

# La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 对 CuO/CeO<sub>2</sub> 水煤气变换反应催化剂微观结构及催化性能的影响

方星, 陈崇启, 林性贻\*, 余育生, 詹瑛瑛, 郑起

福州大学化肥催化剂国家工程研究中心, 福州 350002

FANG Xing, CHEN Chongqi, LIN Xingyi\*, SHE Yusheng, ZHAN Yingying, ZHENG Qi

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

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

[Download: PDF \(532KB\)](#) [HTML \(1KB\)](#) [Export: BibTeX or EndNote \(RIS\)](#) [Supporting Info](#)

**摘要** 以 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 为助剂, 采用共沉淀法制备了具有良好催化活性和热稳定性的 CuO/CeO<sub>2</sub>-La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 水煤气变换反应催化剂, 其中, 当 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量为 2 wt% 时, 催化剂的催化性能最为优异。同时运用 X 射线衍射、N<sub>2</sub> 吸附-脱附、Raman 光谱、程序升温还原等手段, 研究了不同含量的 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 对 CuO/CeO<sub>2</sub> 催化剂微观结构及催化性能的影响。结果表明, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 助剂进入了载体 CeO<sub>2</sub> 的晶格并对 CuO/CeO<sub>2</sub> 催化剂的微观结构和催化性能产生了直接影响, 适量 La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的添加可以抑制 CuO 和 CeO<sub>2</sub> 晶格的长大、增强 CuO 与 CeO<sub>2</sub> 间的相互作用、提高催化剂的比表面积、促进 CeO<sub>2</sub> 载体中生成更多的氧空位, CuO/CeO<sub>2</sub> 催化剂的催化活性和热稳定性也明显改善。

关键词: 氧化铜 氧化铈 氧化镧 水煤气变换反应 氧空位 Raman 光谱

**Abstract:** The water-gas shift reaction was used to evaluate a series of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> modified CuO/CeO<sub>2</sub> catalysts that were prepared by a parallel co-precipitation method. The catalytic activity and thermal stability improved significantly upon the introduction of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, and CuO/CeO<sub>2</sub>-La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (2 wt%) gave the highest activity and had the best thermal stability. The microstructure of the as-prepared CuO/CeO<sub>2</sub>-La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts and/or the CeO<sub>2</sub>-La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> supports was characterized by X-ray diffraction, N<sub>2</sub> physisorption, Raman spectroscopy, and temperature-programmed reduction. The results indicate that larger specific surface areas and smaller crystal sizes of CuO and CeO<sub>2</sub> result in improved catalytic performance for the as-prepared catalysts. Moreover, the incorporation of La<sup>3+</sup> into the ceria lattice promotes the generation of oxygen vacancies leading to a higher number of moderate copper oxides that interact with surface oxygen vacancies on the surface of the ceria. This enhances the activity and thermal stability of the CuO/CeO<sub>2</sub> catalyst.

**Keywords:** copper oxide, ceria, lanthanum oxide, water-gas shift reaction, oxygen vacancy, Raman spectroscopy

收稿日期: 2011-09-21; 出版日期: 2012-02-10

引用本文:

方星, 陈崇启, 林性贻\*等 .La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 对 CuO/CeO<sub>2</sub> 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,V33(3): 425-431FANG Xing, CHEN Chong-Qi, LIN Xing-Yi-\* etc .Effect of La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> on Microstructure and Catalytic Performance of CuO/CeO<sub>2</sub> Catalyst in Water-Gas Shift Reaction[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012,V33(3): 425-431

链接本文:

[http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067\(11\)60337-9](http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(11)60337-9) 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I3/425>

- |   |
|---|
| Service   |
| <a href="#">▶ 把本文推荐给朋友</a><br><a href="#">▶ 加入我的书架</a><br><a href="#">▶ 加入引用管理器</a><br><a href="#">▶ Email Alert</a><br><a href="#">▶ RSS</a>     |
| 作者相关文章  |
| <a href="#">▶ 方星</a><br><a href="#">▶ 陈崇启</a><br><a href="#">▶ 林性贻*</a><br><a href="#">▶ 余育生</a><br><a href="#">▶ 詹瑛瑛</a><br><a href="#">▶ 郑起</a> |

