

Окислительная переработка пропана в важные нефтехимические продукты на нанесенных ванадиевых катализаторах

^{1,2}Кауменова Г.Н., ^{1,3}Сарсенова Р.О.,
²Кажденбек Б., ¹Абдухалыков Д.Б.,
^{1,2}Жексенбаева З.Т., ^{1,2}Тунгатарова С.А.,
^{1,2}Байжуманова Т.С.*

¹Институт топлива, катализа и электрохимии имени Д.В. Сокольского, Алматы, Казахстан
²Казахский национальный университет имени аль-Фараби, Алматы, Казахстан
³Казахский национальный педагогический университет имени Абая, Алматы, Казахстан
*E-mail: baizhuma@mail.ru

Енгiзiлген ванадий катализаторларында пропанды тотықтырып маңызды мұнайхимиялық өнімдерге қайта өңдеу

^{1,2}Кауменова Г.Н., ^{1,3}Сарсенова Р.О.,
²Кажденбек Б., ¹Абдухалыков Д.Б.,
^{1,2}Жексенбаева З.Т., ^{1,2}Тунгатарова С.А.,
^{1,2}Байжуманова Т.С.*

¹Д.В.Сокольский атындағы Жанармай, катализ және электрохимия институты, Алматы, Қазақстан
²Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті, Алматы, Қазақстан
³Абай атындағы Қазақ ұлттық университеті, Алматы, Қазақстан
*E-mail: baizhuma@mail.ru

Oxidative processing of propane into important petrochemical products on deposited vanadium catalysts

^{1,2}Kaumenova G.N., ^{1,3}Sarsenova R.O.,
²Kazhdenbek B., ²Abdyhalykov D.B.,
^{1,2}Zh克森baeva Z.T., ^{1,2}Tungatarova S.A.,
^{1,2}Baizhumanova T.S.*

¹D.V. Sokolsky Institute of Fuel, Catalysis and Electrochemistry, Almaty, Kazakhstan
²Al-Farabi Kazakh National University, Almaty, Kazakhstan
³Abay Kazakh National Pedagogical University, Almaty, Kazakhstan
*E-mail: baizhuma@mail.ru

В работе представлены данные активности разработанного нанесенного катализатора на основе ванадия, способного вести процесс окислительного превращения пропана в этилен и водород, используя в качестве окислителя CO_2 . При исследовании активности разработанного ванадиевого катализатора в окислительном превращении пропана установлено, что максимальный выход этилена составил 24,5% при следующих условиях: $\text{C}_3\text{H}_8:\text{CO}_2=2:1$, $T=700^\circ\text{C}$ и $W=1000\text{ ч}^{-1}$. А также при этих условиях с повышением температуры до 800°C наблюдалось образование 27,5% водорода. С помощью методов БЭТ и РФА было установлено, что разработанный катализатор 5% $\text{V}/\text{Al}_2\text{O}_3$ обладает увеличенной удельной поверхностью и связью носителя с активной фазой, которые, как предполагается, способствуют эффективной работе данного катализатора в окислительном превращении пропана в этилен и водород.

Ключевые слова: каталитическое окисление; этилен; водород; активность катализатора; ванадиевый катализатор.

Жұмыста тотықтырғыш ретінде CO_2 қолдана отырып, пропанның этиленге және сутекке тотыға айналу үрдісінің жүргізілуіне қабілетті дайындалған белсенді ванадий негізіндегі енгізілген катализаторлардың мәліметтері ұсынылды. Зерттеу нәтижесінде дайындалған ванадий катализаторларының пропанның тотыға айналуы үрдісінде келесі шарттарда: $\text{C}_3\text{H}_8:\text{CO}_2=2:1$, $T=700^\circ\text{C}$ және $W=1000\text{ сағ}^{-1}$ -та этиленнің жоғары шығымы 24,5% құрайтыны анықталды. Сонымен қатар, осы жағдайда температураны 800°C дейін көтергенде 27,5% сутектің түзілгені байқалды. Жасалынған 5% $\text{V}/\text{Al}_2\text{O}_3$ катализаторларының пропанды этиленге және сутекке тотықтыра айналдыру үрдісінің жүргізілуіне қабілетті жасалынған катализаторлардың үрдіске тиімділігі БЭТ және РФТ әдістерінің көмегімен нақты сипаттамалары зерттелді, дәлірек айтқанда беттік ауданының өсуі және тасымалдағыш пен белсенді фаза арасындағы байланысы анықталды.

