

山西煤化所“缓释催化”研究获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/3369.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！

山西煤化所“缓释催化”研究获进展。铜基催化剂因其具有低成本和催化选择性高的优势，在许多重要的化工过程中有着广泛的应用，如合成甲醇、水煤气变换、草酸二甲酯加氢、甲醇制氢等。然而，催化剂的失活现象在铜基催化剂上表现得尤为突出，这主要是由于铜的Hüttig temperature低，热稳定性差，导致Cu在反应过程中易聚集长大，造成铜的分散度下降、比表面积降低。这种易烧结长大的行为是铜基催化剂具有的共性，因此如何提高铜基催化剂的稳定性是一直以来研究的关键问题。铜基催化剂不仅易失活，而且因铜烧结长大导致失活的催化剂难以再生重复使用。

近年来，中国科学院山西煤炭化学研究所研究员高志贤团队针对铜易于烧结的特性，提出“缓释催化”的新概念，即在反应前不进行预还原处理，活性铜在反应过程中逐渐释放的催化过程。基于缓释催化技术，以铜铝尖晶石(CuAl_2O_4)为催化剂，应用于甲醇水蒸气重整制氢反应，大幅度提高了催化性能，实现了甲醇高效制氢(Angew. Chem. Int. Ed.2014, 53, 11886)。该催化剂以氢氧化铜和拟薄水铝石为原料，通过固相法合成，制备过程绿色环保。围绕铜铝尖晶石的缓释催化，该团队结合实验探索与理论计算，对铜铝尖晶石的制备化学以及铜铝尖晶石的结构、还原性能、表面性质等对其缓释催化性能的影响进行了深入研究，深化了对铜铝尖晶石缓释催化的认识，部分研究结果已发表(J. Fuel Chem. Technol., 2017, 45, 1481; Catal. Sci. Technol., 2017, 7, 5069)。

近日，该团队在“缓释催化”研究上取得新进展，一方面以第二组分Ni对 CuAl_2O_4 进行改性，进一步提高了 CuAl_2O_4 的缓释催化性能;另一方面，以具有层状结构的偏铝酸铜(CuAlO_2)为催化剂，基于缓释催化技术，实现了铜基催化剂的可再生重复使用。具体研究结果如下：

采用第二组分Ni对 CuAl_2O_4 进行改性，通过合成控制使Ni进入尖晶石骨架，调变 CuAl_2O_4 的还原性能和表面性质，从而进一步提高了 CuAl_2O_4 对甲醇制氢反应的缓释催化性能。其主要作用机制包括三点：Ni改性减缓了铜的还原速率；Ni改性调变了催化剂表面铜的配位分布，形成了更多的八面体尖晶石铜；铜缓释后形成的缺陷尖晶石($\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}_2\text{O}_4$)对还原的铜具有较高的稳定作用。在最优组成的催化剂上，实现了2000h连续稳定的运行。近期，该研究结果发表在Chem CatChem期刊上(2018)。该催化体系在甲醇制氢以及以甲醇作为储氢分子应用于分布式加氢站领域表现出较好的应用前景，目前正在筹划催化剂的中试放大与推广应用。

偏铝酸铜(CuAlO_2)是一种具有层状结构的材料，铜以一价的形式存在，具有较高的还原温度(>650)。以固相法合成的 CuAlO_2 为催化剂，通过缓释催化技术，应用于甲醇水蒸气重整制氢反应，不仅提高了催化剂的稳定性，而且实现了铜基催化剂的再生重复使用。再生过程简单易实现，即对反应后的催化剂(反应时间大于1000h)先在Air气氛下500℃氧化，随后在 N_2 气氛下热处理(热处理温度与催化剂的合成温度相同)。该研究结果为研究开发具有较好再生性能的铜基催化剂体