- [1] Cormos C C. Int J Hydrogen Energy, 2011, 36: 5960
- [2] Nilkar A U, Alayoglu S, Eichhorn B, Mavrikakis M. J Am Chem Soc, 2010, 132: 7418
- [3] 郭强, 吴美玲, 刘源, 白雪. 催化学报 (Guo Q, Wu M L, Liu Y, Bai X. Chin J Catal), 2007, 28: 953
- [4] 贾昆明, 张慧丽, 李文翠. 催化学报 (Jia K M, Zhang H L, Li W C. Chin J Catal), 2008, 29: 1089
- [5] 单文娟, 刘畅, 郭红娟, 杨利华, 王晓楠, 冯兆池. 催化学报 (Shan W J, Liu Ch, Guo H J, Yang L H, Wang X N, Feng Z Ch. Chin J Catal), 2011, 32: 1336
- [6] Luo M F, Song Y P, Wang X Y, Xie G Q, Pu Z Y, Fang P, Xie Y L. Catal Commun, 2007, 8: 834
- [7] Li H F, Zhang N, Cheng P, Luo M F, Lu J Q. Appl Catal B, 2011, 110: 279
- [8] Gupta A, Waghmare U V, Hegde M S. Chem Mater, 2010, 22: 5184
- [9] Zhi K D, Liu Q S, Zhao R G, He R X, Zhang L F. J Rare Earth, 2008, 26: 538

