反应后气体中 CO 的含量明显增加。由于反应过程处于 N_2 氛围, 这表明 Fe_3O_4 在反应过程中被塑料中的碳还原。然而, 被还原后的 Fe_3O_4 的 H_2 产率并未显著提高 (11.34 mmol/g), 这源于未负载的 Fe 基催化剂在微波下容易聚集烧结。

2.2 微波下不同负载 Fe 催化剂上的塑料裂解脱氢性能

如图 2(a) 所示, 与 Fe_3O_4 和 SiC 相比, Fe/SiC

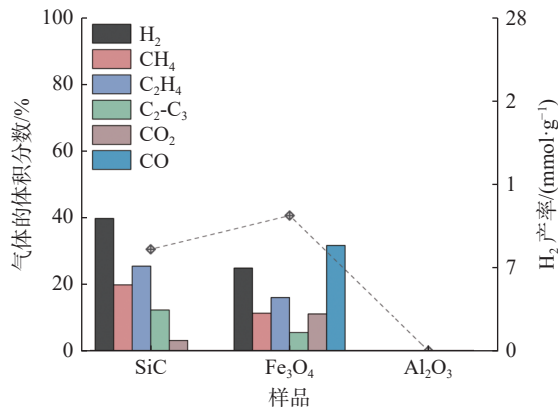


图 1 未负载时不同材料在微波下的塑料裂解脱氢性能
Fig. 1 Dehydrogenation performance of plastic under microwave over different materials

催化剂的 H_2 产率提高至 25.6 mmol/g。但由于实验中使用的 SiC 比表面积较低 (见表 1), 导致 Fe/SiC 中活性金属的分散性不佳, 最终的制氢效果并未显著增强。当使用 Al_2O_3 作为载体时, 塑料催化裂解后气体产物中 H_2 的选择性相对于 Fe/SiC 显著提高 (体积分数 50.13%~72.9%)。更高比表面积的 Al_2O_3 (见表 1) 有效地分散活性 Fe, 减少了反应过程中的催化剂失活。此外, 与 Fe/ Al_2O_3 催化剂相比, FeAl 催化剂表现出更高的塑料脱氢活性, H_2 产率几乎是 Fe/ Al_2O_3 催化剂的 2 倍。这是由于在催化过程中, Fe/ Al_2O_3 被吸波介质 SiC 稀释, 导致最终的 H_2 产率下降 (22.3 mmol/g)。上述结果表明, 高分散的 Fe 和强吸波能力对于微波下塑料裂解脱氢反应的重要性。本研究还对更高负载的 50Fe/ Al_2O_3 和 50Fe/SiC 催化剂进行了微波催化实验, 结果如图 2(b) 所示。尽管更高负载的催化剂可以提供更多的活性金属, 但 50Fe/SiC 催化剂的塑料裂解脱氢性能并没有得到相应的提升。这可能是因为金属负载量越高, 晶体尺寸越大, 活性金属的分散性越差^[16]。

2.3 微波场对裂解反应强化的探讨

在石英管反应器和 SiC 管反应器中进行对比实验, 探究微波电磁场对塑料裂解制氢的影响。由于 SiC 的高微波吸收率, 微波电磁场能被 SiC 管反应器有效屏蔽, 这为研究微波场能否增强塑料裂解脱氢反应性能提供了可能。图 3(a) 和 (b) 分别为不同负载量的 Fe/ Al_2O_3 催化剂在不同反应器中的塑料裂解脱氢性能。与 50Fe/SiC 相似, 高负载量的催化剂 (与 SiC 颗粒混合的 100Fe/ Al_2O_3 和 SiC 管反应器中的 100Fe/ Al_2O_3) 在微波场下未能获得更好的塑料裂解脱氢性能。如图 3(c) 所示, SiC 颗粒和 SiC 管反应器都能够有效地吸收微波并具有较高的热导率, 这确保了两种反应器具有相近的加热速率和温度分布。此外, 在相同的温度条件下, 相较于在 SiC 管中进行的反应, 将塑料裂解脱氢反应置于微波电磁场中可以有效地增加气体产物中 H_2 的选择性。

