

超微細 CuO/CeO₂ 觸媒於富氫下一氧化碳選擇氧化之研究

Selective CO Oxidation in Rich Hydrogen by Ultra Fine CuO/CeO₂ Catalysts

周坤利、郭宏志、陳世明、王振熙*

義守大學化工系

*Email: jbwang@isu.edu.tw

摘要

本計畫研究新穎之逆微胞微乳化法製備粒度分佈狹窄高比表面積熱穩定之氧化鈣粒子，賦與 CuO/CeO₂ 觸媒優越的界面金屬-擔體作用效應，建立富氫下一氧化碳選擇氧化銅觸媒之基礎研究及逆微胞微乳化法合成條件之關鍵技術。並根據不同變因下 CO 轉化率及選擇率的變化，討論此觸媒在選擇氧化方面的催化表現。製備 5、10、20wt% Cu 之奈米 CuO/CeO₂ 觸媒，其平均粒徑約為 3.139、3.382、3.504 nm。實驗以氫氣作為載氣，通以定量的氧氣和一氧化碳，藉此觀察 CO 轉化及氫氣消耗對溫度的變化。製備的 CuO/CeO₂ 觸媒其反應活性最佳表現為 Cu 擔載量 5 wt%，當溫度 80°C 時轉化率已達 70%，且在 100~110°C 時轉化率已達 100%。且亦能維持高選擇率，隨著銅量由 5wt% 增量至 20wt%，CO 完全轉化的溫度也隨之延後。並以 X-射線繞射儀(XRD)、穿透式電子顯微鏡(TEM)鑑定其銅擔載量多寡對於觸媒特性影響，發現當銅擔載量超過 10wt% 時，將會析出氧化銅晶相，因而造成觸媒團聚現象，致氧化銅分散度降低。再以比表面積測定儀(BET)分析確認比表面積皆隨銅量上升而呈現下降的趨勢。H₂-TPR 實驗結果指出金屬擔體界面氧化銅分子簇的還原溫度，與觸媒能將 CO 完全轉化的溫度相關。實驗也比較在 130°C 下，CO 與 H₂ 競爭氧活性位的能力，發現 CO 對於氧的反應力大於 H₂，證實所研製的觸媒於 CO 選擇氧化反應之優越性能。

一、前言與研究目的

基於能源與環保之觀點，各種潔淨能源科技在 20 世紀後期得以蓬勃發展，譬如風能、

太陽能、地熱、潮汐等發電技術均有長足進步，不過，最具發展潛力之能源科技應屬氫能科技，特別是燃料電池技術已趨近於商業化，極有可能成為 21 世紀最重要的綠色科技之一。

但是在燃料電池的應用發展上，仍舊有許多的問題有待改進的，其中 CO 對燃料電池的陽極電極的毒化就是個相當嚴重的問題。氫燃料電池燃料的來源為利用重組裝置將甲醇或其他碳氫化合物轉化以獲取氫氣，然而在轉化的過程中，會因為轉化不完全而產生 CO，微量的 CO 會毒化燃料電池的陽極，使得燃料電池的性能迅速的衰退。且質子交換膜燃料電池的操作溫度在 60°C~200°C 之間，要如何在此溫度範圍中盡量去除 CO，又不能過度的消耗氫氣，使得質子交換膜燃料電池能夠維持效率成為許多人所研究探討的技術。

目前已有不少針對此 CO 選擇氧化反應的觸媒進行研究，不過大多是針對貴重金屬進行探討，主要是因為貴重金屬對於 CO 氧化較具活性，但由於貴重金屬的稀少性與價格昂貴，使得選用基本金屬的研究逐漸受到重視。而以 CeO₂ 作為載體，是因為 CeO₂ 本身為具有固有氧空洞的材料，且無論是加熱或處在還原條件中，其擔體都有助於抗燒結性的特性與金屬分散度的提升，增加活性成份的表面積，間接提高其活性。近年來的文獻[1-3]指出擔體上的氧空洞與界面氧化銅之間產生界面金屬-擔體作用效應有助於提升 CuO 觸媒的活性，也因此大幅降低了 CO 氧化的起燃溫度，並能增進活性，甚至媲美貴重金屬的觸媒。相較於 Au 及 Pt 等貴重金屬價格昂貴，Cu 金屬就經濟實惠許多。

