

Исполнитель:

**Государственное образовательное учреждение
высшего профессионального образования
"Новосибирский государственный
университет"**



г. Новосибирск

**Государственного контракт
№ П999 от 20 августа 2009 г.**

Проведение поисковых научно-исследовательских работ по направлению «Создание мембран и каталитических систем» в рамках мероприятия 1.2.2 Программы

Этап третий

«Наноструктурированные полиметаллические катализаторы и мембраны, полученные с использованием двойных комплексных солей и продуктов их термолиза: разработка методов синтеза, исследование физико-химических и каталитических свойств».

Виды и содержание 3 этапа выполненных поисковых научно-исследовательских работ по Государственному контракту:

Проведение 3 этапа исследований по проблеме: «Наноструктурированные полиметаллические катализаторы и мембраны, полученные с использованием двойных комплексных солей и продуктов их термолиза: разработка методов синтеза, исследование физико-химических и каталитических свойств»

Объектами исследования являются – наноструктурированные полиметаллические катализаторы и мембраны, полученные с использованием двойных комплексных солей и продуктов их термолиза.

Цель проекта:

Разработка наноструктурированных полиметаллических катализаторов и мембран, получаемых с использованием двойных комплексных солей и продуктов их термолиза.

Основными задачами работы являются:

- отработка методов синтеза новых полиметаллических систем;
- исследование физико-химических и каталитических свойств полиметаллических систем;
- оптимизация параметров каталитических реакций.

Основные задачи 3 этапа:

- 1. Разработка методик приготовления полиметаллических каталитических систем;**
- 2. Проведение синтеза полиметаллических каталитических систем с использованием двойных комплексных солей и продуктов их термолиза;**
- 3. Проведение измерений основных физико-химических характеристик (удельная поверхность, фазовый состав, химический состав, состав поверхности) экспериментальных образцов полиметаллических каталитических систем;**
- 4. Разработка методик испытаний и проведение испытаний каталитической активности экспериментальных образцов полиметаллических катализаторов в реакции избирательного окисления CO;**
- 5. Анализ, систематизация и оценка полученных результатов.**

Результаты выполнения работ 3 этапа Государственного контракта включают в себя

Материалы теоретических и экспериментальных исследований, раскрывающие содержание работ по решению поставленных научно-исследовательских задач, достаточность теоретических и достоверность экспериментальных результатов, включая :

Аналитический отчет о проведении теоретических и экспериментальных исследований.

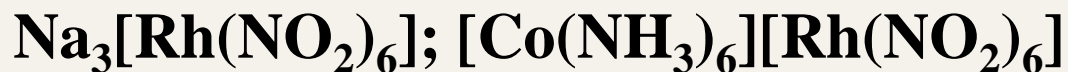
Отчет по обобщению и оценке результатов исследований.

Публикации результатов НИР, заключение экспертной комиссии по открытому опубликованию и копии статьи в журналах ВАК с обязательной ссылкой на проведение НИР в рамках реализации ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009 – 2013 годы.

Экспериментальные и теоретические исследования

Приготовление комплексов-предшественников:

Проведен синтез солей:



Твердого раствора ДКС:



Биметаллические катализаторы:

