

稀土双钙钛矿催化剂 La_2FeBO_6 (B=Mn、Co、V、Mo) 上 H_2S 选择催化氧化性能研究

张凤莲, 张鑫, 郝郑平

中国科学院生态环境研究中心, 环境纳米材料实验室, 北京, 100085

关键词: 双钙钛矿复合氧化物, H_2S 选择氧化, 反应机理

H_2S 的排放会引起诸多环境和健康问题, H_2S 选择性催化氧化不受热力学平衡限制, 理论转化率可以达到 100%, 是消除石油化工行业酸性气中 H_2S 的最为经济、高效的技术之一, 而选择氧化催化剂的性能是决定这一技术有效性的关键。双钙钛矿 ($\text{A}_2\text{B}'\text{B}''\text{O}_6$) 具有与钙钛矿 (ABO_3) 类似的性质, 都有稳定的骨架结构, 阳离子可取代性, 过渡金属氧化物价态变化或发生电荷的补偿作用产生氧空位而形成缺陷, 从而改善催化剂催化性能, 尤其是双钙钛矿 B 位原子的八面体结构由 $\text{B}'\text{O}_6$ 和 $\text{B}''\text{O}_6$ 交替排列而成, 形成 $\text{B}'\text{-O-B}''$ 结构, 具有超交换作用, 是非常理想的催化材料。本文采用溶胶凝胶法合成了一系列稀土双钙钛矿催化剂 $\text{La}_2\text{B}'\text{B}''\text{O}_6$ (B=Mn、Co、V、Mo), 并应用于 H_2S 选择催化氧化制备单质硫。采用 XRD, Raman, H_2 -TPR, TPD-MS, XPS 等技术对催化剂的组成、结构和物化性质进行了研究, 使用固定床反应装置考察了催化剂的催化活性, 并探究了催化剂反应机理。B 位两种过渡金属的协同作用改善了催化剂的还原性能及氧传递能力, 从而使该催化剂在 H_2S 的选择催化氧化中表现出了优异的催化性能, 其中 $\text{La}_2\text{FeMnO}_6$ 催化活性最好, 反应遵循氧化还原的机理。

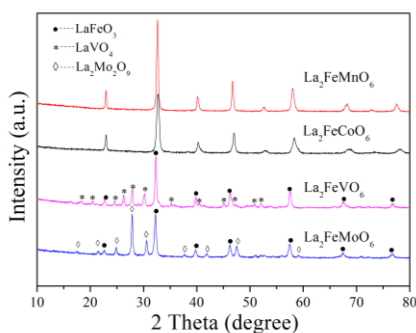


图 1. $\text{La}_2\text{B}'\text{B}''\text{O}_6$ 催化剂的 XRD 表征结果

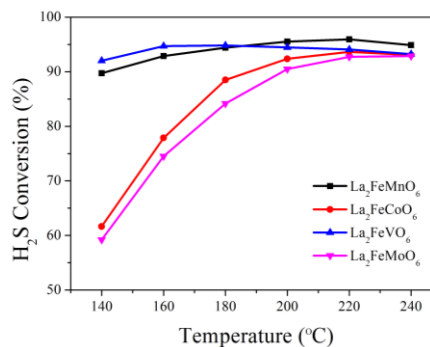


图 2. La_2BBO_6 催化剂上 H_2S 的转化率

参考文献

1. F. L. Zhang, X. Zhang, G. X. Jiang, N. Li, Z. P. Hao, S. Q. Q., *Chem. Eng. J.*, 2018, **384**: 831–839

* 国家自然科学基金(21507148、21577158、21337003)