傳統的化學法甚難製備出粒徑均一的微粒。而逆微胞微乳化法係在油相中添加介面活性劑，控制適當油-水-介面活性劑比例，以形成穩定的油中水滴型逆微胞。將前驅鹽溶液及還原劑分別溶於水相逆微胞中，經由相互的碰撞使微胞之內容物進行傳遞、交換與反應。每一逆微胞可視為奈米反應器，溶質在這些微反應器內分佈相當均勻，有相當高傳送及高交換率，可以有效控制反應組成及核生成與成長的程序。故其反應迅速，且所得產物因受逆微胞尺寸所控制，因此產物單佈性(monodispersity)極高，可製備出化學組成與粒徑均一的奈米粒子，並可改變製備變因來控制粒子大小。

本研究所開發的微乳化方法係將金屬水溶液微乳化製備成微乳化系統 I，將鹼液水溶液配製成微乳化系統 II，而後將其二微乳化系統溶液混合，使其微胞系統內的金屬離子能與鹼液行沉澱反應製得經重新組合過後的金屬氧化物粒子。此法能有效地控制二氧化鈾顆粒尺寸大小以及結構型態，具有高比表面積、高儲氧/釋氧等材料特性，可大幅提昇富氫下 CO 轉化活性與選擇率。

二、研究方法

2.1 以微乳化法製備奈米氧化鈾粒子並以含浸方式將金屬銅擔載於奈米氧化鈾上：

- (1) 取 110 g 的 Triton X-100 與 110 g 的己醇，並以磁石攪拌至透明完全溶解。(A)
- (2) 由上述(A)溶液中取出 96 ml，並加入 320 ml 環己烷，緩慢攪拌直至透明狀，再以滴管緩慢滴入 20 ml 濃度為 1M 的硝酸鈾水溶液。(B)
- (3) 由上述(A)溶液中取出 96 ml，並加入 320 ml 環己烷，緩慢攪拌直至透明狀，再以滴管滴入 42 g 濃度為 25 wt% 氨水溶液。(C)
- (4) 將上述(C)溶液緩慢滴入(B)溶液中，過程中並以磁石均勻攪拌，形成均相的微乳化溶液 (D)，此時溶液呈現出澄清狀。
- (5) 將所得膠體靜置 24 小時後，將其膠體沉澱物加入 200 ml 丙酮並以超音波震盪機震

盪 30 分鐘，再取出以離心機 3600 rpm 轉速離心 20 分鐘得其濾餅，此為第一次水洗。

- (6) 將其所得之濾餅打碎後再次加入 200 ml 丙酮，並以超音波震盪 30 分鐘，再次以離心機 3600 rpm 轉速離心 20 分鐘，此為第二次水洗，此步驟循環共 4 次，共經過 5 次水洗動作。並將水洗後的濾餅以對流式烘箱恆溫 60°C 乾燥 12 小時。
- (7) 將其乾燥後的粉體加以研磨後，置入鍛燒系統中作鍛燒，其升溫條件為 3.8°C/min。升溫至 773 K 鍛燒 2 小時，即完成觸媒的製備。

2.2 CuO/CeO₂ 觸媒之活性測試研究：

實驗步驟如下：

- (1) 秤取 180 mg 的觸媒填入反應器中，觸媒床上下部份填充石英砂，以固定其觸媒床，使反應進料氣體的溫度均勻分佈。
- (2) 將步驟 1. 所填充好觸媒的反應器置入加熱爐中，從反應器底部插入 1/16 吋 K 型熱電偶且固定之，連接溫度感測器，可得反應管內部的溫度。於電子溫度控制器設定其溫度。
- (3) 反應進料氣體，設定 H₂ : O₂ : CO = 98 : 1 : 1 的流量比例，其反應進料氣體的總體積流速為 30 ml/min，至氣相層析儀(GC)進行氣體的分析。
- (4) 待步驟 3 所得到的反應進料氣體，經 GC 分析其氣體的 peak 具有再現性時，就可以進行活性測試之研究。
- (5) 開啟加熱器進行加熱程序，待其溫度到達所需的溫度點且穩定時，以 GC 分析產物中 H₂、O₂、CO 和 CO₂ 的面積值變化量。
- (6) 待 GC 分析出的 peak 有良好的一致性後，再將加熱爐的溫度依序提高 10°C，就可取得該溫度下的產物，經由 GC 分析，得以獲得另一組實驗分析數據值。