Түйін сөздер: катализдік тотықтыру; этилен; сутек; катализатордың активтілігі; ванадий катализаторы.

The paper presents the data on activity of the deposited catalyst based on vanadium. The developed catalyst allows conducting the process of oxidative conversion of propane into ethylene and hydrogen using CO_2 as an oxidant. The study of the activity of the developed vanadium catalyst at the oxidative conversion of propane showed that the maximum ethylene yield was 24.5% at: $\text{C}_3\text{H}_8:\text{CO}_2=2:1$, $T=700^\circ\text{C}$ and $W=1000\text{ h}^{-1}$. The increase of temperature to 800°C resulted in the formation of 27.5% hydrogen. By methods of BET and XRD the developed catalyst 5% $\text{V}/\text{Al}_2\text{O}_3$ is differed by increase of specific surface area and bonding of the carrier with active phase, contributing to increase of efficiency of the developed catalyst in the oxidative conversion of propane to ethylene and hydrogen.

Keywords: catalytic oxidation; ethylene; hydrogen; activity of catalyst; vanadium catalyst.



Окислительная переработка пропана в важные нефтехимические продукты на нанесенных ванадиевых катализаторах

^{1,2}Кауменова Г.Н., ^{1,3}Сарсенова Р.О., ²Кажденбек Б., ¹Абдухалыков Д.Б.,
^{1,2}Жексенбаева З.Т., ^{1,2}Тунгатарова С.А., ^{1,2}Байжуманова Т.С.*

¹Институт топлива, катализа и электрохимии имени Д.В. Сокольского, Алматы, Казахстан

²Казахский национальный университет имени аль-Фараби, Алматы, Казахстан

³Казахский национальный педагогический университет имени Абая, Алматы, Казахстан

*E-mail: baizhuma@mail.ru

1. Введение

Природный и нефтяные газы – это важнейшие альтернативные источники сырья, способные в перспективе конкурировать с нефтью. Особую актуальность проблема рационального использования C₁-C₄ алканов, входящих в их состав, приобретает в странах, богатых этим видом сырья. В Республике Казахстан, несмотря на огромные запасы углеводородного сырья, оно в основном расходуется в виде бытового, промышленного и моторного топлива, остатки сжигаются в составе выбросных газов, либо снова загоняются в нефтеносные пласты. В связи с этим, одной из актуальных экологических проблем в Казахстане является переработка алканов (основные компоненты природного газа и нефти) с целью получения промышленно важных химических продуктов.

Известно, что ванадиевые соединения [1-4] широко используются для гомогенного и гетерогенного катализа, особенно при селективном окислении легких алканов, являющихся одними из наиболее эффективных катализаторов.

Так, авторы работы [1] исследовали активность нанесенных ванадиевых катализаторов в реакции окисления пропана. Определено, что выход пропилена составил 10% с конверсией пропана 30%.

В работе [2] были исследованы V₂O₅/SiO₂ катализаторы, промотированные фторидным анионом и полученные при последовательном добавлении различных количеств F⁻. На производительность и структуру катализаторов большое влияние оказали последовательность пропитки фторидом

и методика получения катализаторов. Окислительное дегидрирование пропана проводили в реакторе с неподвижным слоем с непрерывным потоком при атмосферном давлении, интервале температур 400-600°C и соотношении подаваемых газов: 10% C₃H₈:5% O₂:85% Ar. Общий расход реакционной газовой смеси составлял 50 мл/мин, масса катализатора – 200 мг, объемная скорость – 9000 ч⁻¹. На VOC-F катализаторе при 540°C селективность пропена составила 64,16% при конверсии пропана 14,76%. По сравнению с V-Si-O катализатором наблюдалось повышение селективности пропена на 9,89%, было обнаружено небольшое увеличение конверсии C₃H₈.