2.4 催化剂的结构

2.4.1 反应前催化剂

对反应前的催化剂进行了 XRD 分析, 结果如图 4(a) 所示。 θ 为入射角。Fe 负载型催化剂主要由 Fe 的氧化物和载体构成。在 20Fe/SiC 样品中, 并未观察到 Fe 的氧化物衍射峰, 这表明 Fe 主要

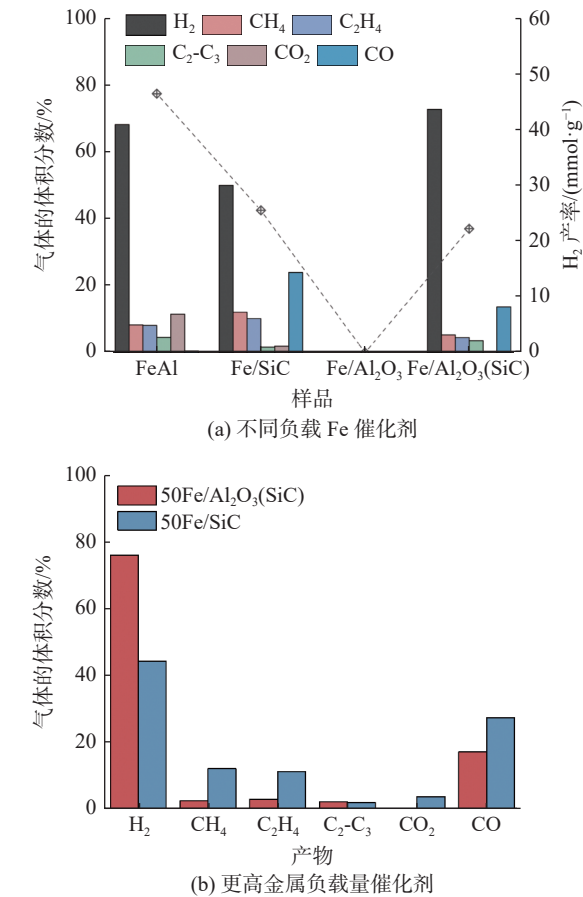


图 2 微波下不同 Fe 基催化剂上的塑料裂解脱氢性能
Fig. 2 Comparison of hydrogen production from plastic under microwave over different iron-based catalysts

表 1 不同载体的孔隙结构参数
Tab.1 Pore structure parameters of all fresh supports

样品	比表面积/(m ² ·g ⁻¹)	总孔体积/(cm ³ ·g ⁻¹)
Al ₂ O ₃	130.65	1.04
SiC	0.8437	—

以非晶态形式存在于催化剂中。随着负载量的增加, 50Fe/SiC 中出现了 Fe_3O_4 晶相。考虑到 Fe 在微波催化反应中被认为是活性金属物种, 进一步进行了室温下的 MES 表征, 以研究拥有最佳脱氢能力的 FeAl 催化剂中 Fe 的结构、磁性和化学信息。如图 4(b) 和表 2 所示, MES 的拟合曲线由 Fe^{3+} 和 Fe^{2+} 双峰组成, 说明 FeAl 催化剂样品主要为超磁性 Fe^{2+} 和 Fe^{3+} 。同时, 只有双峰的存在也表明 FeAl 催化剂中主要为微小的 Fe 氧化物颗粒 (直径小于 5 nm), 这证实了 FeAl 催化剂的高分散性。此外, 在 FeAl 的 MES 中观察到更多的 Fe^{2+} (占比 56.7%), 这表明 FeAl 的结构主要由 FeAl 尖晶石组成, 这与 XRD 表征结果一致。

