燃料化学学报
JOURNAL OF FUEL CHEMISTRY AND TECHNOLOGY
ISSN 0253-2409
CN 14-1140/TQ

燃料化学学报 » 2012, Vol. 40 » Issue (07): 843-847 DOI:

浆态床反应器中生物质合成气合成二甲醚的研究

马俊国, 葛庆杰, 马现刚, 徐恒泳

中国科学院大连化学物理研究所 洁净能源国家重点实验室, 大连 116023

DME synthesis from biomass-derived syngas in a slurry-bed reactor

MA Jun-guo, GE Qing-jie, MA Xian-gang, XU Heng-yong

Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian National Laboratory of Energy, Dalian 116023, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章
- 点击分布统计
- 下载分布统计

全文: PDF (419 KB) HTML (1 KB) 输出: BibTeX | EndNote (RIS) 背景资料

摘要 进行了浆态床反应器中,甲醇合成催化剂与分子筛混合制复合催化剂上,生物质制取的合成气(简称生物质合成气)一步法合成二甲醚的研究,重点考察了不同脱水组分和工艺条件对催化剂反应性能的影响,同时,结合NH_3-TPD等手段对催化剂进行了表征。结果表明,含有较弱酸性SAPO-11分子筛的复合催化剂更适合生物质合成气原料气杂质多、氢碳比低的特点,在合成二甲醚反应中具有更高的选择性和稳定性。250℃、5 MPa、500 h^{-1}时,在甲醇催化剂与SAPO-11分子筛比例为3:1的复合催化剂上,合成气合成二甲醚反应35 h内,CO转化率稳定在40%以上,二甲醚在有机产品中的选择性保持在97%左右。

关键词: 二甲醚 浆态床 SAPO分子筛 生物质合成气

Abstract: Dimethyl ether (DME) synthesis from biomass-derived syngas in a slurry-bed reactor was investigated over a hybrid catalyst composed of methanol synthesis catalyst and molecular sieve. The results showed that the catalyst containing SAPO-11 exhibits higher DME selectivity and catalytic stability, which is closely related to the weak acidity of SAPO-11 in the hybrid catalysts. 40% CO conversion and 95% DME selectivity in organic products could be kept during 35 h stability test over the hybrid catalyst when the weight ratio of methanol synthesis catalyst to SAPO-11 was 3.

Key words: dimethyl ether slurry-bed reactor SAPO-11 molecular sieve biomass-derived syngas

收稿日期: 2011-10-17;

基金资助:

国家科技支撑计划项目(2011BAD22B06); 国家高技术研究发展计划(863计划, 2009AA05Z434); 中国科学院知识创新工程重要方向性项目(0812021100)。

通讯作者: 葛庆杰, Tel: 0411-84379229, E-mail: geqj@dicp.ac.cn. E-mail: geqj@dicp.ac.cn

引用本文:

马俊国,葛庆杰,马现刚等. 浆态床反应器中生物质合成气合成二甲醚的研究[J]. 燃料化学学报, 2012, 40(07): 843-847.

MA Jun-guo,GE Qing-jie,MA Xian-gang et al. DME synthesis from biomass-derived syngas in a slurry-bed reactor[J]. J Fuel Chem Technol, 2012, 40(07): 843-847.

链接本文:

http://rlhxxb.sxicc.ac.cn/CN/ 或 http://rlhxxb.sxicc.ac.cn/CN/Y2012/V40/I07/843

服务
- 把本文推荐给朋友
- 加入我的书架
- 加入引用管理器
- E-mail Alert
- RSS

作者相关文章
- 马俊国
- 葛庆杰
- 马现刚
- 徐恒泳

[1] 吕永兴, 王铁军, 李宇萍, 吴创之, 马隆龙. 生物质合成气一步法合成LPG的实验研究 [J]. 燃料化学学报, 2008, 36(2): 246-249. (LV Yong-xing, WANG Tie-jun, LI Yu-ping,WU Chuang-zhi, MA Long-long. Direct synthesis of liquefied petroleum gas from biomass synthesis gas[J]. Journal of Fuel Chemistry and Technology, 2008, 36(2): 246-249.)

[2] GANG X, ZHU Y, BIRCH H N, HJULER H A, BJERRUM N J. Iodine as catalyst for the direct oxidation of methane to methyl sulfates in Oleum [J]. Appl Catal A, 2004, 261(1): 91-98.

[3] HAMELINCK C N,FAAIJ A P C. Future prospects for production of methanol and hydrogen from biomass [J]. J Power Sources, 2002, 111 (1): 1-22.

[4] 汪俊锋, 常杰, 阴秀丽, 付严. 生物质气催化合成甲醇的研究 [J]. 燃料化学学报, 2005, 33(1): 58-61. (WANG Jun-feng, CHANG Jie, YIN Xiu-li, FU Yan.Catalytic synthesis of methanol from biomass-derived syngas [J].Journal of Fuel Chemistry and Technology, 2005, 33(1): 58-61.)