В работе [5] были исследованы Cr/SiO₂ катализаторы (Cr в диапазоне 0,25-2,0 вес.%), полученные прямым гидротермальным синтезом с высокой удельной поверхностью (600-1000 м²/г). Реакцию окислительного дегидрирования пропана проводили в присутствии CO₂ или CO₂+O₂. Выход пропена достигает 40%. Соотношение газов: C₃H₈:CO₂:N₂=15:30:55 (испытание проводилось в течение 20 мин при 600°C и W=200 ч⁻¹).

В работе [6] изучена активность серии катализаторов CrO_y/Al₂O₃-ZrO₂, полученных золь-гель-методом и последующей пропиткой по влагоемкости с изменением молярного отношения Zr/Al в дегидрировании пропана в пропилен. Исследовано влияние добавления циркония на физико-химические свойства и каталитическую активность. Получение пропилена путем дегидрирования пропана проводили в кварцевом реакторе с непрерывным потоком с неподвижным слоем катализатора при T=630°C и атмосферном давлении. Определено, что при

дегидрировании пропана в пропилен среди разработанных катализаторов самым эффективным оказался Cr/AZ-0,10, на котором выход C_3H_6 составил 36,8%.

Серия Y-Al катализаторов была синтезирована путем совместного осаждения с использованием водных растворов нитратов металлов и водного аммиака [7]. Реакцию дегидрирования пропана проводили на неподвижном слое катализатора в кварцевом реакторе. Наиболее активным катализатором с конверсией пропана 50% и селективностью пропилена 97% оказался PtSnIn/0,6 Y-Al катализатор.

Повышение уровня CO_2 в атмосфере оказывает отрицательное воздействие на окружающую среду. Химическое использование CO_2 , являющееся одним из основных парниковых газов, является важным шагом на пути к зеленой химии. Основная проблема, связанная с использованием CO_2 – термодинамическая устойчивость этой молекулы. Одна из технологий, которая набирает силу и значимость в научном мире – использование CO_2 в качестве окислителя для каталитического окислительного превращения в условиях высоких температур [8,9].

В работе представлены данные активности разработанного нанесенного катализатора на основе ванадия, способного вести процесс окислительного превращения пропана в этилен и водород, используя в качестве окислителя CO_2 .

2. Эксперимент

Катализаторы готовились методом капиллярной пропитки соли метаванадата аммония, нанесенной на синтетический оксид алюминия, с последующей сушкой при $T=473\text{ K}$ в течение 2 ч и последующей прокалкой образцов при $T=773\text{ K}$ также 2 ч в атмосфере воздуха.

Анализ исходной смеси и продуктов реакции проводили с использованием хроматографа «ХРОМОС ГХ-1000» с программным обеспечением «Хромос» (ХРОМОС Инжиниринг, Россия). Хроматограф оснащен насадочной и капиллярной колонками. Насадочная колонка (заполненная оксидом алюминия) используется для анализа H_2 , O_2 , N_2 , CH_4 , C_2H_6 , C_2H_4 , C_3-C_4 углеводородов, CO и CO_2 . Капиллярная колонка (заполненная «CP-Sil 5 CB», содержащая 100% диметил-полисилоксановую фазу) используется для анализа жидких органических веществ, таких как, спирты, кислоты, альдегиды, кетоны и ароматические углеводороды. Температура детектора по теплопроводности 473 K, температура испарителя 553 K, температура колонки 313 K. Скорость газа-носителя $Ar=10\text{ мл/мин}$.

Расчет хроматографических пиков осуществлялся по калибровочным кривым, построенным для соответствующих продуктов по чистым веществам (с помощью микрошприца в хроматограф вводились точно отмеренные количества чистого компонента или смеси веществ с известными концентрациями). На основании измеренных площадей пиков, соответствующих количеству вводимого

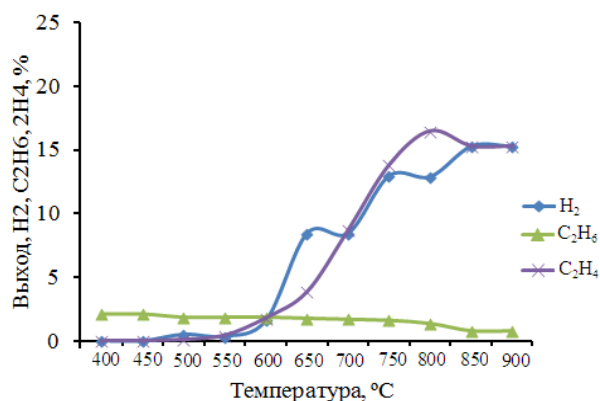
вещества, строился калибровочный график $V=f(S)$, где V – объем пробы в мл, S – площадь пика, выраженная в $см^2$. Концентрации полученных продуктов определяли на основе полученных калибровочных графиков.