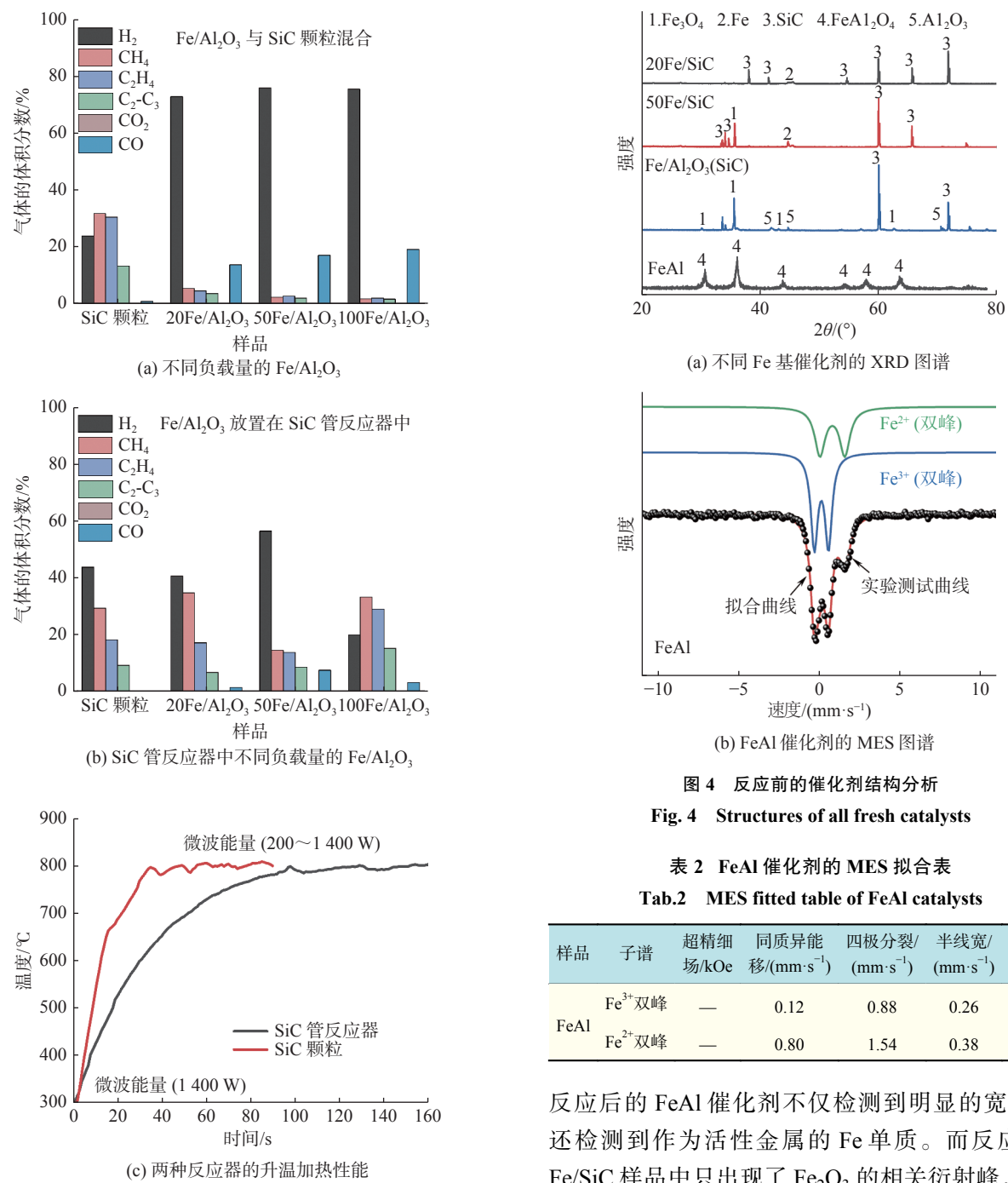


图 3 不同反应器中的塑料裂解脱氢性能

Fig. 3 Dehydrogenation performance of plastics in different reactors

2.4.2 反应后催化剂

通过 XRD (图 5) 对反应后的催化剂进行了物相分析。Fe/SiC 催化剂在反应前后都观察到 SiC 的衍射峰, 反映了 SiC 载体的热稳定性。此外, 反应后的 Fe/SiC 催化剂在 XRD 图谱中并未观察到与碳相关的衍射峰, 这主要是由于 Fe/SiC 反应产生的碳具有较低的石墨化程度。相比之下,

