

纳米 Li_2ZrO_3 吸收剂原位移除 CO_2 强化水煤气变换反应制氢

张元卓, 于兹瀛, 张富民^a, 肖强, 钟依均, 朱伟东^b

浙江师范大学物理化学研究所, 先进催化材料教育部重点实验室, 浙江金华 321004

ZHANG Yuanzhuo, YU Ziyang, ZHANG Fumina, XIAO Qiang, ZHONG Yijun, ZHU Weidong^b

Key Laboratory of the Ministry of Education for Advanced Catalysis Materials, Institute of Physical Chemistry, Zhejiang Normal University, Jinhua 321004, Zhejiang, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (631KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

摘要 采用浸渍法制备了在水煤气变换 (WGS) 反应中具有高催化活性的 $\text{Ni}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 催化剂, 使用柠檬酸法合成出高效 CO_2 吸收剂 Li_2ZrO_3 纳米材料. 在固定床微反应器上对 WGS 和吸附强化水煤气变换 (SE-WGS) 反应制氢过程进行了比较研究. 前者只使用 20% $\text{Ni}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 催化剂, 而后者将 20% $\text{Ni}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 催化剂与纳米 Li_2ZrO_3 吸收剂混合装填. 结果表明, 纳米 Li_2ZrO_3 具有比已报道的 CO_2 吸收剂更快的吸收速率及优异的吸脱附循环稳定性, 可应用于吸附强化过程. 通过原位吸收 WGS 反应产生的 CO_2 , 使得反应超越化学平衡限制, 直接制得高纯度 H_2 . 在 823 K, 0.1 MPa 和 $\text{H}_2\text{O}/\text{CO} = 4$ 的条件下, 在 SE-WGS 过程一步制得纯度高于 98% 的 H_2 , 验证了吸附强化反应进程制高纯氢的可行性.

关键词: 制氢 二氧化碳 吸收剂 水煤气变换反应 锆酸锂

Abstract: $\text{Ni}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ catalyst with high activity in water-gas shift (WGS) reaction was prepared by an impregnation method, and nano-sized Li_2ZrO_3 absorbent with excellent CO_2 capture properties was synthesized by a citrate sol-gel method. Two processes, WGS over 20% $\text{Ni}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ catalyst alone and sorption-enhanced WGS (SE-WGS) over 20% $\text{Ni}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ catalyst admixing with nano-sized Li_2ZrO_3 absorbent in a fixed-bed microreactor, towards the production of H_2 were compared. The nano-sized Li_2ZrO_3 absorbent shows better CO_2 capture properties than other CO_2 absorbents reported so far in terms of uptake rate and reusability. Based on these excellent properties, the application of the developed Li_2ZrO_3 absorbent in sorption-enhanced reaction process (SERP) for the in-situ removal of CO_2 produced from WGS leads to the equilibrium shift of the reaction to the production of H_2 with high purity. The H_2 purity higher than 98% can be achieved by SE-WGS at 823 K, a total pressure of 0.1 MPa, and a $\text{H}_2\text{O}/\text{CO}$ molar ratio of 4, demonstrating the concept of SERP for H_2 production.










Keywords: hydrogen production, carbon dioxide, absorbent, water-gas shift reaction, lithium zirconate

收稿日期: 2012-03-26; 出版日期: 2012-07-11

引用本文: 张元卓, 于兹瀛, 张富民等. 纳米 Li_2ZrO_3 吸收剂原位移除 CO_2 强化水煤气变换反应制氢[J] 催化学报, 2012, V33(9): 1572-1577

ZHANG Yuan-Zhuo, YU Zi-Ying, ZHANG Fu-Min etc. Li_2ZrO_3 Nanoparticles as Absorbent for in-Situ Removal of CO_2 in Water-Gas Shift Reaction to Enhance H_2 Production[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012, V33(9): 1572-1577

链接本文: <http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2012.20352> 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I9/1572>