2.3 選擇率與轉化率之計算：

CO Conversion, %

$$= \frac{CO^{in} - CO^{out}}{CO^{in}} \times 100\%$$

CO Selectivity, %

$$= \frac{0.5(CO^{in} - CO^{out})}{O_2^{in} - O_2^{out}} \times 100\%$$
$$= \frac{\Delta[CO_2]}{\Delta[CO_2] + \Delta[H_2O]} \times 100\%$$

三、結果與討論

3.1 觸媒特徵：

由圖 1 觸媒 XRD 圖譜只顯示出二氧化鈾的特徵峰，屬於立方螢石型晶型結構；且並未出現銅物種的特徵峰，代表此銅物種在載體上的分散很好。藉由 TEM 結果可知觸媒 CuO/CeO₂ 平均粒徑為 3.139 nm，其粒徑分佈示於圖 2。與之前的研究成果平均粒徑大於 200 nm 比較[4]，本研究以逆微胞微乳化法製備的載體與觸媒平均粒徑顯然大幅減少。

3.2 Cu/CeO₂ 觸媒對 CO 選擇氧化的反應特性：

為了解該觸媒於 CO 選擇氧化之反應特性，於富氫環境下之選擇率、轉化率對於溫度的關係變化，測試的觸媒為 5Cu/CeO₂、10Cu/CeO₂、20Cu/CeO₂ 反應氣體進料比例為 H₂/O₂/CO = 98/1/1，總體積流速為 30 ml/min，觸媒填載量為 180 mg，其測試結果如圖 3 所示。5Cu/CeO₂ 觸媒，當爐溫溫度為 60°C 時，此時的 CO 轉化率已達 30%，並且於攝氏 60~100°C 的溫度區間，轉化率呈現快速上升的趨勢，而在此 40 度的溫度區間內，轉化率的差異高達 70% 而選擇率則維持在 0.8 以上。氫氣的大量消耗亦代表選擇率的大幅下降，由圖 3 可見 100°C 時，即使 CO 轉化率接近

100%，亦未見氫氣的大量起燃及耗損，因此依據質子交換膜燃料電池(60~200°C)的操作條件，此觸媒應可作為在低溫環境中即能達到完全去除 Pt 電極上 CO 毒化效應的影響。而相較於先前實驗文獻[4,5]，在相同溫度下能表現出較為優越的 CO 轉化率。

研究金屬擔載量對於觸媒活性的影響。5Cu/CeO₂ 於攝氏 42°C 已達轉化率 6% 而 10Cu/CeO₂ 則延遲至 46°C 達轉化率 6%，5Cu/CeO₂ 轉化率急速攀升區間為攝氏 50~90°C，10Cu/CeO₂ 則延遲約 5~6°C。再次將 Cu 擔載量提升至 20%，圖 3 顯示 10Cu/CeO₂ 於攝氏 54°C 轉化率為 17%，而 20Cu/CeO₂ 則延遲至 62°C 轉化率才達 17%，10Cu/CeO₂ 轉化率急速攀升區間為攝氏 60~95°C，而 20Cu/CeO₂ 則延遲約 5~6°C。綜合上述結果，在轉化率表現上如文獻[6]所言，當擔載量超過 10~15wt%，氧化銅便會開始析出，因而減少 Cu/CeO₂ 觸媒的比表面積，如表 1 所示。研究顯示銅擔載量 5wt% 活性表現最為優異。故後續研究以 5wt% 為主。

