

我国在费托合成催化剂助剂机理研究上取得突破

K助剂是费托合成铁基催化剂不可或缺的组成部分，长期以来国际上对K助剂作用机理的认识一直处于混沌的“黑箱”状态。近日，中国科学院山西煤炭化学研究所、中科合成油技术有限公司的合成油科研团队从理论上阐明了费托合成铁基催化剂的关键助剂K对活性相表面结构的调变作用，这对高性能煤制油催化剂的研制具有重要的指导作用。

众所周知，大多数多相催化剂均需添加一定量的碱金属助剂来获取最佳的催化活性和选择性，其中费托合成和合成氨催化剂就是最典型的例子。在过去几十年内，大多数实验和理论工作集中于金属K与CO在金属表面共吸附体系的电子效应研究，提出给电子作用、极化诱导作用、静电相互作用等观点。但金属K和催化体系中“真实助剂状态”的氧化态钾具有完全不同的电子结构，且K的电子效应通常为短程作用，基于电子效应的各种观点均不能合理解释为什么微量K助剂对催化剂活性和选择性会产生显著影响。

合成油团队基于密度泛函理论和实验研究，首次揭示了K助剂的一个重要作用是调变铁微晶的晶面取向。钾助剂(K₂O)对Fe(110),(100),(111),(211),(210),(321),(310)面具有不同程度的稳定化作用。随钾含量的变化，上述表面的相对稳定性发生改变，因此改变了铁微晶在不同晶向的相对生长速度，使得铁微晶暴露更多的高活性晶面。对于不含钾助剂的催化剂，主要暴露Fe(110)面，随钾的添加，(110)和(100)面占铁微晶总表面的比例减少，而高活性晶面(211)和(310)的比例增加。

该研究结果不仅对认识多相催化助剂效应提供了一个全新的视角，而且为高活性、高选择性、晶面取向可控催化剂的构筑提供了强有力的理论指导。

该工作最近发表在德国《应用化学》(Angew Chem Int. Ed. 2011, 50, 7403 - 7406)上。这是该团队继发现甲烷形成的反应能与有效势垒分别与铁碳化物表面C原子的电荷及表面的d带中心能量线性相关 (JACS, 2009, 131 (41) :14713-14721) 后的又一重要理论突破。

项工作得到国家自然科学基金重大项目、国家杰出青年基金、国家科技部863项目等的支持。
(来源:中国科学院网)

中国化工学会

2011年8月6日

[关闭]