- [1] Ramachandran R, Menon R K. Int J Hydrogen Energy, 1998, 23: 593 
- [2] Harrison D P. Ind Eng Chem Res, 2008, 47: 6486 
- [3] Holladay J D, Hu J, King D L, Wang Y. Catal Today, 2009, 139: 244 
- [4] Ratnasamy C, Wagner J P. Catal Rev-Sci Eng, 2009, 51: 325 
- [5] Sircar S. Ind Eng Chem Res, 2002, 41: 1389 
- [6] Carvill B T, Hufton J R, Anand M, Sircar S. AIChE J, 1996, 42: 2765 
- [7] Jang H M, Lee K B, Caram H S, Sircar S. Chem Eng Sci, 2012, 73: 431 
- [8] Stevens R W Jr, Shamsi A, Carpenter S, Siriwardane R. Fuel, 2010, 89: 1280 
- [9] Beaver M G, Caram H S, Sircar S. Int J Hydrogen Energy, 2009, 34: 2972 

Service

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

作者相关文章

- ▶ 张元卓
- ▶ 于兹瀛
- ▶ 张富民
- ▶ 肖强
- ▶ 钟依均
- ▶ 朱伟东

- [10] Wu S F, Wang L L. Int J Hydrogen Energy, 2010, 35: 6518 
- [11] Ding Y, Alpay E. Chem Eng Sci, 2000, 55: 3461 
- [12] 王银杰, 其鲁. 物理化学学报 (Wang Y J, Qi L. Acta Phys-Chim Sin), 2004, 20: 364
- [13] Xiao Q, Liu Y F, Zhong Y J, Zhu W D. J Mater Chem, 2011, 21: 3838 
- [14] Xiao Q, Tang X D, Liu Y F, Zhong Y J, Zhu W D. Chem Eng J, 2011, 174: 231 
- [15] Xiao Q, Tang X D, Zhong Y J, Zhu W D. J Am Ceram Soc, 2012, 95: 1544 
- [16] Newsome D S. Catal Rev-Sci Eng, 1980, 21: 275 
- [17] Senanayake S D, Evans J, Agnoli S, Barrio L, Chen T L, Hrbek J, Rodriguez J A. Top Catal, 2011, 54: 34 
- [18] Kim S H, Nam S W, Lim T H, Lee H I. Appl Catal B, 2008, 81: 97 
- [19] 张燕杰, 詹瑛瑛, 曹彦宁, 陈崇启, 林性贻, 郑起. 催化学报 (Zhang Y J, Zhan Y Y, Cao Y N, Chen Ch Q, Lin X Y, Zheng Q. Chin J Catal), 2012, 33: 230 
- [20] 余育生, 孙伟华, 詹瑛瑛, 林性贻, 郑起. 催化学报 (She Y Sh, Sun W H, Zhan Y Y, Lin X Y, Zheng Q. Chin J Catal), 2011, 32: 1220
- [21] 江莉龙, 马永德, 曹彦宁, 杨阳, 魏可镁. 物理化学学报 (Jiang L L, Ma Y D, Cao Y N, Yang Y, Wei K M. Acta Phys-Chim Sin), 2012, 28: 674
- [22] 方星, 陈崇启, 林性贻, 余育生, 詹瑛瑛, 郑起. 催化学报 (Fang X, Chen Ch Q, Lin X Y, She Y Sh, Zhan Y Y, Zheng Q. Chin J Catal), 2012, 33: 425 