- [10] Si R, Zhang Y W, Li S J, Lin B X, Yan C H. *J Phys Chem B*, 2004, 108: 12481
- [11] Cui M Y, He J X, Lu N P, Zheng Y Y, Dong W J, Tanga W H, Chen B Y, Li C R. *Mater Chem Phys*, 2010, 121: 314
- [12] 宋伟, 师瑞娟, 刘俊龙, 展恩胜, 李占双, 徐奕德, 申文杰. *催化学报* (Song W, Shi R J, Liu J L, Zhan E Sh, Li Z Sh, Xu Y D, Shen W J. *Chin J Catal*), 2007, 28: 106
- [13] Li L, Zhan Y Y, Zheng Q, Zheng Y H, Chen C Q, She Y S, Lin X Y, Wei K M. *Catal Lett*, 2009, 130: 532
- [14] Li Y, Fu Q, Flytzani-Stephanopoulos M. *Appl Catal B*, 2000, 27: 179
- [15] She Y S, Zheng Q, Li L, Zhan Y Y, Chen C Q, Zheng Y H, Lin X Y. *Int J Hydrogen Energy*, 2009, 34: 8929
- [16] She Y S, Li L, Zhan Y Y, Lin X Y, Zheng Q, Wei K M. *J Rare Earth*, 2009, 27: 411
- [17] Li L, Zhan Y Y, Zheng Q, Zheng Y H, Lin X Y, Li D L, Zhu J J. *Catal Lett*, 2007, 118: 91
- [18] Lendzion-Bielum Z, Bettahar M M, Monteverdi S. *Catal Commun*, 2010, 11: 1137
- [19] Tabakova T, Idakiev V, Papavasiliou J, Avgouropoulos G, Ioannides T. *Catal Commun*, 2007, 8: 101
- [20] Papavasiliou J, Avgouropoulos G, Ioannides T. *Appl Catal B*, 2007, 69: 226
- [21] Trovarelli A. *Catal Rev-Sci Eng*, 1996, 38: 439
- [22] Lin X M, Li L P, Li G S, Su W H. *Mater Chem Phys*, 2001, 69: 236
- [23] Shan W S, Feng Z C, Li Z L, Zhang J, Shen W J, Li C. *J Catal*, 2004, 228: 206
- [24] Fang P, Luo M F, Lu J Q, Cen S Q, Yan X Y, Wang X X. *Thermochim Acta*, 2008, 478: 45
- [25] Spanier J E, Robinson R D, Zhang F, Chan S W, Herman I P. *Phys Rev B*, 2001, 64: 245407
- [26] McBride J R, Hass K C, Poindexter B D, Weber W H. *J Appl Phys*, 1994, 76: 2435
- [27] 李雷, 詹瑛瑛, 陈崇启, 余育生, 林性贻, 郑起. *物理化学学报* (Li L, Zhan Y Y, Cheng C Q, She Y Sh, Lin X Y, Zheng Q. *Acta Phys-Chim Sin*), 2009, 25: 1397
- [28] Wang X Q, Rodriguez J A, Hanson J C, Gamarra D, Arturo M A, Fernandez-Garcia M. *J Phy Chem B*, 2005, 109: 19595
- [29] Wang X Q, Rodriguez J A, Hanson J C, Gamarra D, Martinez-Arias A, Fernandez-Garcia M. *Top Catal*, 2008, 49: 81
- [30] Wang X Q, Rodriguez J A, Hanson J C, Gamarra D, Martinez-Arias A, Fernandez-Garcia M. *J Phys Chem B*, 2006, 110: 428
- [31] Tang Q L, Liu Z P. *J Phys Chem C*, 2010, 114: 8423
- [1] 林建新, 张留明, 王自庆, 王榕, 魏可镁. *Pr*掺杂对  $\text{Ru}/\text{CeO}_2$  催化剂结构和氨合成性能的影响[J]. *催化学报*, 2012, 33(3): 536-542
- [2] 张燕杰, 詹瑛瑛, 曹彦宁, 陈崇启, 林性贻, 郑起. 以水热法合成的  $\text{ZrO}_2$  负载  $\text{Au}$  催化剂的低温水煤气变换反应[J]. *催化学报*, 2012, 33(2): 230-236
- [3] 庞谦健, 陈亚中, 代瑞旗, 崔鹏. 柠檬酸络合法制备的  $\text{Co}/\text{CeO}_2$  催化剂上中温乙醇水蒸气重整性能[J]. *催化学报*, 2012, 33(2): 281-289
- [4] 侯玉慧, 常刚, 翁维正, 夏文生, 万惠霖. 非水溶剂溶胶-凝胶法制备的纳米卤氧化镧在甲烷氧化偶联反应中的应用[J]. *催化学报*, 2011, 32(9): 1531-1536
- [5] 钟富兰, 钟喻娇, 肖益鸿, 蔡国辉, 郑勇, 魏可镁.  $\text{Pt}/\text{CeO}_2-\text{ZrO}_2-\text{La}_2\text{O}_3$  柴油车尾气氧化催化剂活性及抗硫性能[J]. *催化学报*, 2011, 32(9): 1469-1476
- [6] 单文娟1,\*，刘畅1, 郭红娟1, 杨利华1, 王晓楠1, 冯兆池2, 0, 1, 3 维  $\text{CeO}_2$  的可控制备及  $\text{CuO}/\text{CeO}_2$  催化剂上  $\text{CO}$  氧化反应[J]. *催化学报*, 2011, 32(8): 1336-1341
- [7] 杨文, 储伟, 江成发\*, 文婕, 孙文晶.  $\text{CeO}_2$  助  $\text{Ni}/\text{MgO}$  催化剂用于化学气相沉积法制备多壁碳纳米管[J]. *催化学报*, 2011, 32(8): 1323-1328
- [8] 李京京1, 刘兴海1,2, 石雷1,\*, 孙琪1, 周永刚2, 徐健峰2, 单作刚2, 王福冬2. 搅载  $\text{CuO}$  基催化剂上 2,4-二氯酚的有效氧化降解[J]. *催化学报*, 2011, 32(8): 1387-1392
- [9] 邱春天, 林涛\*, 张秋林, 徐海迪, 陈耀强, 龚茂初\*. 改性  $\text{ZrO}_2-\text{MnO}_2$  基整体式催化剂上  $\text{NH}_3$  选择性催化还原  $\text{NO}$ [J]. *催化学报*, 2011, 32(7): 1227-1233
- [10] 刘迎新1,\*, 孟令富1, 魏作君2, 时洪涛1.  $\text{La}_2\text{O}_3$  助剂对  $\text{Au}/\text{TiO}_2$  催化肉桂醛选择性加氢性能的影响[J]. *催化学报*, 2011, 32(7): 1269-1274
- [11] 冯柄楠, 卢冠忠\*, 王艳芹, 郭耘, 郭杨龙. 钾对氧化铜催化活性炭还原  $\text{NO}$  反应的助催化作用[J]. *催化学报*, 2011, 32(5): 853-861
- [12] 张晗, 张磊, 邓积光, 刘雨溪, 蒋海燕, 石凤娟, 吉科猛, 戴洪兴. 双模板法制备具有介孔孔壁的三维有序大孔二氧化铈及其改善的低温还原性能[J]. *催化学报*, 2011, 32(5): 842-852
- [13] 姚艳玲, 方瑞梅, 史忠华, 龚茂初, 陈耀强.  $\text{La}_2\text{O}_3$  对  $\text{Pd}$  密偶催化剂性能的影响[J]. *催化学报*, 2011, 32(4): 589-594
- [14] 张海艳1,2, 林瑞1,3, 曹春晖1,3, 马建新1,2,3. 用于质子交换膜燃料电池抗  $\text{CO}$  的  $\text{Pt}-\text{CeO}_2/\text{C}$  催化剂的制备和表征[J]. *催化学报*, 2011, 32(4): 606-611
- [15] 赵景月, 邹秀晶, 汪学广, 刘合之, 李林, 鲁雄刚, 丁伟中. 低水碳比条件下  $\text{Ni}/\text{CeO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  催化剂上液化石油气的预重整[J]. *催化学报*, 2011, 32(3): 456-462