[5] 葛庆杰, 黄友梅, 李树本. 二甲醚的用途及制备 [J].石油化工, 1997, 26(8): 560-564. (GE Qing-jie, HUANG You-mei, LI Shu-ben. The use and preparation of dimethyl ether [J]. Petrochemical Technology, 1997, 26(8): 560-564.)

[6] MAUREEN ROUHI A. Amoco, Haldor Topsoe develop dimethyl ether as alternative diesel fuel [J]. Chem Eng News, 1995,73(22) :37-39.

[7] 谢光全. 二甲醚的应用 [J]. 天然气化工, 1996, 21(3): 52-54. (XIE Guang-quan. Application of dimethyl ether [J]. Natural Gas Chemical Industry, 1996, 21(3): 52-54.)

[8] 汪俊锋, 常杰, 阴秀丽. 生物质间接液化制洁净燃料二甲醚 [J]. 太阳能学报, 2005, 26(3): 412-418. (WANG Jun-feng, CHANG Jie, YIN Xiu-li. Synthesis of clean fuel dimethyl ether by indirect liquefaction of biomass [J]. Acta Energiae SolarisSinica, 2005, 26(3): 412-418.)

[9] MICHAIKIEWICZ B, KALUCKI K, SOSNICKI J G. Catalytic system containing metallic palladium in the process of methane partial oxidation [J]. J Catal, 2003, 215(1): 14-19.

[10] 王铁军, 常杰, 吕鹏梅. 生物质热化学转化合成二甲醚[J].过程工程学报, 2005, 5(3): 277-280. (WANG Tie-jun, CHANG Jie, LV Peng-mei. Dimethyl ether synthesis from biomass by thermochemical method [J]. The Chinese Journal of Process Engineering,2005, 5(3): 277-280.)

[11] CHEN L Y, YANG B L, ZHANG X C, DONG W, CAO K, ZHANG X P.Methane oxidation over a V_2O_5 catalyst in the liquid phase[J]. Energy Fuel, 2006, 20(3): 915-918.

[12] 陈立宇, 杨伯伦, 张秀成, 董武, 张小平. 含钒杂多酸催化发烟硫酸中甲烷液相部分氧化反应[J]. 催化学报, 2006, 27(6): 462-464. (CHEN Li-yu,YANG Bo-lun, ZHANG Xiu-cheng, DONG Wu, ZHANG Xiao-ping. Methane partial oxidation in liquid phase using vanadium-containing heteropolyacid catalysts in Oleum[J]. Chinese Journal of Catalysis, 2006, 27(6): 462-464.)

[13] ARCOUMANIS C, BAE C, CROOKES R, KINOSHITA E. The potential of dimethyl ether (DME) as an alternative fuel for compression-ignition engines: A review [J]. Fuel, 2008, 87(7): 1014-1030.

[14] 尹国川, 奚祖威. 一些无机盐对甲烷的液相选择催化氧化[J]. 催化学报, 1997, 18(5): 402-405. (YIN Guo-chuan, XI Zu-wei. Selective oxidation of methane by some inorganic salts in liquid phase[J]. Chinese Journal of Catalysis, 1997, 18(5): 402-405.)

[15] 陈立宇, 杨伯伦, 张秀成, 董武, 曹凯. V_2O_5催化甲烷液相部分氧化工艺过程研究[J]. 高校化学工程学报, 2006, 20(3): 417-421. (CHEN Li-yu, YANG Bo-lun, ZHANG Xiu-cheng, DONG Wu, CAO Kai. Study on the partial oxidation process of methane in liquid phase catalyzed by V_2O_5 [J]. Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities, 2006, 20(3): 417-421.)

[16] 陈立宇, 杨伯伦, 张秀成, 董武. 甲烷部分氧化反应的磷钨酸催化剂研究[J]. 高校化学工程学报, 2007, 21(4): 650-653. (CHEN Li-yu, YANG Bo-lun, ZHANG Xiu-cheng, DONG Wu. Study on the phosphotungsticacid catalyst used for partial oxidation of methane[J]. Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities, 2007, 21(4): 650-653.)

[17] LAU F S. The Hawaiin project [J]. Biomass Bioenergy, 1998, 15(3): 233-238.

[18] SHILOV A E, SHULPIN G B. Activation of C-H bonds by metal complex[J]. Chem Rev, 1997, 97(8): 2879-2932.

[19] 王铁军. 高稳镍基催化剂催化生物质燃气重整制合成气的研究. 合肥: 中国科学技术大学, 2005: 106-120. (WANG Tie-jun. Reforming of biomass fuel gas to synthesis gas over highly stable nickel catalyst. Hefei: University of Science and Technology of China, 2005: 106-120.)

[20] 冯杰, 吴志斌, 秦育红, 李文英. 生物质空气—水蒸气气化制取合成气热力学分析[J]. 燃料化学学报, 2007, 35(4): 397-400. (FENG Jie, WU Zhi-bin, QIN Yu-hong, LI Wen-ying. Thermodynamics analysis of biomass gasification with air—steam [J]. Journal of Fuel Chemistry and Technology, 2007, 35(4): 397-400.)