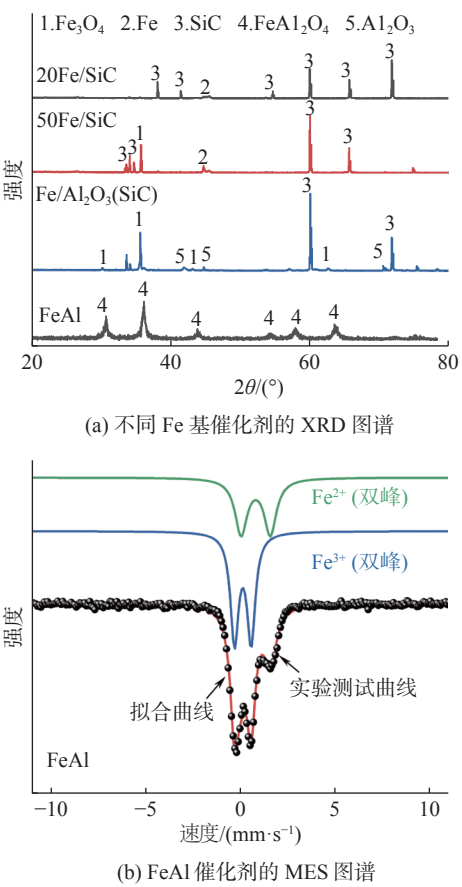


图 4 反应前的催化剂结构分析

Fig. 4 Structures of all fresh catalysts

表 2 FeAl 催化剂的 MES 拟合表

Tab.2 MES fitted table of FeAl catalysts

样品	子谱	超精细场/kOe	同质异能移/(mm·s ⁻¹)	四极分裂/(mm·s ⁻¹)	半线宽/(mm·s ⁻¹)	面积比/%
FeAl	Fe ³⁺ 双峰	—	0.12	0.88	0.26	43.3
	Fe ²⁺ 双峰	—	0.80	1.54	0.38	56.7

反应后的 FeAl 催化剂不仅检测到明显的宽碳峰, 还检测到作为活性金属的 Fe 单质。而反应后的 Fe/SiC 样品中只出现了 Fe₂O₃ 的相关衍射峰, 这与实验过程中 Fe/SiC 较低的 H₂ 产率一致。

2.5 反应后催化剂表面碳产物的结构表征

图 6(a)—(c) 为反应后催化剂表面碳的形貌。其中, FeAl 催化剂的碳沉积物主要为形状弯曲且纠缠在一起的丝状碳, 长度约 10 μm。相比之下, Fe/SiC 催化剂的碳沉积物主要为一些无序碳或非晶碳, 表明该催化剂的丝状碳生长活性较低。热重 (TG) 实验结果如图 6(d) 所示, 在较低温度下发生的失重主要与非晶碳相关, 而较高温度下发生的失重主要为丝状碳 (如碳纳米管) 的燃烧, 这是

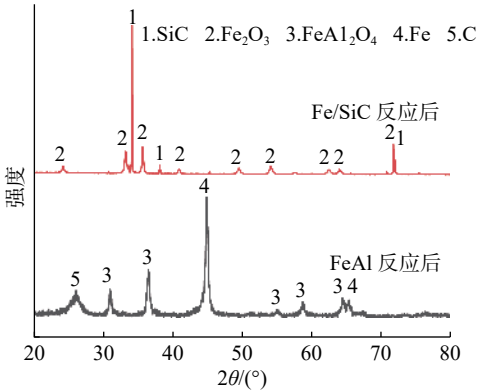
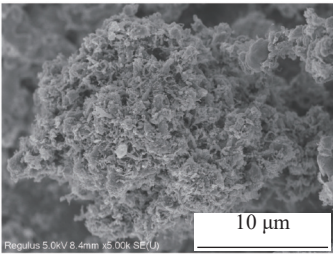