Удельную площадь поверхности и измерение распределения пор разработанных катализаторов исследовали методом БЭТ (Бронауэра-Эммета-Теллера) на анализаторе GAPP V-Sorb 2800 (Китай). В качестве газа носителя использовался азот с гелием.

Рентгеновский дифракционный анализ выполняли на спектрометре Siemens Spellman DF3 с излучением Cu- K_α . Диапазон углов $2\theta=5^\circ-100^\circ$.

3. Результаты и обсуждение

Активность разработанного 5% V/Al₂O₃ катализатора в реакции окислительного превращения пропана изучена при $W=5000\text{ ч}^{-1}$, 50% C_3H_8 + 50% CO_2 и температурном интервале 400-900°C. Как видно из данных рисунка 1, реакция окислительного превращения пропана при использовании в качестве окислителя диоксида углерода способствует образованию водорода и этилена.



Условия реакции: $W=5000\text{ ч}^{-1}$, 50% C_3H_8 + 50% CO_2 , $T=400-900^\circ\text{C}$.

Рисунок 1 – Исследование активности 5% V/Al₂O₃ катализатора в реакции окислительного превращения пропана

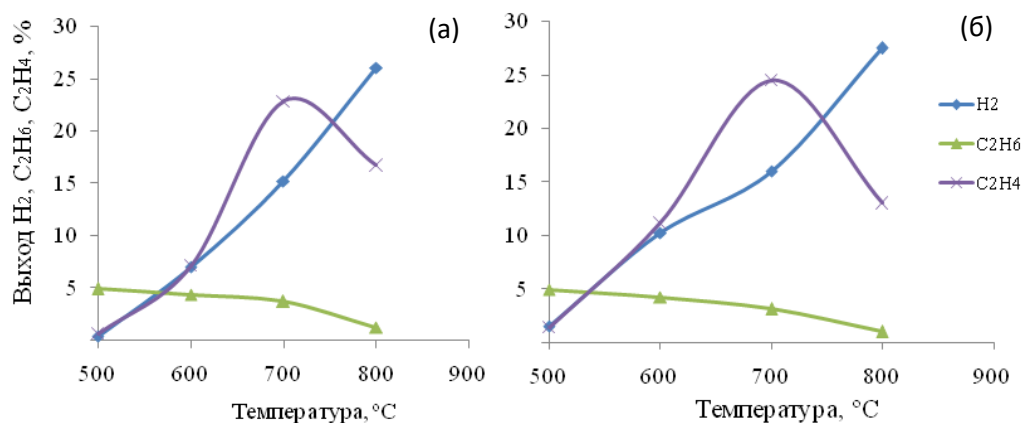
При 400°C начинается образование небольших количеств C_2H_6 – 2,5%. Затем при постепенном повышении температуры реакции количество этана уменьшается предположительно из-за того, что продукт реакции каталитического окисления пропана – этан в ходе реакции успевает окислиться до этилена, так как видно, что при температуре 500°C начинает образовываться этилен в небольшом количестве – 0,1%, затем количество его повышается с ростом температуры до 19,3% при температуре 800°C. Далее выход этилена понижается до

17,9%. Одновременно с продуктами реакции дегидрирования в реакции наблюдается образование H_2 . Выход водорода повышается с ростом температуры и стабилизируется при $850^\circ C$.

