



## 我校物质学院杨波课题组研究揭示钴基甲烷干重整催化剂的失活机制

ON 2020-03-17

文章来源 物质科学与技术学院

CATEGORY 新闻

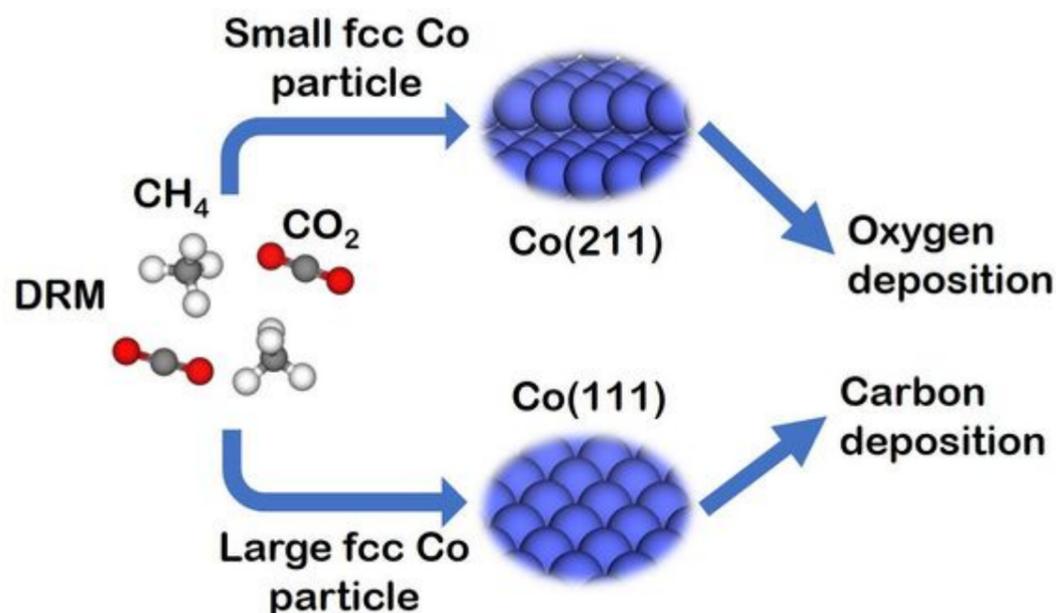
近日，我校物质学院杨波课题组在钴基催化剂用于催化甲烷干重整的反应动力学与催化剂失活机理的理论研究方面取得了重要进展。该工作以反应条件下较稳定的面心立方相钴的（111）与（211）晶面为研究对象，结合密度泛函理论计算与微观动力学模拟手段，深入分析了钴催化剂的催化活性与失活机理，为理解与设计用于甲烷干重整的钴基催化剂提供了新方向。此项成果以“Dry Reforming of Methane over the Cobalt Catalyst: Theoretical Insights into the Reaction Kinetics and Mechanism for Catalyst Deactivation”为题发表于国际知名学术期刊*Applied Catalysis B: Environmental*。

甲烷干重整反应因其能产生合成气且以重要温室气体甲烷与二氧化碳为反应物而受到广泛关注。除了贵金属以及镍基催化剂，过渡金属钴也显示出对该反应较高的催化活性。然而大量实验研究发现，钴基催化剂易失活，且失活行为与催化剂中金属钴负载量相关：负载量高的催化剂表现为积碳失活，负载量低的催化剂则表现为氧化失活。由于目前对于钴基催化剂催化甲烷干重整反应的动力学及催化剂运行过程中的失活机理欠缺分子层次的理解，设计与开发稳定的高活性钴基催化剂仍然是该领域一大难题。

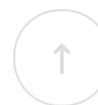
研究人员选取了在普通甲烷干重整条件下最稳定的面心立方相钴，同时考虑到粒径越大则平面占比越大，粒径越小则低配位数表面占比越大，最终选取Co（111）与Co（211）表面作为研究对象，利用密度泛函理论结合微观动力学模拟的方法，研究了不同面心立方相钴表面催化甲烷干重整反应的活性与失活机理。结果显示，Co（211）表面为甲烷干重整反应的主要活性位点但易因氧化而失活；Co（111）表面为积碳失活位点且机理为反应中生成的碳在表面的耦合。同时，研究人员发现，反应温度对Co（111）表面积碳具有重要影响。在此基础上并结合课题组前期发展的快速分析方法，研究人员提出了可通过掺杂合适的助剂来降低速控步骤能垒并调控表面碳或氧的吸附强度，来获得具有高活性与高稳定性的钴基催化剂。

该工作中，我校物质学院2017级博士研究生陈姝樾为第一作者，杨波教授为通讯作者，上科大为第一完成单位。该研究获得了国家自然科学基金委员会“碳基能源转化利用的催化科学”重大研究计划培育项目支持，相关计算在校图信中心高性能计算平台与上海超算中心完成。

论文链接：<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0926337320302745>



大粒径的钴颗粒表面Co(111)占比较高，但易由于积碳而失活；而小粒径颗粒表面Co(211)占比高，为甲烷干重整反应的主要活性位点但易因氧化而失活。



分享到



Copyright © 上海科技大学 版权所有沪ICP备13001436号

上海市浦东新区华夏中路393号 201210 (浦东校区)

附属学校

 沪公网安备 31011502006855号

上海市徐汇区岳阳路319号8号楼 200031 (岳阳路校区)

附属幼儿园

