催化学报 » 2012, Vol. 33 » Issue (2) :230-236 DOI: 10.1016/S1872-2067(11)60327-6

以水热法合成的 ZrO_2 负载 Au 催化剂的低温水煤气变换反应

张燕杰, 詹瑛瑛, 曹彦宁, 陈崇启, 林性贻, 郑起 *

福州大学化肥催化剂国家工程研究中心, 福建福州 350002

ZHANG Yanjie, ZHAN Yingying, CAO Yanning, CHEN Chongqi, LIN Xingyi, ZHENG Qi*

National Engineering Research Center for Chemical Fertilizer Catalyst, Fuzhou University, Fuzhou 350002, Fujian, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

摘要 采用一种简便的水热法合成了一系列 ZrO2, 并采用沉积-沉淀法制得相应 1.0% Au/ZrO2 催化剂, 在模拟甲醇重整气气氛下评价了它们的低温水煤气变换 (WGS) 反应催化性能. 结果发现, 于 150 oC 水热合成的 ZrO2 负载的 Au 催化剂活性最佳, 240 oC 反应时 CO 转化率达 87%, 明显高于相同反应条件下 Au 负载量较高的 Au/Fe2O3, Au/CeO2 及 Au/CeZrO4 催化剂. 采用 X 射线衍射、原子吸收光谱、N2 物理吸脱附及扫描电子显微镜等手段对样品进行了表征. 结果表明, Au/ZrO2 催化剂的总孔体积及平均孔径越大、圆形片状形貌越规整, 其低温 WGS 催化活性就越高.

关键词: 水热法 水热合成温度 金 二氧化锆 负载型催化剂 水煤气变换反应

Abstract: Au/ZrO_2 catalysts with a nominal gold loading of 1.0% were prepared by a deposition-precipitation method employing a series of ZrO_2 samples synthesized by a convenient hydrothermal route as supports. These catalysts were evaluated for low-temperature water-gas shift reaction under a model reformed methanol gas atmosphere. The effect of the hydrothermal synthesis temperature of zirconia on the catalytic activity of Au/ZrO_2 was investigated. The optimal hydrothermal synthesis temperature of ZrO_2 was 150 ° C. The corresponding catalyst offers a CO conversion of 87% at a reaction temperature of 240 ° C, which is significantly higher than that of the previously reported Au/Fe_2O_3, Au/CeO_2, and Au/$CeZrO_4$ catalysts. The Au/ZrO_2 catalysts were characterized by X-ray diffraction, atomic absorption spectrometry, N_2-physisorption, and scanning electron microscopy. The results indicate that the catalytic performance of the Au/ZrO_2 catalysts is mainly influenced by the morphology and pore structure of the ZrO_2 that was hydrothermally synthesized at different temperatures. A uniform nanodisk morphology and increase in the pore volume and pore diameter of the ZrO_2 particles lead to a higher catalytic activity of the Au/ZrO_2 catalyst.

Keywords: hydrothermal method, hydrothermal synthesis temperature, gold, zirconia, supported catalyst, water-gas shift reaction

收稿日期: 2011-09-06; 出版日期: 2012-01-05

引用本文:
张燕杰, 詹瑛瑛, 曹彦宁等 .以水热法合成的 ZrO_2 负载 Au 催化剂的低温水煤气变换反应[J] 催化学报, 2012,V33(2): 230-236

ZHANG Yan-Jie, ZHAN Ying-Ying, CAO Yan-Ning etc .Low-Temperature Water-Gas Shift Reaction over Au/ZrO_2 Catalysts Using Hydrothermally Synthesized Zirconia as Supports[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012,V33(2): 230-236

链接本文:
http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(11)60327-6 或 http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I2/230

[1] Song Ch Sh. Catal Today, 2002, 77: 17

[2] Bond G C, Louis C, Thompson D T. Catalysis by Gold. London: Imperial College Press, 2006. 272

[3] Ghenciu A F. Curr Opin Solid State Mater Sci, 2002, 6: 389

[4] Ratnasamy C, Wagner J P. Catal Rev, 2009, 51: 325

[5] Tabakova T, Idakiev V, Andreeva D, Mitov I. Appl Catal A, 2000, 202: 91

[6] Hua J M, Wei K M, Zheng Q, Lin X Y. Appl Catal A, 2004, 259: 121

[7] Zhang F L, Zheng Q, Wei K M, Lin X Y, Zhang H H, Li J W, Cao Y N. Catal Lett, 2006, 108: 131

[8] Fu Q, Kudriavtseva S, Saltsburg H, Flytzani- Stephanopoulos M. Chem Eng J, 2003, 93: 41