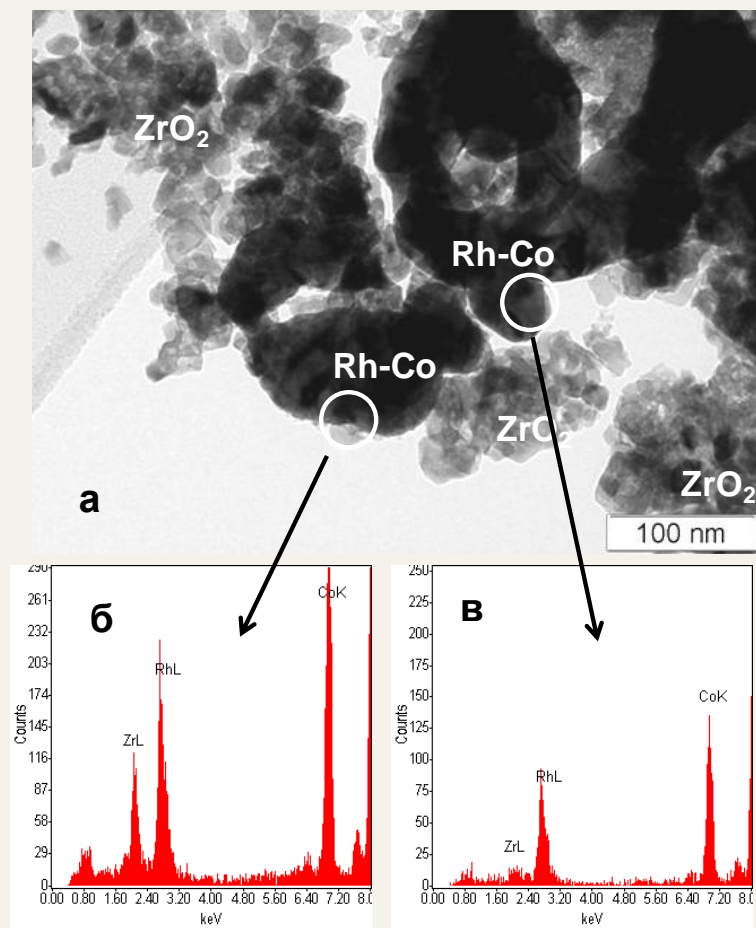
Проведен синтез катализатора:



Паровая конверсия этанола в водородсодержащий газ на Rh-Co/ZrO₂ катализаторе

Физико-химические характеристики Rh-Co/ZrO₂ катализатора

Микроснимок ПЭМ катализатора Rh-Co(ДКС)/ZrO₂ (а) и спектры EDX (б,в)

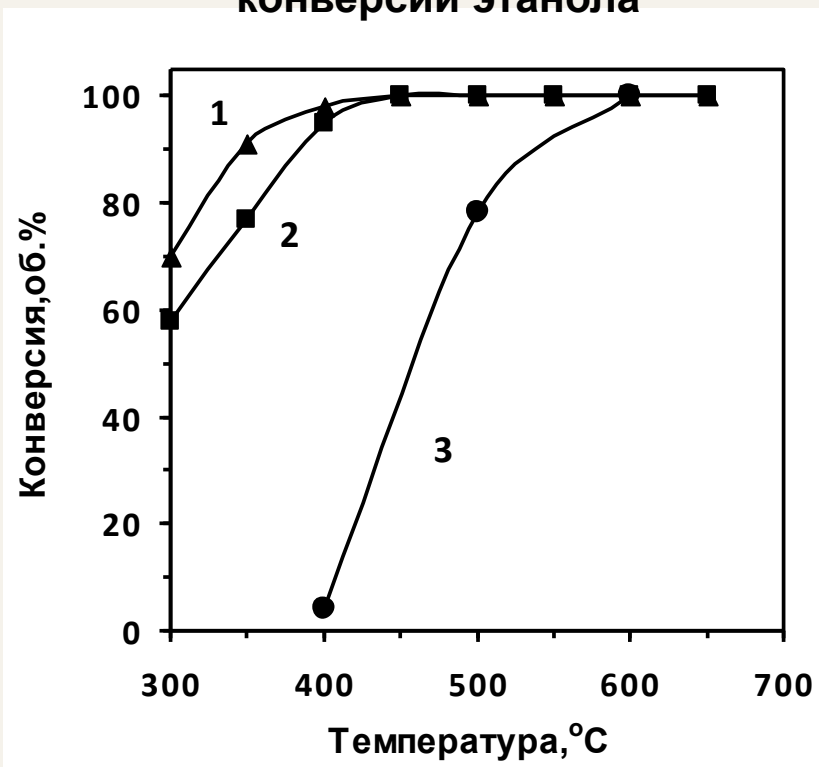


Темные пятна размером 20-50 нм, наблюдаемые на рисунке, являются частицами ZrO₂, а более крупные агломераты размером ~100 нм представляют собой биметаллические Rh-Co твердые растворы.