系提供了新的思路，于近期发表在Chemical Communications期刊上(2018, 54, 12242)。

研究成果得到国家基金委的项目资助(21503254, 21673270, 21763018)。

文章链接：12

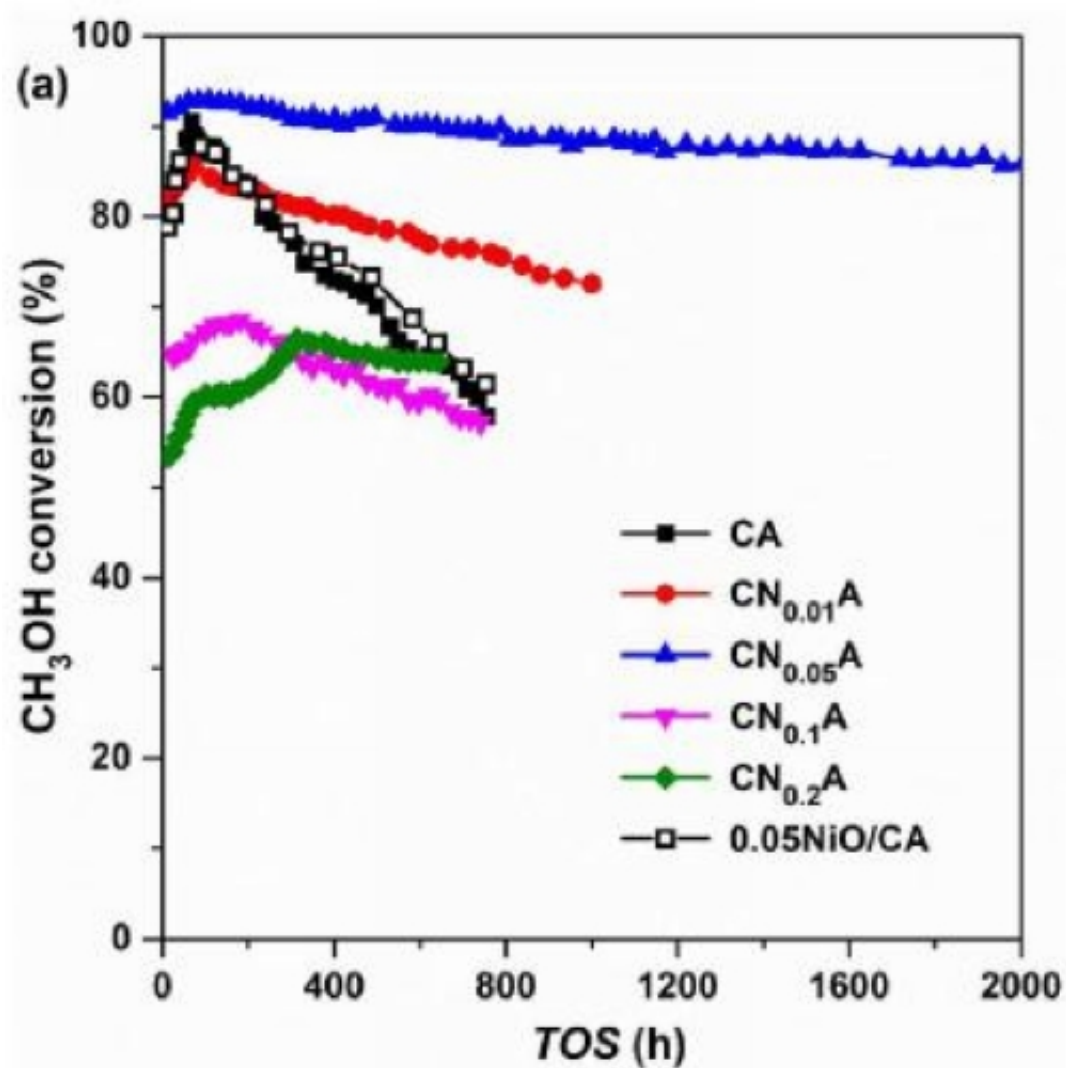


图1 不同镍含量改性铜铝尖晶石催化剂的缓释催化性能

