

科研进展

> 图片新闻

> 工作动态

> 通知公告

> 党建工作

> 人才教育

> 科研进展

> 区域创新

> 专家视野

> 传媒视角

> 图片库

> 视频新闻

首页 >> 科研进展

科研进展

兰州化物所甲烷二氧化碳重整研究获新进展

发表日期: 2023-01-06 来源: 兰州化学物理研究所 【放大 缩小】

甲烷二氧化碳重整过程 (DRM) 提供了一条规模化综合利用碳源并转化温室气体的技术路线, 对推进能源革命、实现“双碳”战略目标具有重要现实意义, 也是碳—化学中极富挑战性的重要研究课题。尽管该过程具有环境和经济上的诸多优势, 但工业化方面存在相关催化剂在高温与长期操作中积碳和金属烧结造成催化剂失活等问题。因此, 高稳定性催化剂的创制及工程化技术开发成为突破产业化技术的关键。

中国科学院兰州化学物理研究所羰基合成与选择氧化国家重点实验室丑凌军研究员团队长期致力于DRM研究。该团队前期运用溶剂挥发自组装策略设计制备出系列有序介孔复合氧化物NiAl、NiMgAl、NiCaAl、NiSiAl、NiCeZr等 (Eur J Inorg Chem., 2020, 631; 2016, 3396; Appl Catal A: Gen, 2016, 520, 140; Int J Hydrogen Energy, 2012, 37, 7497; 2012, 37, 18001; 2013, 38, 7307; 2014, 39, 3253; Catal Sci Technol, 2013, 3, 1942; 2014, 4, 1759; ACS Catal, 2012, 2, 1331; Appl Catal B-Environ, 2011, 108, 177)。由于介孔骨架的“限域效应”, 使得该系列介孔催化剂在还原和反应过程中造成的金属Ni活性中心严重积碳和热烧结在一定程度上得到抑制, 表现出优越的催化稳定性。研究人员还系统研究了碱土金属、稀土金属等助剂对材料性能的影响规律和调控机制。

近期, 该团队采用简单浸渍法合成了具有金属-载体强相互作用的低Ni含量Ni-La<sub>2</sub>O<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>催化剂, 用于甲烷二氧化碳重整反应。原位X射线衍射仪 (XRD) 及高分辨透射电子显微镜 (HRTEM) 表征发现该材料在还原气氛下转变为Ni-La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 并存在明显的Ni-La界面, 值得注意的是该界面无积碳产生。在无稀释气条件下, 催化剂持续运行300h且未出现失活现象, 有效避免了甲烷二氧化碳重整制合成气反应中催化剂因高温烧结和积碳的问题。