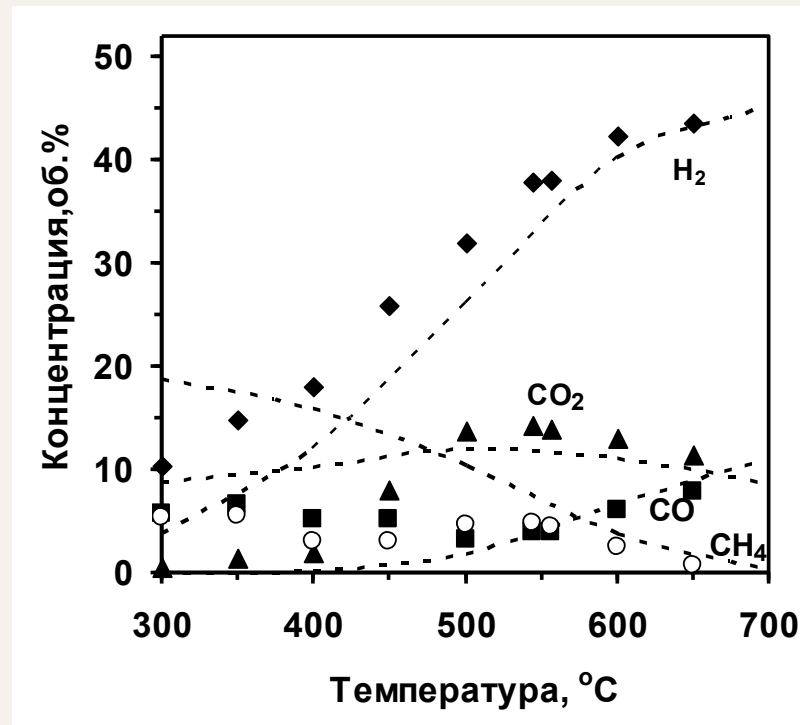
Паровая конверсия этанола в водородсодержащий газ на Rh-Co/ZrO₂ катализаторе

Каталитическая активность

Температурная зависимость конверсии этанола



Температурная зависимость концентраций продуктов



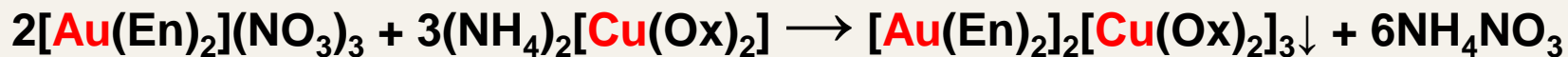
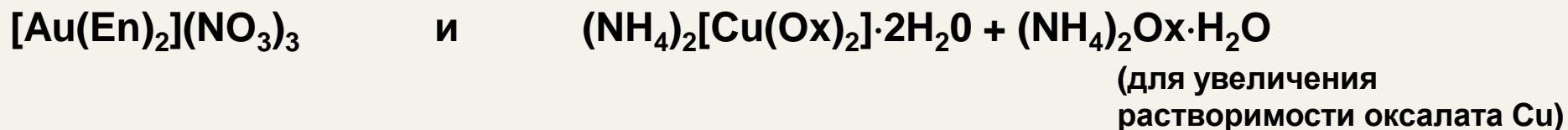
P = 1 атм, GHSV=10000 ч⁻¹; H₂O:C₂H₅OH=4:1

Rh-Co/ZrO₂ катализаторы обладают высокой активностью в паровой конверсии этанола в водородсодержащий газ

Экспериментальные и теоретические исследования

Приготовление биметаллических Au-Cu катализаторов

Последовательная пропитка носителя растворами солей Au и Cu:

