大连化物所揭示氧化铁催化剂在正丁烷-COsub2sub耦合脱氢反应中原位重构与性能修复机制

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/24176.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

近日，中国科学院大连化学物理研究所化石能源与应用催化研究部低碳烃综合利用及沸石催化材料研究组研究员朱向学和李秀杰团队，在
正丁烷与CO_2
耦合转化制丁二烯反应中催化剂结构原位重构方面取得新进展。该工作通过有机物辅助热解法制备了$ZnFe_2O_4$和Fe_2O_3
催化剂，系统对比研究了其在正丁烷-CO_2
耦合转化的反应性能，结合XPS、Raman、TEM等表征技术，揭示了二者反应与失活机制的差异，发现了Fe_2O_3
经多次循环再生
后催化性能逐渐修复、积碳失活速率常数由新鲜催化剂的0.17h^{-1}逐渐降低至接近零。

Fe基催化剂因价格低廉、环境友好、活化CO_2
能力强等优势而受到广泛关注，但烷烃脱氢反应的高温和还原性气氛导致铁基催化剂易被还原，进而引发结焦和烧结失活。如何提升铁基催化剂抗还原能力、抑制其结焦和烧结失活是亟待解决的难题。

本工作探究了$ZnFe_2O_4$和Fe_2O_3催化剂的构效关系：$ZnFe_2O_4$具有较强CO_2
吸附能力，导致其表面易发生重整反应，加之其易烧结的特点，在反应过程中表现出快速和不可逆失活特征（0.77h^{-1}→1.00h^{-1}）；而Fe_2O_3
催化剂因良好的补氧释氧能力和弱CO_2
吸附能力，表现出高的丁二烯选择性（约40%）和低的失活速率（0.19h^{-1}）。

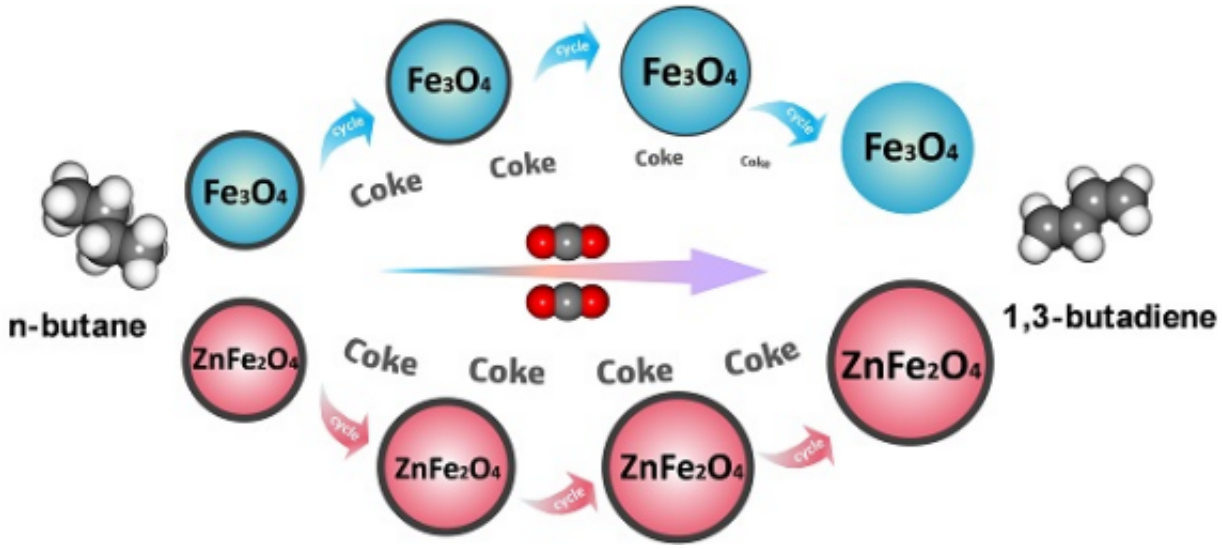
该团队通过循环再生过程实现了Fe_2O_3
催化性能的逐步修复，并基于失活动力学对相变失活和结焦失活过程进行了拆分。研究发现：在再生循环实验过程中，反应初期因Fe_2O_3
相变和表面还原导致再生催化剂与新鲜催化剂表现出相近的失活速率；随着反应再生循环次数增加，积碳失活过程逐渐减
缓，积碳失活速率常数由新鲜催化剂的0.17h^{-1}
逐渐降低至第5个循环测试的0.01h^{-1}
，积碳失活过程基本被终结。该团队借助Raman、XPS、TEM等表征技术系统分析了循环再生后催化剂的表面结构和化学性质，明晰了Fe_2O_3
催化剂抗还原、抗积碳能力提升

的本质原因。该工作为高稳定Fe_2O_3催化剂的制备提供了新思路。

近年来，朱向学、李秀杰团队在烷烃-CO_2
耦合转化方面开展了大量研究，围
绕乙烷、丙烷、丁烷与CO_2
耦合转化反应，从高分散铁物种稳定、活性相结构演变到双金属活性位点构筑等取得了系列进展
。

相关研究成果以*Structural reconstruction of iron oxide induces stable catalytic performance in the oxidative dehydrogenation of n-butane to 1,3-butadiene*为题，发表在《化学工程杂志》（*Chemical Engineering
Journal*
）上。研究工作得到国家自然科学基金、大连市重点领域创新团队支持计划、中国科学院战略性先导科技专项（A类）“ 变革性洁净能源关键技术与示范 ”等的支持。

论文链接



大连化物所揭示氧化铁催化剂在正丁烷-CO_2耦合脱氢反应中原位重构与性能修复机制

研究团队单位：大连化学物理研究所

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发