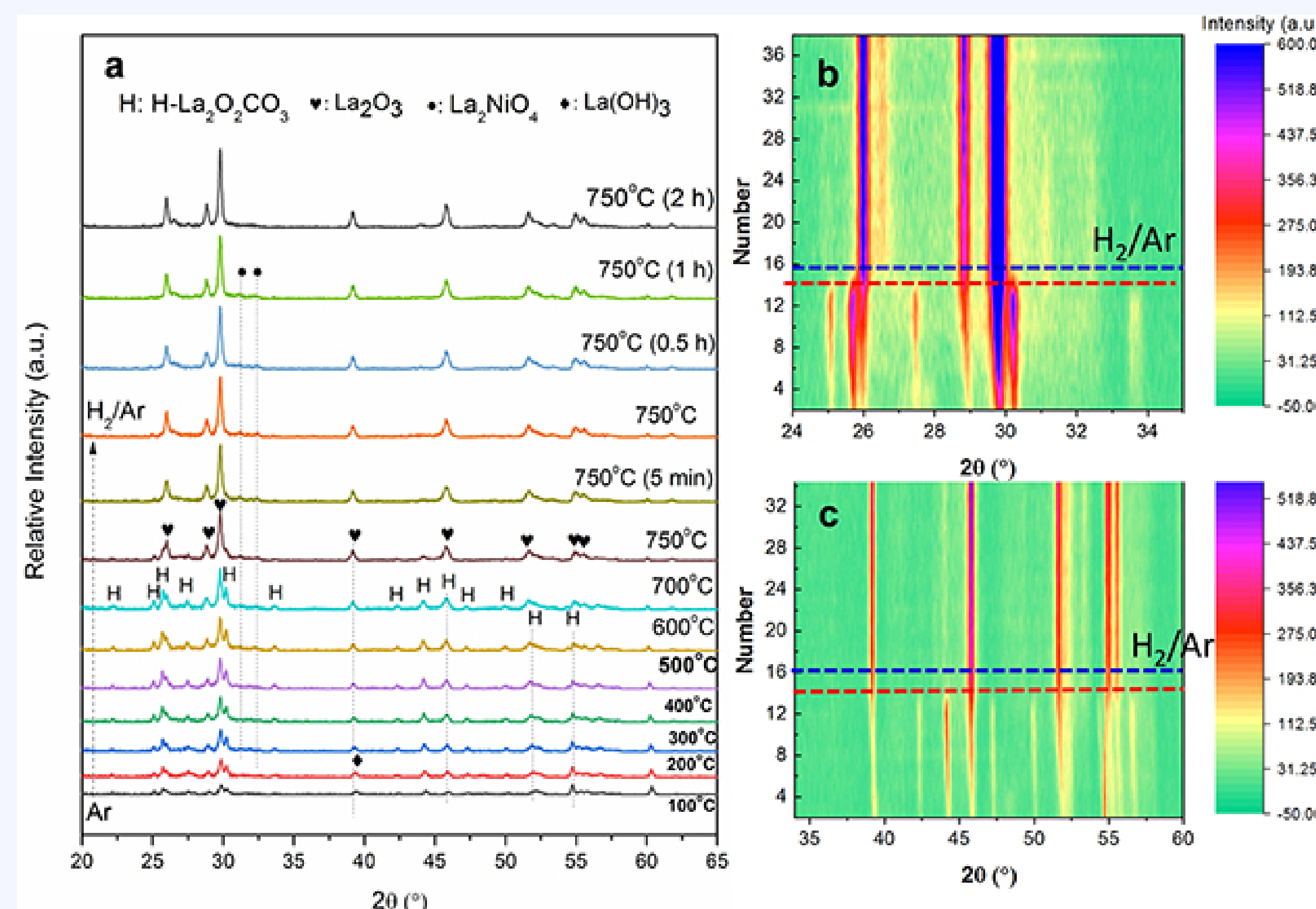


图1. 1Ni-La<sub>2</sub>O<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>催化剂在还原气氛下的原位XRD谱图

研究人员进一步对活性中心及反应机制深入探究发现, CH<sub>4</sub>在孤立Ni位点和Ni-La界面活化, CO<sub>2</sub>在载体和Ni-La界面活化。甲烷在孤立的Ni位点上裂解成H<sub>2</sub>和C, C首先快速地在其周围沉积, 相距较远的La<sub>2</sub>O<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>来不及消碳, 从而C慢慢长大变厚形成碳纳米管, 而Ni-La界面可实现快速消碳, 建立积消平衡, 避免积碳发生。

该工作为开发高稳定性非贵金属甲烷二氧化碳重整催化剂提供了新思路。相关成果以“Highly coke-resistant Ni-La<sub>2</sub>O<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> catalyst with low Ni loading for dry reforming of methane with carbon dioxide”为题发表在Catalysis Today (2022, 402, 189)上, 申请专利 (CN 202110262555.3, CN 202210317708.4, CN 202210317980.2) 3件。

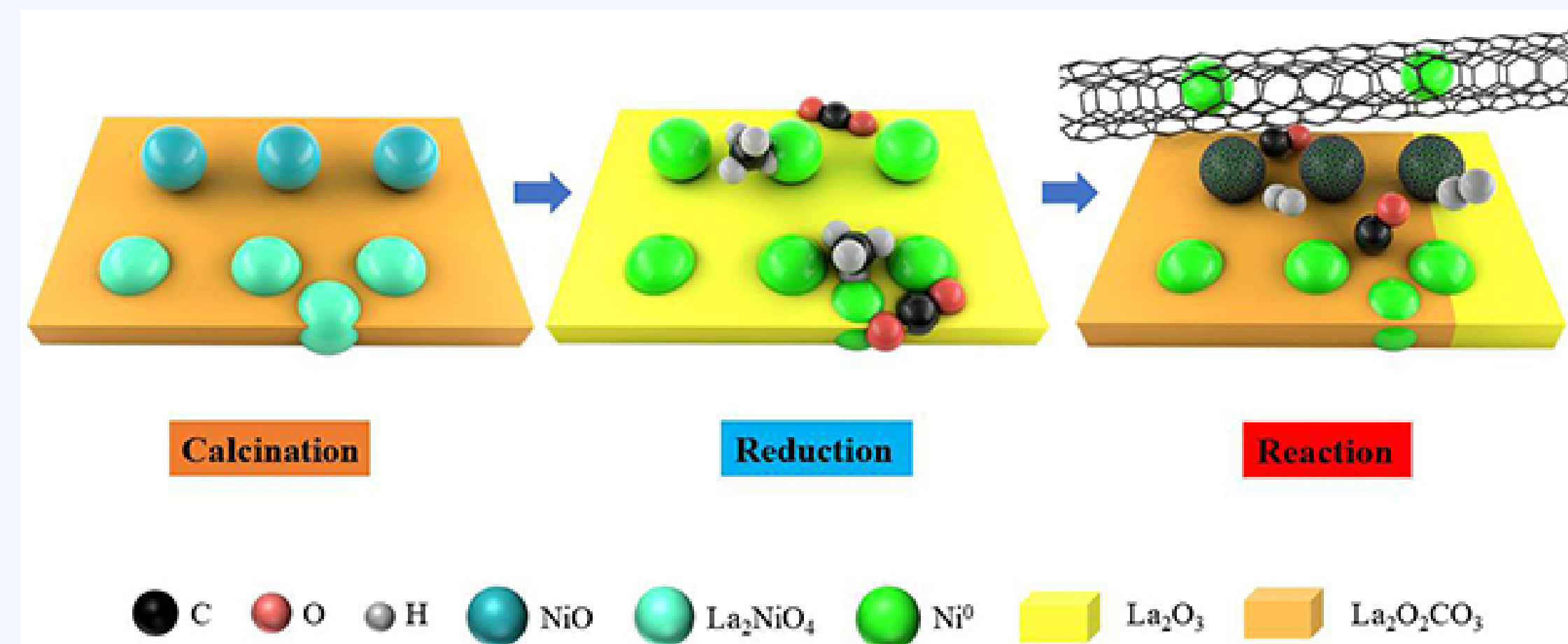


图2. Ni-La<sub>2</sub>O<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>催化剂甲烷二氧化碳重整反应机制示意图

以上工作得到了国家自然科学基金面上项目、中科院洁净能源创新研究院合作基金、中科院“西部之光”人才计划以及羰基合成与选择氧化国家重点实验室等的支持。