- [23] 于强强, 李杨, 邹旭华, 卓红英, 姚媛媛, 索掌怀. 催化学报 (Yu Q Q, Li Y, Zou X H, Zhuo H Y, Yao Y Y, Suo Zh H. Chin J Catal), 2010, 31: 671
- [24] Roine A. In: Outokumpu HSC Chemistry. Revision 5.1. Finland: Outotec Ltd, 2002
- [25] Nair B N, Yamaguchi T, Kawamura H, Nakao S I, Nakagawa K. J Am Ceram Soc, 2004, 87: 68 
- [1] 孔猛, 杨琦, 卢雯, 范浙永, 费金华, 郑小明, Thomas D. WHEELLOCK. 焙烧温度对 Ni/MgO 催化剂结构及其在甲苯二氧化碳重整反应中催化性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(9): 1508-1516
- [2] 张文珍, 吕小兵. 二氧化碳作为羧化试剂用于羧酸及其衍生物的合成[J]. 催化学报, 2012,33(5): 745-756
- [3] 黄健, 马人熊, 高志华, 沈朝峰, 黄伟. CeO₂/Ni/Mo/SBA-15 甲烷二氧化碳重整催化剂的表征和催化性能[J]. 催化学报, 2012,33(4): 637-644
- [4] 刘文芳, 侯本象, 侯延慧, 赵之平. 中空纤维膜固定化甲酸脱氢酶催化 CO₂ 合成甲酸[J]. 催化学报, 2012,33(4): 730-735
- [5] 胡全红, 黎先财, 杨爱军, 杨春燕. BaTiO₃-BaAl₂O₄-Al₂O₃ 复合载体的制备、表征及其 Ni 基催化剂催化 CH₄/CO₂ 重整反应性能[J]. 催化学报, 2012,33(3): 563-569
- [6] 曹婷, 孙立婷, 石玉, 华丽, 张然, 郭立, 朱闻闻, 侯震山. 无机氧化物载体对催化 CO₂ 与环氧化物合成环状碳酸酯的促进作用[J]. 催化学报, 2012,33(3): 416-424
- [7] 方星, 陈崇启, 林性贻*, 余育生, 詹瑛瑛, 郑起. La₂O₃ 对 CuO/CeO₂ 水煤气变换反应催化剂微观结构及催化性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(3): 425-431
- [8] 张燕杰, 詹瑛瑛, 曹彦宁, 陈崇启, 林性贻, 郑起. 以水热法合成的 ZrO₂ 负载 Au 催化剂的低温水煤气变换反应[J]. 催化学报, 2012,33(2): 230-236
- [9] 王丹君, 陶芙蓉, 赵华华, 宋焕玲, 丑凌军. CO₂ 辅助老化制备的 Cu/ZnO/Al₂O₃ 催化剂上 CO₂ 加氢制甲醇[J]. 催化学报, 2011,32(9): 1452-1456
- [10] 龙华丽, 胡诗婧, 徐艳, 覃攀, 尚书勇, 印永祥, 戴晓雁. 光辐照驱动 CH₄-CO₂ 重整中 Ni/MgO-Al₂O₃ 催化活性吸收体的活性[J]. 催化学报, 2011,32(8): 1393-1399
- [11] 孙果宋, 黄青则, 李会泉, 柳海涛, 张钊, 王兴瑞, 王秋萍, 王金淑. 不同载体负载的 Cr 基催化剂催化 CO₂ 氧化异丁烷脱氢制异丁烯[J]. 催化学报, 2011,32(8): 1424-1429
- [12] 覃攀, 徐慧远, 龙华丽, 冉祎, 尚书勇, 储伟, 印永祥, 戴晓雁. 常压高频放电等离子体炬改进制备 CO₂/CH₄ 重整用 Ni/MgO 催化剂[J]. 催化学报, 2011,32(7): 1262-1268
- [13] 胡诗婧, 龙华丽, 徐艳, 尚书勇, 印永祥. 冷等离子体喷射流对甲烷二氧化碳重整用 Ni/Al₂O₃ 催化剂的还原机制[J]. 催化学报, 2011,32(2): 340-344
- [14] 吴聪萍, 周勇, 邹志刚. 光催化还原 CO₂ 的研究现状和发展前景[J]. 催化学报, 2011,32(10): 1565-1572
- [15] 贾翠英, 陈鑫, 纪敏. MgFe_{0.1}Al_{1.9}O₄ 的合成及其催化乙苯与 CO₂ 的氧化脱氢反应[J]. 催化学报, 2010,31(9): 1122-1126