

Национальный исследовательский Томский государственный университет

**Новые катализаторы и каталитические процессы для  
решения задач экологически чистой и  
ресурсосберегающей энергетики**

Сборник тезисов докладов научной школы молодых ученых

9 – 10 сентября 2021

Томск 2021

# Исследование структуры и свойств катализаторов Ni/SBA-15

## модифицированных CeO<sub>2</sub> и La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

А. А. Фетисова<sup>1</sup>, П. К. Пуганенко<sup>1</sup>, Н. В. Дорофеева<sup>1,\*</sup>, М. В. Грабченко<sup>1</sup>, Ю. В. Ларичев<sup>2</sup>,  
О. В. Водянкина<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Томский Государственный Университет, Томск, Россия

<sup>2</sup>Институт катализа СО РАН, Новосибирск, Россия

\*nv-dorofeeva@yandex.ru

В настоящее время особое внимание уделяется экологической проблеме, заключающейся в снижении антропогенного влияния на окружающую среду. Углекислотная конверсия метана (УКМ) может снизить выбросы основных парниковых газов – CH<sub>4</sub> и CO<sub>2</sub> путем преобразования их в синтез-газ, который используют для получения продуктов тонкого органического синтеза: жидкое топливо, метанол, диметиловый эфир др. Весьма перспективными катализаторами УКМ являются Ni-содержащие катализаторы вследствие относительно низкой стоимости и каталитических свойств, не уступающих благородным металлам. Однако продолжительная эксплуатация в условиях высоких температур приводит к дезактивации катализатора. Одним из путей решения проблемы является модификация носителя и применение сложных систем, содержащих добавки компонентов, стабилизирующих частицы Ni. Целью данной работы было исследование влияния условий приготовления никелевых катализаторов на их структурные и текстурные характеристики, а также исследование формирования и распределения частиц Ni в пористой структуре и на внешней поверхности SBA-15.

Мезопористый SBA-15 был получен методом темплатного синтеза с использованием триблоксополимера Pluronic P123 в качестве темплата. Синтезированный порошок был прокален при различных температурах в диапазоне 500-800 °С. CeO<sub>2</sub>- и La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-модифицированные носители были синтезированы методом пропитки по влагеомкости с использованием водных растворов нитратов церия и лантана с добавкой лимонной кислоты и без неё. На основе модифицированных носителей получены Ni-содержащие катализаторы (10 мас.% Ni), прокаленные при 800 °С. Полученные носители и катализаторы исследованы методами низкотемпературной адсорбции азота, РФЛА, РФА, МУРР, ТПВ-H<sub>2</sub>. Каталитическая активность изучена в реакции углекислотной конверсии метана.

Согласно данным низкотемпературной адсорбции азота и МУРР в процессе прокаливании SBA-15 происходит частичная деградацией пористой структуры, сопровождающаяся уменьшением параметра решетки (*a*) и диаметра пор, что может быть связано со спеканием концов частиц SBA-15. Введение оксида никеля частично стабилизирует структуру SBA-15 за счет формирования частиц NiO в мезопорах, более крупные частицы 10-30 нм распределены на внешней поверхности носителя. Модификаторы CeO<sub>2</sub> и La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> также имеют бимодальное распределение частиц: в порах и на внешней поверхности носителя. В случае нанесения La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> на SBA-15 наблюдается уменьшение параметра решетки SBA-15, что, вероятно, связано с образованием поверхностных силикатов лантана. В катализаторе Ni/La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SBA-15 формирование Ni НЧ наблюдается в двух диапазонах температур 350-450 °С и 500-850 °С, соответствующих восстановлению частиц NiO и LaNiO<sub>x</sub>. В случае катализаторов Ni/SBA-15 и Ni/CeO<sub>2</sub>/SBA-15 частицы активного компонента образуются только при восстановлении NiO. Частицы никеля имеют более сильное взаимодействие с CeO<sub>2</sub> и La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> по сравнению с SiO<sub>2</sub>, что приводит к образованию более мелких частиц никеля.

Установлено, что в реакции УКМ введение La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и CeO<sub>2</sub> в состав носителя способствует повышению конверсии реагентов по сравнению с немодифицированным образцом и снижает зауглероживание катализатора.

*Работа была поддержана грантом Российского научного фонда (проект 19-73-30026).*