图 5 反应后催化剂的 XRD 图谱

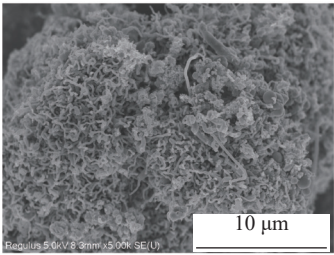
Fig. 5 XRD pattern of spent catalysts

因为丝状碳更稳定且反应性较低。通过对热重进行微分(DTG)可以看出, FeAl 催化剂在 600 ℃ 以上发生了快速的失重, 表明其反应后产生的碳主

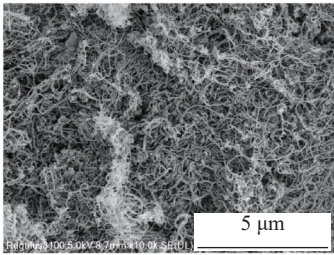
要是丝状碳, 这与 SEM 观察结果一致。为了研究反应后碳沉积物的石墨化程度, 进行了 Raman 分析, 如图 6(e) 所示, 观察到在约 1320 cm^{-1} (D 峰) 和 1580 cm^{-1} (G 峰) 处出现了 2 个峰。D 峰对应于碳材料中的非晶或 sp^3 无序结构, 其与材料中有限的石墨平面和一些其他形式的碳 (如带有缺陷的碳环) 相关。G 峰通常与石墨层中有序 sp^2 杂化碳原子的平面运动和碳材料的石墨化程度密切相关^[17], 碳材料的石墨化程度则可通过相对强度比 I_D/I_G 进行比较。与 Fe/SiC 相比, FeAl 催化剂的 I_D/I_G 值较低, 表明 FeAl 催化剂在反应过程中促进了石墨层的形成并增加了反应后碳的石墨化程度。这可能是由于 FeAl 催化剂在催化塑料裂解脱氢过程中, Fe 单质与 Al 载体之间的相互作用促进了丝状碳在催化剂表面的生长。



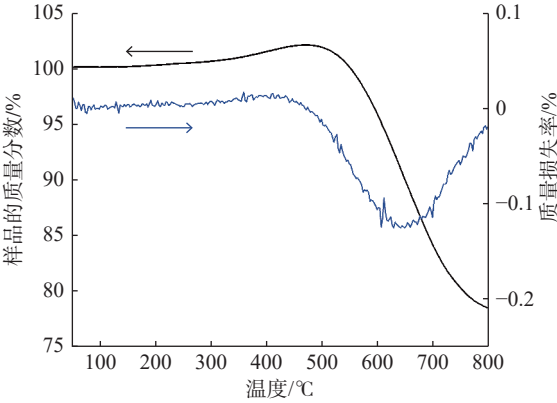
(a) 反应后 Fe/SiC SEM 图



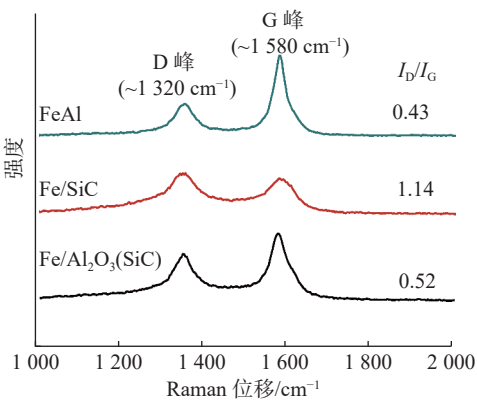
(b) 反应后 Fe/Al₂O₃ SEM 图



(c) 反应后 FeAl SEM 图



(d) 反应后 FeAl 催化剂 TG 分析



(e) Raman 分析

图 6 反应后催化剂的表征

Fig.6 Characterization of spent catalysts

3 结 论

探讨了不同结构的 Fe 基催化剂以及微波场对塑料裂解脱氢反应的影响, 得出结论:

从 H_2 产率来看, 在微波作用下, 未负载的 Fe_3O_4 和 SiC 的塑料裂解脱氢性能较差 (分别为 11.34, 8.51 mmol/g)。使用 Fe/Al₂O₃, FeAl 和 Fe/SiC

催化剂时, 塑料裂解的 H_2 选择性与产率均有所提高 (体积分数和 H_2 产率最高分别为 72.9% 和 46 mmol/g)。此外, 更高负载量的 Fe 基催化剂未能相应地提高产氢性能, 这源于高负载催化剂中的活性金属 Fe 更容易发生聚集和烧结。

相比于 SiC, 采用 Al 载体的 Fe 基催化剂表现出更好的催化活性, 其中, FeAl 催化剂在微波下

具有最高的氢气产率。从反应后的 XRD 和 Raman 表征可以看出, FeAl 催化剂在反应过程中被还原生成了单质 Fe, 而负载于 Al 上的 Fe 可以有效地促进反应后石墨碳的形成。此外, 在石英管和 SiC 管反应器中进行了对比实验, 与石英管中的微波催化相比, SiC 管中的 H_2 选择性明显下降 (SiC 管 H_2 选择性: 体积分数 19.84%~56.28%, 石英管 H_2 选择性: 体积分数 72.9%~75.9%)。这表明了微波电磁场对塑料裂解脱氢反应具有一定的促进作用。综上所述, 活性金属的分散性、催化剂的微波吸收性能以及微波电磁场等因素在塑料裂解脱氢反应中起重要作用。