為進一步觀察反應氣體中含 CO 與不含 CO 的測試環境下，對於氫氣起燃的影響為何，因此在圖 4 中所示，將進料的成分比例稍做更動，分別以 H₂/O₂/CO = 98/1/1 及 H₂/O₂ = 98/2 的比例作為進料，並以 CO 轉化率為 100% 為研究區間做研究，其總流速同圖 3 測試為 30 ml/min。因此由圖 4 可見，在無 CO 進料參與下，任一溫度下皆表現出較多的水氣產生，亦表示此環境下為耗氫的狀態。而此測試環境再次對照至圖 3 CO 轉化率為 100%，因此由圖 4 可知，縱然水氣的生成隨著溫度上升而略微增加，但是卻無觀察到有氫氣大量起燃的狀況。驗證了前述觀點，此觸媒應屬不高量耗氫之觸媒材料。

3.3 氧分壓對選擇氧化的影響：

欲了解及改善其轉化率，經由改變氧分壓進而觀察對觸媒 CO 轉化率的影響。當觸媒填載量為 180 mg，氣體進料總流速為 30

ml/min，CO 進料濃度為 1%，更動其 CO、O₂ 進料比例，其餘以 H₂ 作平衡，觀察其在 58、66、86、97°C 溫度下的 CO 轉化率及水的生成莫耳分率。由圖 5 可見，當提高 O₂/CO 比例至 2 倍時，可觀察出在 58~97°C 的情況下皆有顯著的提高轉化率影響，而當繼續提高 O₂/CO 比例時，此時的轉化率幾乎不再有所變動，未見其增長或消退；反觀圖 6 當增加氧分壓時，水的生成莫耳分率開始產生抑制的現象，直到當 O₂/CO 比例為 4 倍以上時，此時的抑制效應才漸漸緩和。

“氧分壓對 CO 氧化活性的影響”其結果對照至文獻[7]中所提到，水的莫耳生成率皆隨氧氣量增加而上升，而當氧氣量增加至一定量時將因活性位數量的限制，水的莫耳生成率將呈現平緩趨勢，而呈現定值。對比至本實驗所呈現結果，水的莫耳分率則隨氧分壓增加而略微減少，直至當氧氣/一氧化碳比值超過 4 倍以上時，才呈現平緩趨勢，其推論其原因在於本觸媒所處於的 CO 轉化測試環境皆處於低溫環境中(<100°C)而此環境下，因氧化鈾本身儲氧特性，及 Cu/CeO₂ 本身藉由氧化鈾所提供的氧原子進而進行 CO 轉化反應，因此於此溫度下尚未達至到氫氣大量起燃溫度，並且藉由溫度及氧濃度提高有利對於氧化鈾儲氧的反應，因而降低了水氣生成的莫耳分率。

3.4. CO 與 H₂ 競爭反應的情形

由圖 3 可知，此觸媒在 CO 選擇氧化反應中於低溫環境的優勢，在實驗操作時溫度操作是由低溫逐步往上升，因此 CO 與 O₂ 的反應也是由低溫逐漸開始反應，直至高溫時，僅殘餘部分未反應 O₂ 會與 H₂ 反應，故無法由圖 3 關係圖中判斷 CO 與 H₂ 競爭反應的情形。因此設計本次實驗，將觸媒環境操作於 130°C，待穩定，並先以氫氣與氧氣通入，使氫氣完全氧化，待其反應穩定後，立即通入 CO 進行選擇氧化反應，藉此觀察 CO 與 H₂ 競爭反應的情形。在圖 7 中起始進料比例為

H₂/O₂=99/1，經過 120 分鐘後氫氣與氧氣幾乎完全反應，此時 Cu/CeO₂ 上的活性位已完全被氫氣所佔據，並產生 2.5% 的水氣，此時 O₂ 選擇率為 0；而當此時通入 1% 的 CO 後發現，水氣部分明顯降低至 1.3%，O₂ 選擇率由 0% 提升至 46%。故證明 CO 與 H₂ 的競爭反應中，CO 具有較高的反應能力，在 CO 存在時，活性位會被 CO 佔據，而造成 H₂ 與 O₂ 的接觸機會減少。