[21] 贾美林, 徐恒泳, 李文钊, 侯守福, 王玉忠, 葛庆杰, 徐显明, 孔繁华. 浆态床反应器中含氮合成气合成二甲醚的研究 [J]. 天然气化工(C1化学与化工), 2004, 28(2): 1-5. (JIA Mei-lin, XU Heng-yong, Li Wen-zhao, HOU Shou-fu, WANG Yu-zhong, GE Qing-jie, XU Xian-ming, KONG Fan-hua. The Study of Direct Synthesis of DME from N_2-containing Syngas in Slurry-Bed Reactor [J]. Natural Gas Chemical Industry, 2004, 28(2): 1-5.)

[22] STAHI S S, LABINGER J A, BERCAW J E. Homogeneous oxidation of alkanes by electrophilic late transiytion metal[J]. Angew Chem Int Ed, 1998, 37: 2180-2192. 3.0.CO;2-A target="_blank">

[23] HICKMAN D A, SCHMIDT L D. Production of syngas by direct catalytic oxidation of methane [J]. Science, 1993, 259(5093): 343-346.

[24] ARAKAWA H, ARESTA M, ARMOR J N, et al. Catalysis research of relevance to ca-bon management: progress, challenges, and opportunities[J]. Chem Rev, 2001, 101(4): 953-996.

[1] 李忠, 张小兵, 郭启海, 刘岩, 郑华艳. 沉淀及老化温度对浆态床合成甲醇$CuO/ZnO/Al_2O_3$催化剂活性及稳定性的影响[J]. 燃料化学学报, 2012, 40 (05): 569-575.

[2] 吉鹏, 黄伟, 樊金串, 黄涛, 高仲良, 赵金珍. CS_2对完全液相法制备的 Cu-Zn-Al催化剂上合成气制DME反应性能的影响[J]. 燃料化学学报, 2012, (04): 447-451.

[3] 杨琦, 王帅, 唐秀娟, 费金华, 侯昭胤, 郑小明. Cu-Mn-Zn/Y直接合成二甲醚催化剂中锌和锰的协同调节作用[J]. 燃料化学学报, 2012, 40(03): 350-353.

[4] 毛东森, 夏建超. 分子筛硅铝比及晶粒粒径对 Cu-ZnO-Al_2O_3/HZSM-5催化剂直接合成二甲醚反应性能的影响[J]. 燃料化学学报, 2012, 40(02): 235-240.

[5] 赵 启, 王 辉, 秦张峰, 吴志伟, 武建兵, 樊卫斌, 王建国. **分子筛催化剂上甲醇与三聚甲醛缩合制聚甲醛二甲醚**[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(12): 918-923.

[6] 王 钰, 樊 伟, 刘 颖, 曾志勇, 徐元源, 相宏伟, 李永旺. **费托合成鼓泡浆态床反应器模型化研究**[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(12): 961-966.

[7] 满建明, 张清德, 解红娟, 潘俊轩, 谭猗生, 韩怡卓. **反应气氛对Ca/ZSM-5上二甲醚转化制丙烯反应的影响**[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(1): 42-46.

[8] 李志红, 宋雅君, 左志军, 黄 伟. **浆态床二甲醚合成催化剂失活因素研究**[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(08): 627-632.

[9] 李 超, 李 琢, 李建青, 杨 成, 吴晋沪. **一步法合成二甲醚整体式催化剂的制备及反应性能研究**[J]. 燃料化学学报, 2011, 39(04): 287-292.

[10] 许庆利, 蓝平, 周明, 颜涌捷. 生物质间接液化合成燃料二甲醚[J]. 燃料化学学报, 2010, 38(03): 292-296.

[11] 左宜赞, 张强, 安欣, 韩明汉, 王铁锋, 王金福, 金涌. 浆态床中Cu/ZnO/Al_2O_3/ZrO_2+γ-Al_2O_3双功能催化剂一步法合成二甲醚[J]. 燃料化学学报, 2010, 38(01): 102-107.

[12] 孙明, 余林, 余倩, 余坚, 郝志峰. Ce掺杂的OMS-2催化剂上二甲醚催化燃烧性能的研究[J]. 燃料化学学报, 2010, 38(01): 108-115.

[13] 柴永明, 相春娥, 孔会清, 柳云骐, 刘晨光. 馏分油浆态床加氢处理研究:
II FCC柴油加氢工艺条件及动力学研究[J]. 燃料化学学报, 2009, 37(01): 58-64.

[14] 柴永明, 相春娥, 孔会清, 柳云骐, 刘晨光. 馏分油浆态床加氢处理研究 I 催化剂制备方法[J]. 燃料化学学报, 2008, 36(06): 720-725.

[15] 高志华, 孙旭伟, 黄伟, 阴丽华, 谢克昌. 不同含量CO2热处理气氛对完全液相法制备二甲醚催化剂性能的影响[J]. 燃料化学学报, 2008, 36(04): 503-507.