На рисунках 2 (а,б), 3 (а,б) и 4 (а,б) приведены данные активности 5% V/Al_2O_3 катализатора в реакции окислительного превращения пропана при варьировании условий реакции: $T=500-900^\circ C$, $W=1000-2500\text{ ч}^{-1}$ и $C_3H_8:CO_2=1:1, 2:1$ и $5:1$. Как видно из данных рисунков 2-4, в случае сравнения результатов при объемной скорости 1000 ч^{-1} с изменением соотношения $C_3H_8:CO_2$, оптимальным для получения этилена является соотношение $C_3H_8:CO_2=2:1$ и $T=700^\circ C$, где наблюдается образование 24,5% этилена. При остальных двух соотношениях $C_3H_8:CO_2=5:1$ и $1:1$ выход этилена составил 22,9 и 21,0%, соответственно.

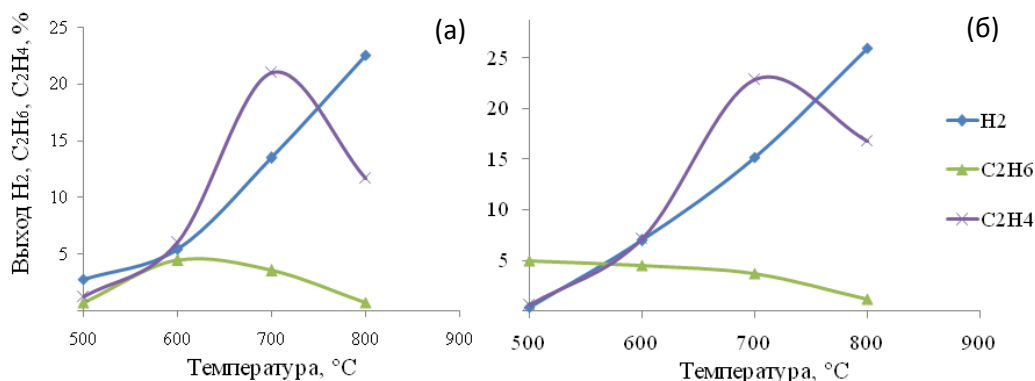
Образование водорода при всех варьированиях повышалось с увеличением температуры, и определено, что при соотношении $C_3H_8:CO_2=2:1$ и $T=800^\circ C$ наблюдалось образование 27,5% H_2 .

Таким образом, установлено, что с увеличением температуры реакции при всех варьированиях повышается выход водорода. Что касается образования этилена, то здесь наблюдается, что почти при всех варьированиях сохраняется закономерность перехода через максимум при $700^\circ C$. Определено, что на разработанном 5% V/Al_2O_3 катализаторе максимальный выход этилена составил 24,5% при следующих условиях: 66,5% C_3H_8 + 33,5% CO_2 , $C_3H_8:CO_2=2:1$, $W=1000\text{ ч}^{-1}$ и $T=700^\circ C$. При этих же условиях с повышением температуры до $800^\circ C$ наблюдается наибольший выход H_2 , равный 27,5%.



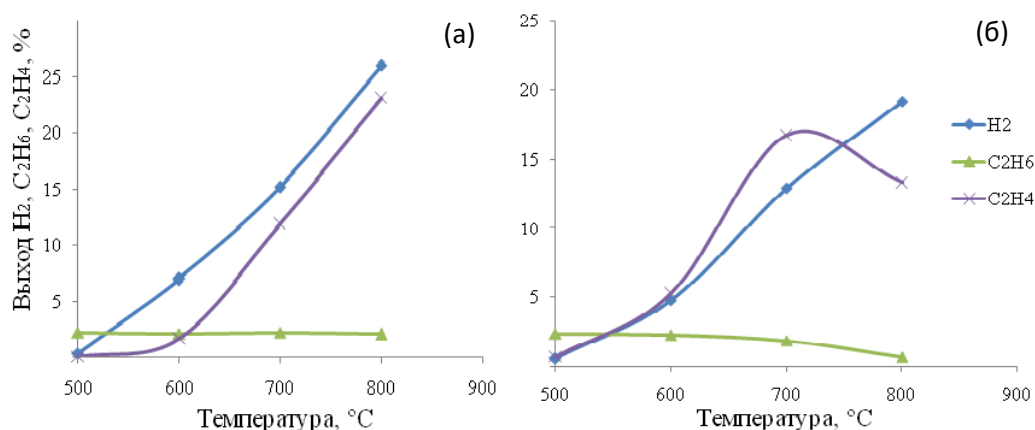
Условия реакции: а) $W=1000\text{ ч}^{-1}$, 84,0% C_3H_8 + 16,0% CO_2 , $C_3H_8:CO_2=5:1$; б) $W=1000\text{ ч}^{-1}$, 66,5% C_3H_8 + 33,5% CO_2 , $C_3H_8:CO_2=2:1$.