[9] Zhang Q, Zhan Y Y, Lin X Y, Zheng Q. Catal Lett, 2007, 115: 143

[10] El-Moemen A A, Karpenko A, Denkwitz Y, Behm R J. J Power Sources, 2009, 190: 64
[11] 杨申永, 詹瑛瑛, 陈崇启, 曹彦宁, 林性贻, 郑起. 催化学报 (Yang Sh Y, Zhan Y Y, Chen Ch Q, Cao Y N, Lin X Y, Zheng Q. Chin J Catal), 2009, 30: 666
[12] Ma Zh, Yin H F, Dai Sh. Catal Lett, 2010, 136: 83
[13] Tabakova T, Idakiev V, Tenchev K, Boccuzzi F, Manzoli M, Chiorino A. Appl Catal B, 2006, 63: 94
[14] 佘育生, 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
[15] Fonseca A A, Fisher J M, Ozkaya D, Shannon M D, Thompsett D. Top Catal, 2007, 44: 223
[16] 廖卫平, 董园园, 金明善, 何涛, 索掌怀. 催化学报 (Liao W P, Dong Y Y, Jin M Sh, He T, Suo Zh H. Chin J Catal), 2008, 29: 134
[17] 何振亮. [硕士学位论文]. 福州: 福州大学 (He Zh L. [MS Dissertation]. Fuzhou: Fuzhou Univ), 2007
[18] Li J, Chen J L, Song W, Liu J L, Shen W J. Appl Catal A, 2008, 334: 321
[19] Li J, Ta N, Song W, Zhan E Sh, Shen W J. Gold Bull, 2009, 42: 48
[20] Menegazzo F, Pinna F, Signoretto M, Trevisan V, Boccuzzi F, Chiorino A, Manzoli M. ChemSusChem, 2008, 1: 320
[21] Zane F, Trevisan V, Pinna F, Signoretto M, Menegazzo F. Appl Catal B, 2009, 89: 303
[22] Manzoli M, Boccuzzi F, Trevisan V, Menegazzo F, Signoretto M, Pinna F. Appl Catal B, 2010, 96: 28
[23] Idakiev V, Tabakova T, Naydenov A, Yuan Z-Y, Su B-L. Appl Catal B, 2006, 63: 178
[24] Zhang X, Wang H, Xu B Q. J Phys Chem B, 2005, 109: 9678
[25] Si R, Flytzani-Stephanopoulos M. Angew Chem, Int Ed, 2008, 47: 2884
[26] Xie X W, Li Y, Liu Zh Q, Haruta M, Shen W J. Nature, 2009, 458: 746

[1] 方星, 陈崇启, 林性贻*, 佘育生, 詹瑛瑛, 郑起.La_2O_3 对 CuO/CeO_2 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
[2] 施梅勤, 陈宁宁, 马淳安, 李瑛, 魏爱平.双功能 WC/HZSM-5催化剂上正己烷芳构化反应性能[J]. 催化学报, 2012,33(3): 570-575
[3] 王自庆, 张留明, 林建新, 王榕, 魏可镁.纳米材料负载钌催化剂的制备与应用[J]. 催化学报, 2012,33(3): 377-388
[4] 景明俊, 王岩, 钱俊杰, 张敏, 杨建军.水热法制备铂掺杂二氧化钛及其可见光催化性能[J]. 催化学报, 2012,33(3): 550-556
[5] 孟庆森, 申勇立, 徐晶, 巩金龙.Au(111) 表面上乙醇选择性氧化反应机理的密度泛函理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(3): 407-415
[6] 林建新, 张留明, 王自庆, 王榕, 魏可镁.Pr 掺杂对 Ru/CeO_2 催化剂结构和氨合成性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(3): 536-542
[7] 亓雪, 石秋杰, 谌伟庆, 张荣斌.Mo 对非晶态合金 Ni-B/薄水铝石催化剂上噻吩加氢脱硫性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(3): 543-549
[8] 朱琳, 鲁继青, 谢冠群, 陈萍, 罗孟飞.还原温度对 Ir/ZrO_2 催化剂上巴豆醛选择性加氢的影响[J]. 催化学报, 2012,33(2): 348-353
[9] 张岩, 黄翠英, 王俊芳, 孙琪, 王长生.Ti/SiO_2 催化 H_2O_2 氧化苯甲醇制苯甲醛反应机理的理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(2): 360-366
[10] 袁翠峪, 魏迎旭, 李金哲, 徐舒涛, 陈景润, 周游, 王全义, 许磊, 刘中民.程序升温条件下甲醇转化反应及流化床催化剂 SAPO-34 的积碳[J]. 催化学报, 2012,33(2): 367-374
[11] 张元华, 陈世萍, 袁成龙, 方维平, 杨意泉.焙烧温度对甲硫醇催化剂 K_2WO_4/Al_2O_3 结构和性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(2): 317-322
[12] 苏碧云, 拓宏兵, 张群正.吡咯亚胺配体与过渡金属的反应性及其催化烯烃聚合[J]. 催化学报, 2011,32(9): 1439-1445
[13] 祝贞科, 谭蓉, 孙文庆, 银董红.分子印迹聚合物负载纳米金催化剂的制备及其底物识别性能[J]. 催化学报, 2011,32(9): 1508-1512
[14] 刘玉霞1,2,a, 杨柳2, 马志伟1, 王川川1, 陶京朝1,b.负载脯氨酸及其衍生物催化的不对称 C－C 键形成反应研究进展[J]. 催化学报, 2011,32(8): 1295-1311
[15] 俞佳枫 1,3, 方雯 1,3, 葛庆杰 1,a, 徐恒泳 1,2,b.助剂形态对 Pt/γ-Al_2O_3 催化剂抗积炭性能的影响[J]. 催化学报, 2011,32(8): 1364-1369