参考文献:

- [1] GEYER R, JAMBECK J R, LAW K L. Production, use, and fate of all plastics ever made[J]. *Science Advances*, 2017, 3(7): e1700782.
- [2] TAN T, WANG W, ZHANG K, et al. Upcycling plastic wastes into value-added products by heterogeneous catalysis[J]. *ChemSusChem*, 2022, 15(14): e202200522.
- [3] ACOMB J C, WU C F, WILLIAMS P T. The use of different metal catalysts for the simultaneous production of carbon nanotubes and hydrogen from pyrolysis of plastic feedstocks[J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2016, 180: 497–510.
- [4] YANG R X, CHUANG K H, WEY M Y. Effects of temperature and equivalence ratio on carbon nanotubes and hydrogen production from waste plastic gasification in fluidized bed[J]. *Energy & Fuels*, 2018, 32(4): 5462–5470.
- [5] LI Q Y, FARAMARZI A, ZHANG S, et al. Progress in catalytic pyrolysis of municipal solid waste[J]. *Energy Conversion and Management*, 2020, 226: 113525.
- [6] WILLIAMS P T. Hydrogen and carbon nanotubes from pyrolysis-catalysis of waste plastics: a review[J]. *Waste and Biomass Valorization*, 2021, 12(1): 1–28.
- [7] 肖皓宇, 杨海平, 张雄, 等. 塑料催化热解制备高附加值产品的研究进展 [J]. *化工学报*, 2022, 73(8): 3461–3471.
- [8] 黎书江, 肖皓宇, 蒋好, 等. 塑料催化热解制备碳纳米管生长特性和机制的研究进展 [J]. *燃料化学学报*, 2023, 51(8): 1073–1083.
- [9] WANG Q G, XU W T, MA Z C, et al. Highly effective direct dehydrogenation of propane to propylene by microwave catalysis at low temperature over Co–Sn/NC microwave catalyst[J]. *ChemCatChem*, 2021, 13(3): 1009–1022.
- [10] BAI X W, ROBINSON B, KILLMER C, et al. Microwave catalytic reactor for upgrading stranded shale gas to aromatics[J]. *Fuel*, 2019, 243: 485–492.
- [11] JIE X Y, GONZALEZ-CORTES S, XIAO T C, et al. Rapid production of high-purity hydrogen fuel through microwave-promoted deep catalytic dehydrogenation of liquid alkanes with abundant metals[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2017, 56(34): 10170–10173.
- [12] RAMIREZ A, HUESO J L, MALLADA R, et al. Microwave-activated structured reactors to maximize propylene selectivity in the oxidative dehydrogenation of propane[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2020, 393: 124746.
- [13] SELVAM E, KOTS P A, HERNANDEZ B, et al. Plastic waste upgrade to olefins via mild slurry microwave pyrolysis over solid acids[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2023, 454: 140332.
- [14] JIE X Y, LI W S, SLOCOMBE D, et al. Microwave-initiated catalytic deconstruction of plastic waste into hydrogen and high-value carbons[J]. *Nature Catalysis*, 2020, 3(11): 902–912.
- [15] LI W T, QIAN K Z, YANG Z X, et al. Promotion effect of cobalt doping on microwave-initiated plastic deconstruction for hydrogen production over iron catalysts[J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2023, 327: 122451.
- [16] CALGARO C O, PEREZ-LOPEZ O W. Decomposition of methane over $Co_{3-x}Al_xO_4$ ($x=0-2$) coprecipitated catalysts: the role of Co phases in the activity and stability[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, 42(50): 29756–29772.
- [17] CAI N, XIA S W, LI X Q, et al. Influence of the ratio of Fe/Al₂O₃ on waste polypropylene pyrolysis for high value-added products[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2021, 315: 128240.

(编辑: 石 瑛)