Рисунок 2 – Исследование активности 5% V/Al_2O_3 катализатора в реакции окислительного превращения пропана при варьировании температуры и соотношения реакционных газов



Условия реакции: а) $W=1000\text{ ч}^{-1}$, 50,0% C_3H_8 + 50,0% CO_2 , $C_3H_8:CO_2=1:1$; б) $W=2500\text{ ч}^{-1}$, 84,0% C_3H_8 + 16,0% CO_2 , $C_3H_8:CO_2=5:1$.

Рисунок 3 – Исследование активности 5% V/Al_2O_3 катализатора в реакции окислительного превращения пропана при варьировании температуры, объемной скорости и соотношения реакционных газов



Условия реакции: а) $W=2500 \text{ ч}^{-1}$, 66,5% C₃H₈ + 33,5% CO₂, C₃H₈:CO₂=2:1; б) $W=2500 \text{ ч}^{-1}$, 50,0% C₃H₈ + 50,0% CO₂, C₃H₈:CO₂=1:1.

Рисунок 4 – Исследование активности 5% V/Al₂O₃ катализатора в реакции окислительного превращения пропана при варьировании температуры и соотношения реакционных газов

Разработанные ванадиевые катализаторы были синтезированы и исследованы в ходе зарубежной стажировки докторанта 3-го года обучения КазНУ им. аль-Фараби Кауменовой Г.Н. методами БЭТ и рентгенофлуоресцентного анализа (РФА) в лаборатории «Advanced Ceramics and Composites Laboratory» Institute of Nanoscience and Nanotechnology NCSR “Demokritos” (Athens, Greece).

Из проведенных исследований по определению площади поверхности разработанных катализаторов установлено, что с увеличением процентного содержания ванадия на носителе симбатно повышается площадь на поверхности каталитической системы (рисунок 5).

Известно, что чем больше удельная площадь поверхности катализатора, тем большее число активных

центров имеются на поверхности, тем большей активностью обладает катализатор. Предполагается, что данная зависимость связана с активностью 5% V/Al₂O₃ катализатора в окислительном превращении пропана в этилен и водород при найденных оптимальных условиях реакции.

Перед проведением рентгенофазового анализа образцов был проведен анализ литературных источников и определены механизмы термического разложения метаванадата аммония и возможные образующиеся фазы [10,11].

При рентгенофазовом анализе 5% V/Al₂O₃ катализатора (рисунок 6) были обнаружены следующие фазы: AlVO₄ (JSPDS, 11-0130), Al₂O₃ (JSPDS, 42-1468) и V₂O₅ (JSPDS, 41-1426). Следует отметить, что только на однокомпонентном

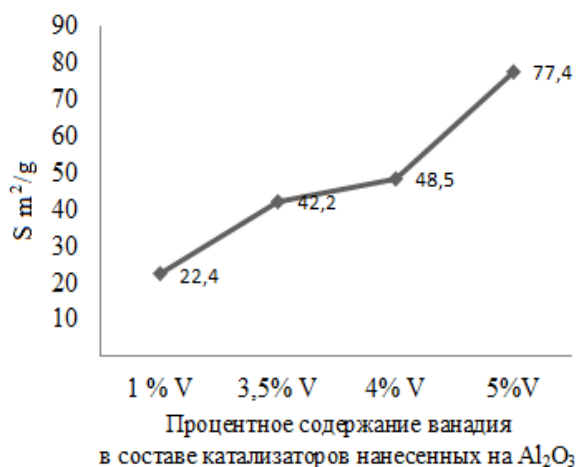


Рисунок 5 – Изменение удельной поверхности от процентного содержания ванадия в составе катализаторов нанесенных на Al₂O₃