3.5. 氫氣程溫還原

藉由 H₂-TPR 裝置，以 10% 氫氣及 90% 氫氣為還原氣，可了解此觸媒的可被還原性。圖 8 為觸媒之氫氣程溫還原圖譜，圖中 5Cu/CeO₂ 觸媒在 140°C 及 170°C 左右各有一個還原峰出現。Luo 等人[8]在探討 CuO/CeO₂ 觸媒的文獻指出，在 CeO₂ 界面處分散性高且與 CeO₂ 有良好交互作用的氧化銅分子簇會在溫度較低的時候被還原；而不在 CeO₂ 界面處與 CeO₂ 無交互作用的氧化銅分子簇則會在高溫時被還原。所以我們認為在 140°C 時，出現的 α 峰是在 CeO₂ 界面處與 CeO₂ 有良好交互作用的氧化銅分子簇還原峰；而在 170°C 時，出現的 β 峰則是不在 CeO₂ 界面處與 CeO₂ 無交互作用的氧化銅分子簇還原峰。圖 8 之 5Cu/CeO₂ α 波峰快速攀升區間為 100~150°C，對照至圖 3 的 5Cu/CeO₂ 反應溫度 100~150°C 正好為觸媒轉化率已達 100%。

而隨著氧化銅擔載量增加，由錯誤！找不到參照來源。可發現當氧化銅擔載量超過 10%，開始析出氧化銅晶相，並由圖 3 之 CO 活性圖可了解到此析出的氧化銅晶相使得分散性變差，致觸媒活性降低。5Cu/CeO₂ 與 20Cu/CeO₂ 兩觸媒 T₅₀ 的溫度為 70°C 及 76°C，T₁₀₀ 則是 100~110°C 以及 120~135°C 之間，T₅₀ 及 T₁₀₀ 溫度的延遲，對應至圖 8 中的 5Cu/CeO₂、20Cu/CeO₂ 之 α 波峰皆有往高溫爬升的趨勢，甚至於 20Cu/CeO₂ 的 α 波峰幾乎已和 β 峰重疊。故銅金屬與氧化鈾間的界面金屬-擔體作

用效應有助於提昇氧化銅的還原性。

3.6. 擔體經不同鍛燒溫度對觸媒之影響

為了瞭解擔體經過不同溫度鍛燒後，對於觸媒造成的影響，我們以同法配製 2 mol% 氧化鈔摻雜氧化鈾(2SDC)擔體，以 450、550 °C、650 及 750 °C 的溫度鍛燒，希望能了解擔體鍛燒溫度對我們研究的觸媒之影響。

在表 2 及表 3 中，可以看出擔體及觸媒均有相當小的粒徑及相當高的比表面積。隨著擔體鍛燒溫度增加，擔體粒徑越來越大，比表面積也越來越小，所以觸媒粒徑也隨著鍛燒溫度提升而增加，而比表面積卻是隨著鍛燒溫度增加而減少。在擔體鍛燒溫度 450 °C 時，Cu/2SDC 觸媒粒徑最小為 3.784 nm，比表面積最大為 129.513 m²/g；而在鍛燒溫度為 750 °C 時，Cu/2SDC 觸媒粒徑最大為 11.141 nm，比表面積最小為 56.734 m²/g。雖然如此但耐熱表現還是令人滿意的。

觀察圖 9 可知，觸媒擔體經過 450 °C 鍛燒後，轉化率明顯是最好的，圖中也可以看出隨著鍛燒溫度增加，完全將 CO 轉化的溫度也越高，到了鍛燒溫度為 750 °C 時，將 CO 完全轉化的溫度甚至提高到 140 °C，所以我們推測可能是因為比表面積減少的原因才導致觸媒活性降低。

為了證實我們的推論，將經過不同鍛燒溫度的擔體使用 XRD 分析。觀察圖 10 可發現擔體 CeO₂ 的特徵峰也隨著鍛燒溫度增加而越來越明顯，這是因為當觸媒擔體比表面積減少之後形成較大的粒子，所以在 XRD 圖譜中 CeO₂ 的訊號才會越來越強，同時也證明在較高的鍛燒溫度中比表面積確實會減少。