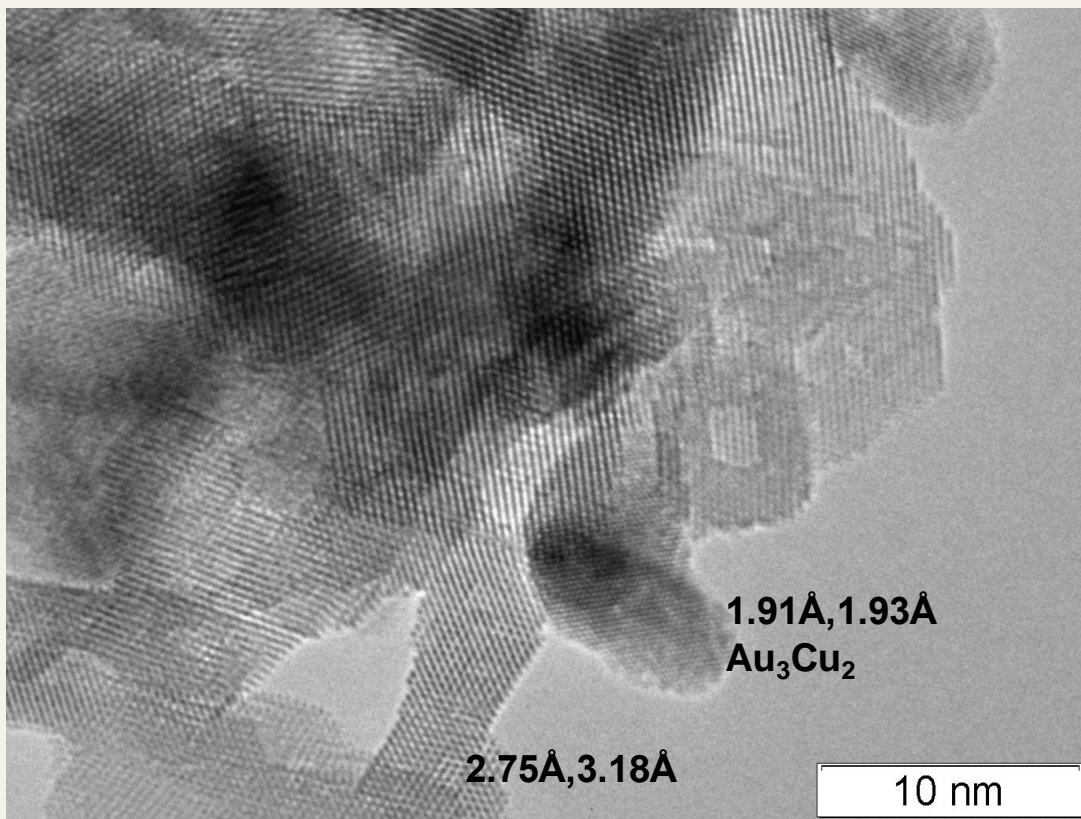


Нагрев до 400 °C
(2 °C/мин) в токе
5 % H₂ в Ar (30
мл·мин⁻¹г⁻¹)

Были синтезированы биметаллический катализатор 5 мас.% Au₂Cu₃/CeO₂,
и монометаллические аналоги 3.4 мас.% Au/CeO₂ и 1.6 мас.% Cu/CeO₂

