

Контролируемое диспергирование Ni на N-ПУМ для стабильного и селективного получения H₂ из газообразной муравьиной кислоты

Нищачкова А.Д.¹, Булушев Д.А.², Трубина С.В.¹, Окотруб А.В.¹, Булушева Л.Г.¹

nishchakova@niic.nsc.ru

¹ ИНХ СО РАН, Новосибирск, Россия

² ИК СО РАН, Новосибирск, Россия

Высокодисперсные никелевые катализаторы проявляют высокую активность в реакциях гидрирования и дегидрирования [1]. Дисперсностью катализатора можно управлять путём подбора условий синтеза, например, варьируя атмосферу стадии кальцинации или состав носителя. В данной работе три образца, содержащих 3 мас.% никеля, были получены методом пропитки носителей – азотсодержащего пористого углеродного материала (NC) [2] и его аналога, содержащего 1 мас.% Ni в виде Ni-N₄ центров (1NiNC) [3] – раствором ацетата никеля (Схема 1). Последующее разложение предшественника никеля проводили при 350 °С в двух атмосферах: в инертной (Ar) и восстановительной (HCOOH/Ar).

Исследование образцов набором физико-химических методов (HAADF/STEM, XPS, EXAFS и др.) показало, что использование HCOOH/Ar атмосферы способствовало образованию наночастиц Ni размером ~2 нм, тогда как два других образца, полученных в аргоне, содержали Ni более высокой дисперсности. Предварительное содержание Ni-N₄ центров в носителе привело к образованию малоатомных кластеров никеля на соседних к центру углеродных гексагонах [4], а первоначальное отсутствие металла в носителе привело к его моноатомному распределению. Образцы показали близкую каталитическую активность в получении водорода из газообразной муравьиной кислоты, однако катализатор, содержащий моноатомные центры, продемонстрировал наименьшую кажущуюся энергию активации процесса (105 кДж/моль), наивысшую селективность образования H₂ (99%) и стабильность в течение 5 часов работы.

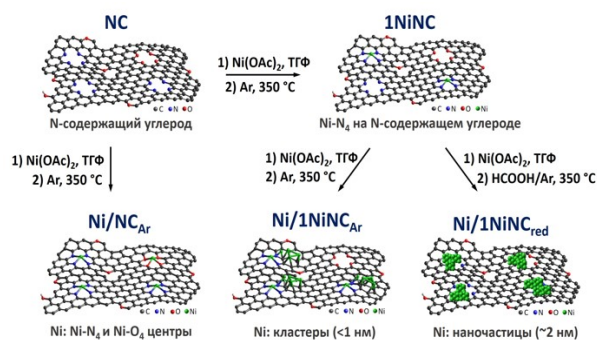


Схема 1. Схематическая иллюстрация условий синтеза и структуры катализаторов.

ССЫЛКИ

1. A.D. Nishchakova, L.G. Bulusheva, D.A. Bulushev, *Catalysts* (2023), **13**, 845.
2. A.D. Nishchakova, M.A. Grebenkina, E.V. Shlyakhova, Y.V. Shubin, K.A. Kovalenko, I.P. Asanov, Y.V. Fedoseeva, A.A. Makarova, A.V. Okotrub, L.G. Bulusheva, *J. Alloys Compd.* (2021), **858**, 158259.
3. D.A. Bulushev, A.D. Nishchakova, S.V. Trubina, O.A. Stonkus, I.P. Asanov, A.V. Okotrub, L.G. Bulusheva, *J. Catal.* (2021), **402**, 264.
4. A.D. Nishchakova, D.A. Bulushev, S.V. Trubina, O.A. Stonkus, Y.V. Shubin, I.P. Asanov, V.V. Kriventsov, A.V. Okotrub, L.G. Bulusheva, *Nanomaterials* (2023), **13**, 545.