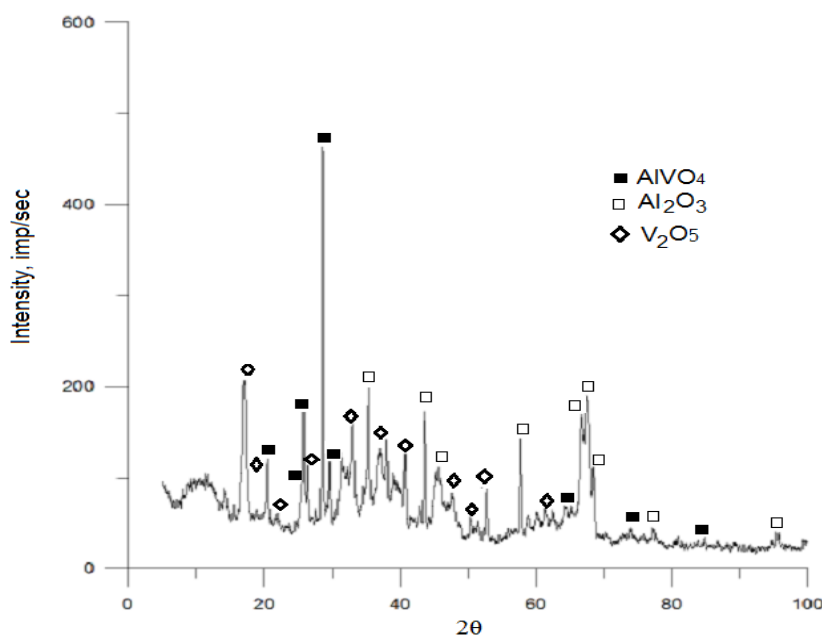


Рисунок 6 – Рентгенофазовый анализ 5% V/Al₂O₃ катализатора

ванадиевом катализаторе была обнаружена фаза AlVO₄ (JSPDS, 11-0130). Предполагается, что данная обнаруженная фаза связи алюминия с ванадием способствует образованию этилена и водорода при окислительном превращении пропана.

4. Заключение

Таким образом, в представленной работе показано, что на разработанном 5% V/Al₂O₃ катализаторе с помощью методов Брунауэра-Эммета-Теллера и рентгенофлуоресцентного анализа были обнаружены определенные характеристики, а именно, увеличение удельной

поверхности и связь носителя с активной фазой. Установлено, что процесс окислительного превращения пропана на разработанном 5% V/Al₂O₃ катализаторе проходит с образованием 24,5% этилена и 27,5% водорода при найденных экспериментальным методом оптимальных условиях: 66,5% C₃H₈ + 33,5% CO₂, T=700-800°C, W=1000 ч⁻¹ и C₃H₈:CO₂=2:1.

Благодарности

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Республики Казахстан (грантовый проект AP 05133881).

Литература

- 1 Ferreira Neto V.J.M., Belan Costa T. de S., Magalhães A.L.L., Gaspar A.B., Pries de Oliveira P.G., Mendes F.M.T. Propane oxidation by vanadium supported on activated carbon from sugarcane straw // *Molecular Catalysis*. – 2018. – Vol. 458, Part B. – P.317-325.
- 2 Zhang Q., Wang Y., Ohishi Y., Shishido T., Takehira K. Vanadium-containing MCM-41 for partial oxidation of lower alkanes // *Journal of Catalysis*. – 2001. – Vol.202, Is.2. – P.308-318.
- 3 Chu W., Luo J., Paul S., Liu Y., Khodakov A., Bordes E. Synthesis and performance of vanadium-based catalysts for the selective oxidation of light alkanes // *Catalysis Today*. – 2017. – Vol.298. – P.145-157.
- 4 Liu G., Zhao Z.J., Wu T.F., Zeng L., Gong J.L. Nature of the active sites of VO_x/Al₂O₃ catalysts for propane dehydrogenation // *ACS Catalysis*. – 2016. – Vol.6, Is.8. – P.5207-5214.
- 5 Botavina M.A., Agafonov Y.A., Gaidai N.A., Groppo E., Corberán V., Lapidus A.L., Martra G. Towards efficient catalysts for the oxidative dehydrogenation of propane in the presence of CO₂: Cr/SiO₂ systems prepared by direct hydrothermal synthesis // *Catalysis Science & Technology*. – 2016. – Vol.6. – P.840-850.
- 6 Kim T.H., Kang K.H., Baek M., Song J.H., Hongb U.G., Park D.S., Choi W.C., Park Y., Song I.K. Dehydrogenation of propane to propylene with lattice oxygen over CrO_v/Al₂O₃-ZrO₂ catalysts // *Molecular Catalysis*. – 2017. – Vol.433. – P.433:1-7.
- 7 Long L.L., Lang W.Z., Yan X., Xia K., Guo Y.J. Yttrium-modified alumina as support for trimetallic PtSnIn catalysts with improved