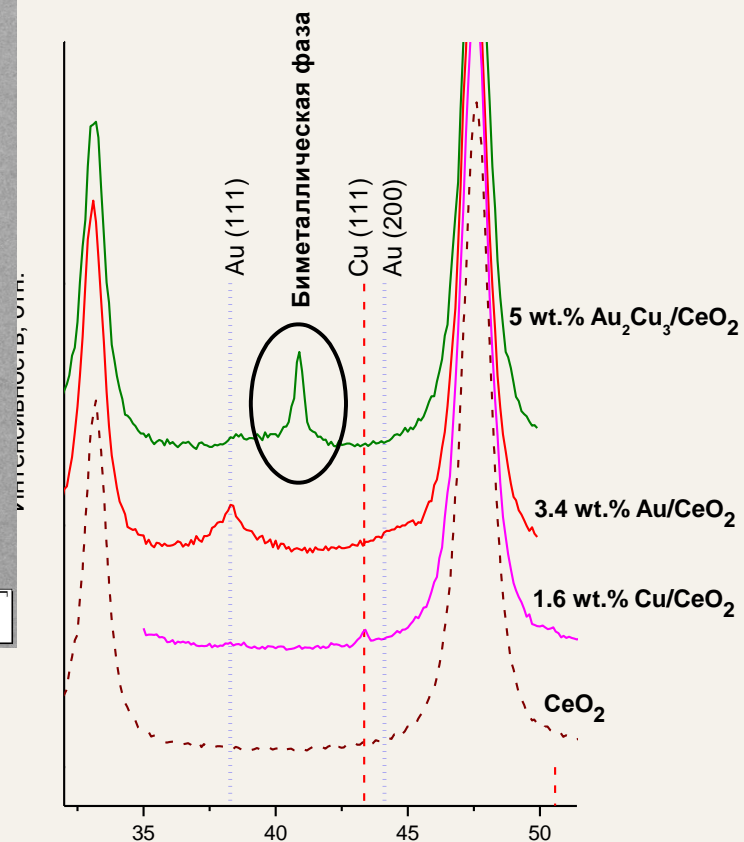
Физико-химические характеристики $\text{Au}_2\text{Cu}_3/\text{CeO}_2$ катализатора

Данные ПЭМ ВР:



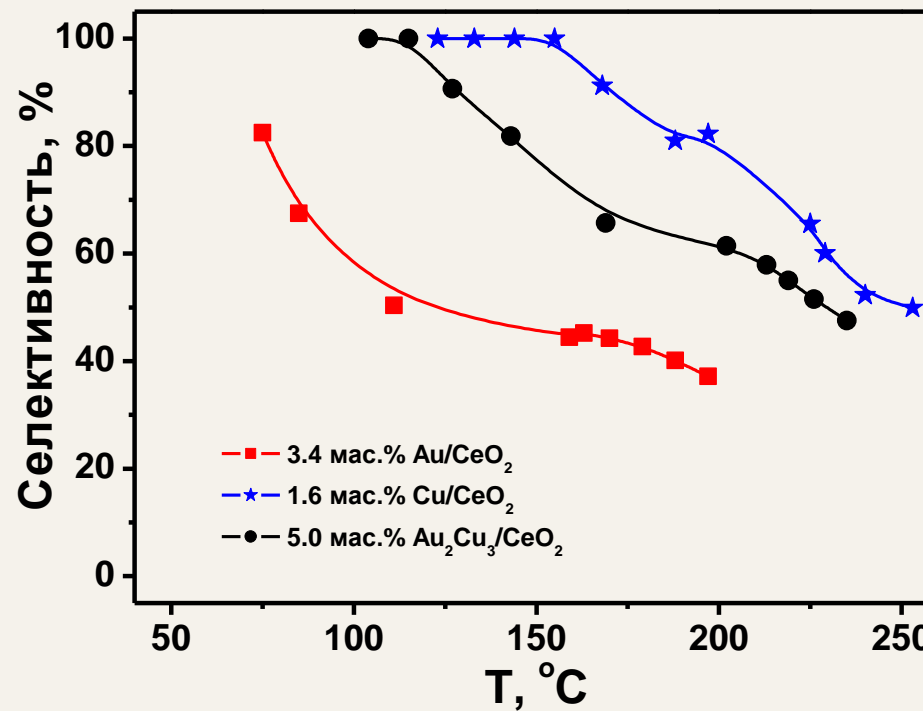
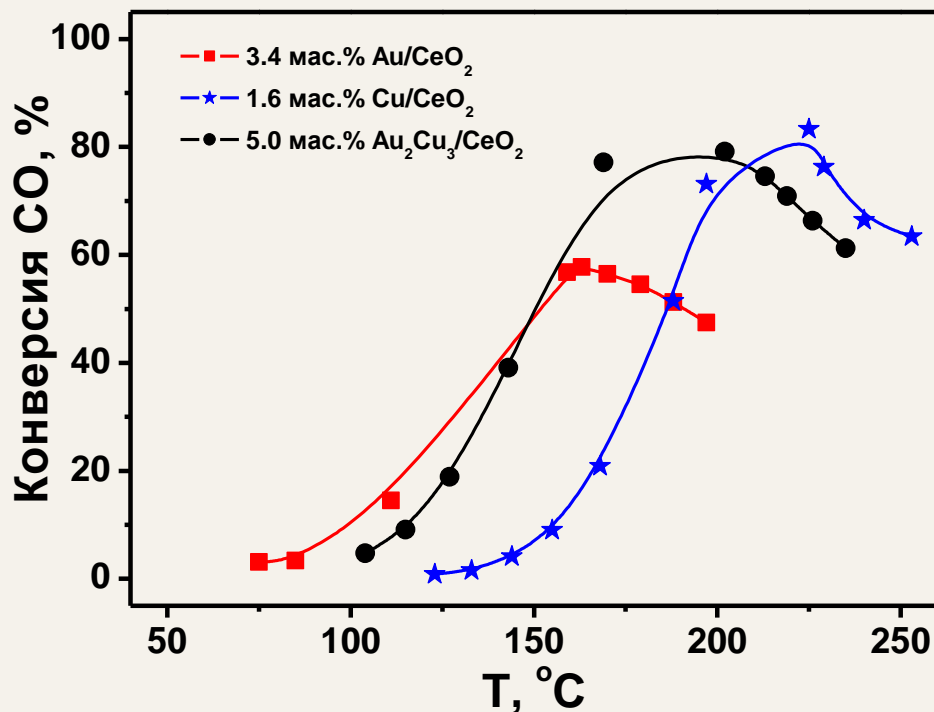
В биметаллическом $\text{Au}_2\text{Cu}_3/\text{CeO}_2$ катализаторе активный компонент находится в виде частиц наночастиц золото-медного сплава состава близкого к заданному $\text{Au}_{0.4}\text{Cu}_{0.6}$.