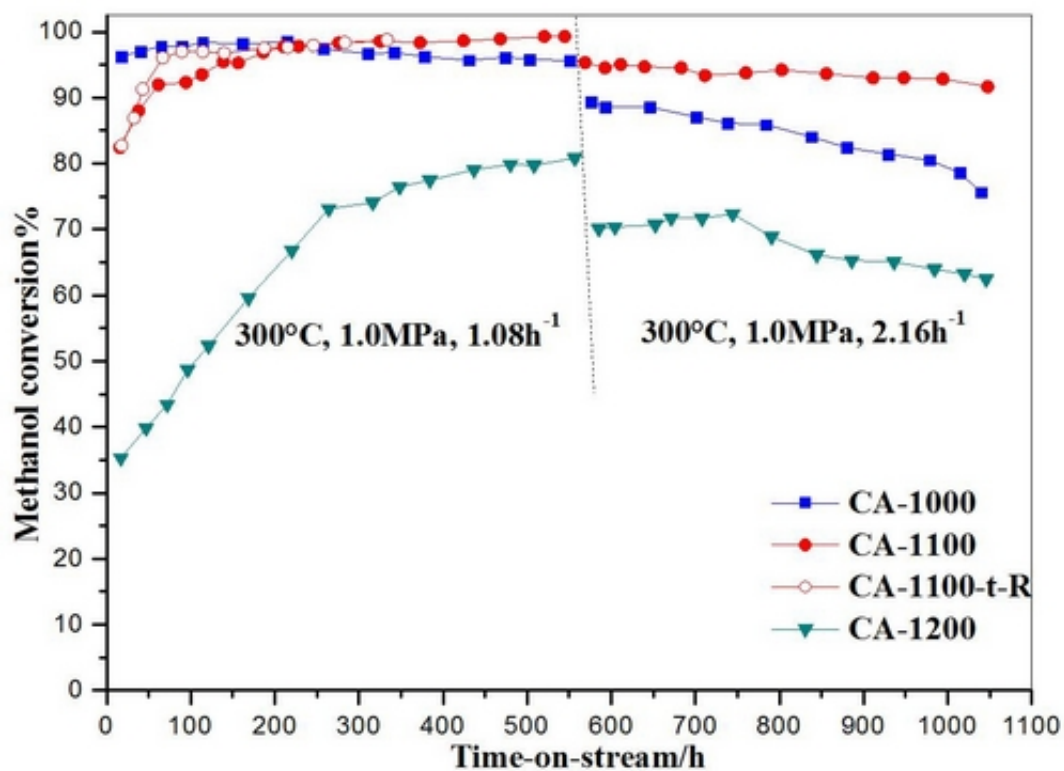


图2 CuAlO₂的催化性能及其再生性能

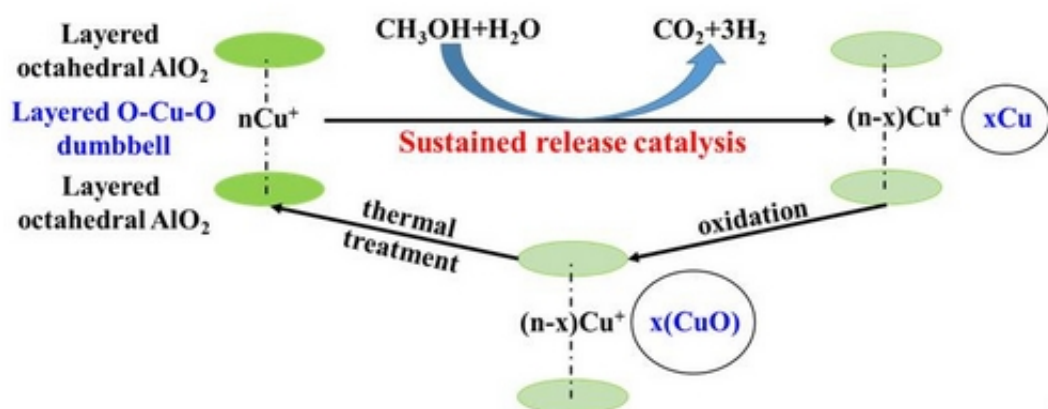


图3 CuAlO₂催化剂的再生技术路线

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](https://www.iikx.com)转发