- catalytic performance in propane dehydrogenation // Fuel Processing Technology. – 2016. – Vol.146. – P.48-55.
- 8 Kawi S., Kathiraser Y. CO₂ as an oxidant for high-temperature reactions // Frontiers in Energy Research. – 2015. – Vol.3. – P.1-17.
- 9 Atanga M.A., Rezaei F., Jawad A., Fitch M., Rownaghi A.A. Oxidative dehydrogenation of propane to propylene with carbon dioxide // Applied Catalysis B: Environmental. – 2018. – Vol.220. – P.429-445.
- 10 Lampe-Onnerud C., Thomas J.O. Mechanisms for the thermal decomposition of NH₄VO₃ into V₆O₁₃, V₃O₇ and V₂O₅ // Journal of Materials Chemistry. – 1995. – Vol.5, Is.7. – P.1075-1080.
- 11 Ayodele B.V., Hossain M.A., Chong S.L., Soh J.C., Abdullah S., Khan M.R., Cheng C.K. Non-isothermal kinetics and mechanistic study of thermal decomposition of light rare earth metal nitrate hydrates using thermogravimetric analysis // Journal of Thermal Analysis and Calorimetry. – 2016. – Vol.125, Is.1. – P.423-435.

References

- 1 Ferreira Neto VJM, Belan Costa T de S, Magalhães ALL, Gaspar AB, Pries de Oliveira PG, Mendes FMT (2018) Molecular Catalysis 458:317-325. <https://doi.org/10.1016/j.mcat.2017.11.010>
- 2 Zhang Q, Wang Y, Ohishi Y, Shishido T, Takehira K (2001) J Catal 202:308-318. <https://doi.org/10.1006/jcat.2001.3276>
- 3 Chu W, Luo J, Paul S, Liu Y, Khodakov A, Bordes E (2017) Catal Today 298:145-157. <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2017.05.004>
- 4 Liu G, Zhao ZJ, Wu TF, Zeng L, Gong JL (2016) ACS Catal 6:5207-5214. <https://doi.org/10.1021/acscatal.6b00893>
- 5 Botavina MA, Agafonov YA, Gaidai NA, Groppo E, Corberán V, Lapidus AL, Martra G (2016) Catal Sci Technol 6:840-850. <https://doi.org/10.1039/c5cy00998g>
- 6 Kim TH, Kang KH, Baek M, Song JH, Hongb UG, Park DS, Choi WC, Park Y, Song IK (2017) Molecular Catalysis 433:1-7. <https://doi.org/10.1016/j.mcat.2016.12.004>
- 7 Long LL, Lang WZ, Yan X, Xia K, Guo YJ (2016) Fuel Process Technol 146:48-55. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2016.02.012>
- 8 Kawi S, Kathiraser Y (2015) Frontiers in Energy Research 3:1-17. <https://doi.org/10.3389/fenrg.2015.00013>
- 9 Atanga MA, Rezaei F, Jawad A, Fitch M, Rownaghi AA (2018) Appl Catal B- Environ 220:429-445. <https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2017.08.052>
- 10 Lampe-Onnerud C, Thomas JO (1995) J Mater Chem 5(7):1075-1080. <https://doi.org/10.1039/JM9950501075>
- 11 Ayodele BV, Hossain MA, Chong SL, Soh JC, Abdullah S, Khan MR, Cheng CK (2016) Journal of Thermal Analysis and Calorimetry 125(1):423-435. <https://doi.org/10.1007/s10973-016-5450-6>