Данные РФА:



Избирательное окисление CO на $\text{Au}_2\text{Cu}_3/\text{CeO}_2$ катализаторе

Каталитическая активность

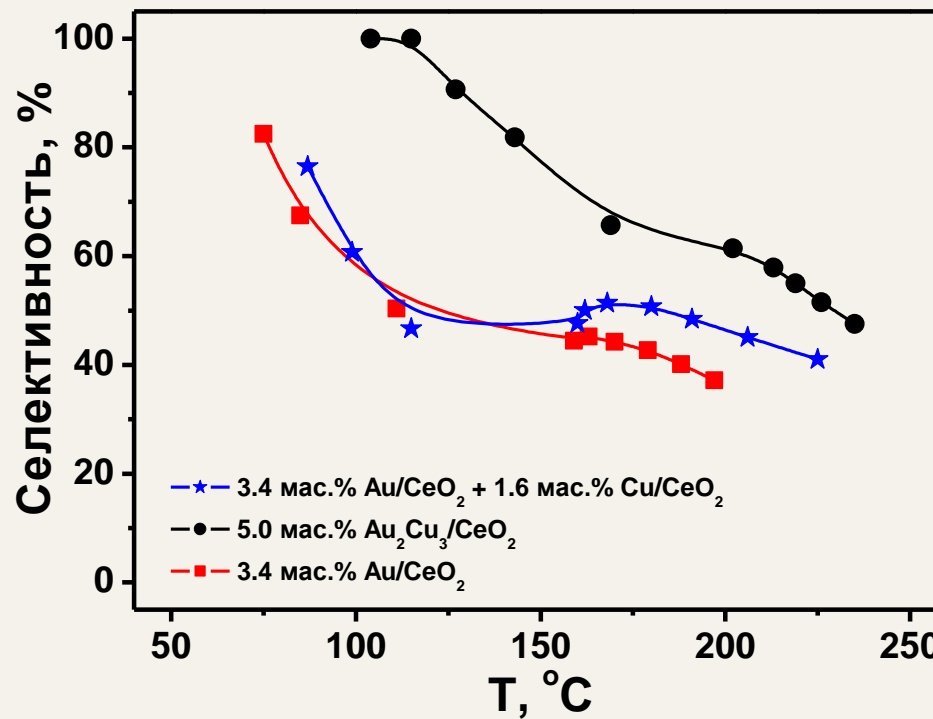
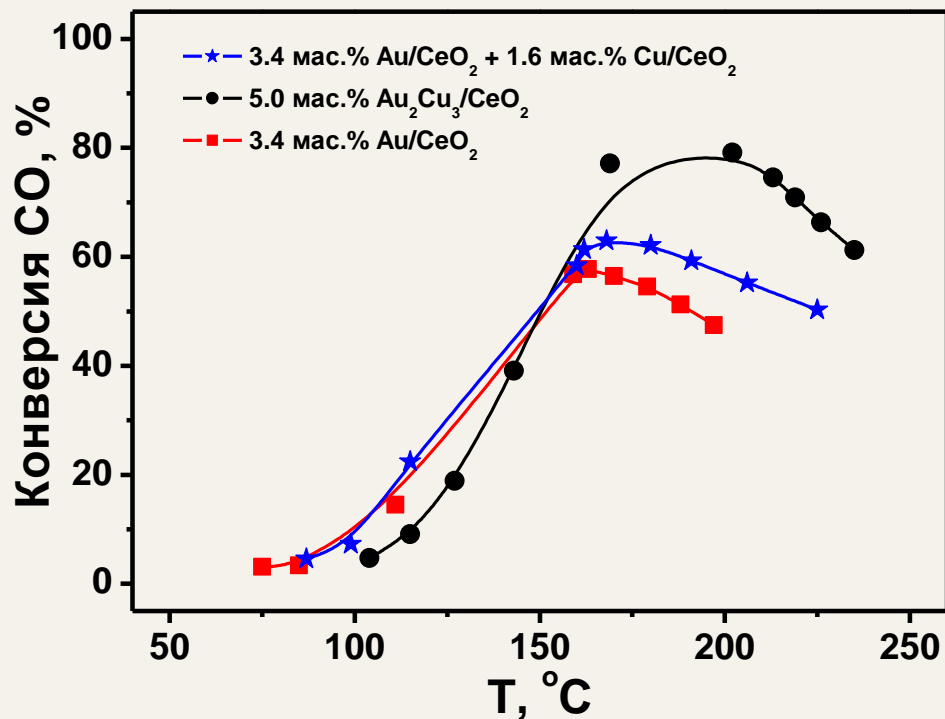


Состав смеси (об.%): 1 CO, 0.6 O₂, 10 H₂O, 20 CO₂, 65 H₂ и He-баланс;
P = 1.4 атм; WHSV = 270000 см³г⁻¹ч⁻¹;
50 мг катализатора + 150 мг кварца, фракция: 0.1 – 0.2 мм

$\text{Au}_2\text{Cu}_3/\text{CeO}_2$ катализатор обладает высокими активностью и селективностью как в модельной так и в реальной водородсодержащей смеси, содержащей углекислый газ и пары воды.

Избирательное окисление CO на $\text{Au}_2\text{Cu}_3/\text{CeO}_2$ катализаторе

Наличие синергетического эффекта образования частиц твердого раствора золота и меди



Состав смеси (об.%): 1 CO, 0.6 O₂, 10 H₂O, 20 CO₂, 65 H₂ и He-баланс;
P = 1.4 атм; WHSV = 270000 см³г⁻¹ч⁻¹;
50 мг катализатора (50 + 50) + 150 мг кварца, фракция: 0.1 – 0.2 мм

Область применения результатов:

Область практического использования и применения результатов выполнения НИР – для нужд российских компаний, связанных с каталитическими процессами, производством катализаторов и мембран, водородной энергетикой, нефтепереработкой, решением экологических проблем, с тонким органическим синтезом.

Результаты, полученные в процессе научных исследований, могут быть использованы в учебном процессе – лекционных курсах, семинарских занятиях, преподаваемых для студентов технических и естественнонаучных специальностей.