

# КАТАЛИЗАТОРЫ ПОЛНОГО ОКИСЛЕНИЯ CH<sub>4</sub>, СОДЕРЖАЩИЕ Rh, Ru, Ir

Игонина Е.Д.<sup>\*</sup>, Колесник И.В.<sup>\*</sup>, Напольский К.С.<sup>\*\*</sup>

<sup>\*</sup> Факультет наук о материалах Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова, 119992, Москва, Россия, e-mail: [igoninal96@mail.ru](mailto:igoninal96@mail.ru)

<sup>\*\*</sup> Химический факультет Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова, 119992, Москва, Россия

Катализаторы на основе системы (Pt,Pd)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> широко используются для проведения реакции полного окисления метана. Одним из существенных недостатков данной системы является постепенное снижение каталитической активности при длительной эксплуатации. Известно, что наличие Rh, Ru, Ir в составе катализатора ряде случаев позволяет не только увеличить срок работы катализаторов и их устойчивость к серосодержащим соединениям, но и снизить рабочую температуру [1,2].

В связи с этим, целью данной работы является оптимизация состава катализаторов полного окисления метана на основе системы (Pt,Pd)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> путем добавления Rh, Ru, Ir для стабилизации свойств катализатора при длительной эксплуатации.

Необходимыми требованиями для прекурсоров, содержащих Ir, Rh и Ru, являются высокая растворимость в воде, устойчивость в водных растворах и отсутствие катионов щелочных металлов, которые могут отрицательно влиять на каталитическую активность платиновых металлов. Важным требованием является то, что соединение-прекурсор должно разлагаться до металла или соответствующего оксида [3]. В качестве прекурсоров, удовлетворяющих этим требованиям, нами были выбраны соединения RuCl<sub>3</sub>\*1,88H<sub>2</sub>O, H<sub>3</sub>[Ir(C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)<sub>3</sub>] \*6,2H<sub>2</sub>O, H<sub>3</sub>[Rh(C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)<sub>3</sub>]\*H<sub>2</sub>O, из которых H<sub>3</sub>[Rh(C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)<sub>3</sub>]\*H<sub>2</sub>O было синтезировано впервые. Согласно данным термоанализа и рентгенофазового анализа было установлено, что после кратковременного нагрева до 670°C на воздухе, соответствующего обработке катализаторов на производстве, RuCl<sub>3</sub>\*1,9H<sub>2</sub>O, H<sub>3</sub>[Ir(C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)<sub>3</sub>]\*, H<sub>3</sub>[Rh(C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)<sub>3</sub>]\*H<sub>2</sub>O переходят в соответствующие оксиды.

Для установления фазового состава катализаторов после термической обработки, были синтезированы модельные образцы составов (Pt,Pd,Ru)/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (Pt,Pd,Ir)/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (Pt,Pd,Rh)/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Согласно данным рентгенофазового анализа и КР-спектроскопии, все они содержат PdO, PtO<sub>2</sub> и RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub> или Rh<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. К сожалению, состав металлических фаз идентифицировать не удалось, так как их пики на рентгенограммах перекрываются с пиками оксидных фаз. Тем не менее, полученные данные позволяют сделать вывод о том, что введение Ru, Ir и Rh приводит к стабилизации фазы PtO<sub>2</sub>, отсутствующей в составе катализаторов (Pt,Pd)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Согласно измерениям активности и стабильности свойств катализаторов в течение длительного времени, введение дополнительного компонента значительно влияет на эти параметры. Так, введение рутения приводит к плавному снижению активности катализатора на 65% в течение 104 суток. Введение родия и иридия приводит к быстрому снижению активности в течение первых 30 суток работы катализатора и стабилизации на постоянном уровне. При этом введение иридия приводит к

увеличению активности катализатора, экстраполированной на срок измерения в течение 1 года на 63% по сравнению с системой (Pt, Pd)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

[1] Hirofumi Ohtsuka, «The Oxidation of Methane at Low Temperatures Over Zirconia-Supported Pd, Ir and Pt Catalysts and Deactivation by Sulfur Poisoning»// Catal Lett, 2011, 141, 413–419.

[2] Chong Kul Ryu, Min Wong Ryoo, In Soo Ryu, Sung Kyu Kang, «Catalytic combustion of methane over supported bimetallic Pd catalysts: Effects of Ru or Rh addition»//Catalysis Today, 1999, 47, 141-147.

[3] Kinnunen N. et al. «Role of the Interface between Pd and PdO in Methane Dissociation» // The Journal of Physical Chemistry C, 2011, 115, 19197–19202.