有了上述推測，我們以 H₂-TPR 來檢測觸媒還原性，見圖 11。使用 450 °C 鍛燒過擔體的觸媒在 H₂-TPR 中 α 峰出現最早，而波峰的位置大約在 90 °C 左右，隨著擔體鍛燒溫度的提升， α 峰也開始往高溫處偏移，到了擔體鍛燒溫度為 750 °C 時， α 峰幾乎與 β 峰重疊，觸媒幾乎已無金屬-擔體交互作用力。

這項結果也可以佐證觸媒活性測試圖，隨著擔體鍛燒溫度提高，完全將 CO 轉化的溫度也有提升的趨勢，證明了在使用逆微胞微乳法製備出的 Cu/2SDC 觸媒，擔體鍛燒溫度範圍在 450~750 °C 之間，是以 450 °C 的表現較為突出的。

四、結論

由上述的結果，可證明以微乳法製備奈米粒子銅觸媒 CuO/CeO₂ 於富氫下 CO 選擇氧化的優越性。可大幅降低 CO 起燃的溫度，當溫度在 80 °C 時，轉化率已達 70%，能仍維持高 CO 選擇率。以此觸媒進行選擇氧化反應，將溫度控制在 110 °C 以下，轉化率可達 100%，而選擇性尚有 52% 的效果，且整體耐熱表現令人滿意。本計劃所研製的觸媒，在富氫的氣氛下，於低溫環境能擁有高轉化率的特性，符合甲醇燃料電池的工作環境與本計畫期望相符。

五、參考文獻

- [1] W.P. Dow, Y.P. Wang, T.J. Huang, "Yttria-stabilized zirconia supported copper oxide catalyst: I. Effect of oxygen vacancy of support on copper oxide reduction," *Journal of Catalysis* 160 (1996) 155-170.
- [2] J.B. Wang, W.H. Shih, T.J. Huang, "Study of Sm₂O₃-doped CeO₂/Al₂O₃-supported copper catalyst for CO oxidation," *Applied Catalysis A: General* 203 (2000) 191-199.
- [3] J.B. Wang, D.-H. Tsai, T.-J. Huang, "Synergistic catalysis of carbon monoxide oxidation over copper oxide supported on samaria-doped ceria," *Journal of Catalysis* 208 (2002) 370-380.
- [4] J.B. Wang, S.-C. Lin, T.-J. Huang, "Selective CO oxidation in rich hydrogen over CuO/samaria-doped ceria," *Applied Catalysis A: General* 232 (2002) 107-120.

- [5] 朱勇誌"逆微胞法製備奈米銅觸媒擔載於氧化鈾上在富氫下行 CO 選擇氧化之研究", 碩士論文, 義守大學生物技術與化學工程研究所, 民國九十八年.
- [6] A. Martinez-Arias, M. Fernandez-Garcia, O. Galvez, J. Coronado, J. Anderson, J. Conesa, J. Soria, G. Munuera, "Comparative study on redox properties and catalytic behavior for CO oxidation of CuO/CeO₂ and CuO/ZrCeO₄ catalysts," Journal of Catalysis 195 (2000) 207-216.
- [7] 劉嘉榮"微乳化法製備氧化鈾擔載銅觸媒於富氫下CO選擇氧化之研究", 碩士論文, 義守大學生物技術與化學工程研究所, 民國九十八年
- [8] M.F. Luo, Y.J. Zhong, X.X. Yuan, X.M. Zheng, "TPR and TPD studies of CuO/CeO₂ catalysts for low temperature CO oxidation," Applied Catalysis A: General 162 (1997) 121-131.

表 3 不同鍛燒溫度 2SDC 擔體及其所配製 Cu/2SDC 觸媒之 TEM 平均粒徑(nm)

鍛燒溫度	2SDC 擔體	Cu/2SDC 觸媒
450°C	3.481	3.784
550°C	4.466	4.687
650°C	6.131	6.451
750°C	10.711	11.141

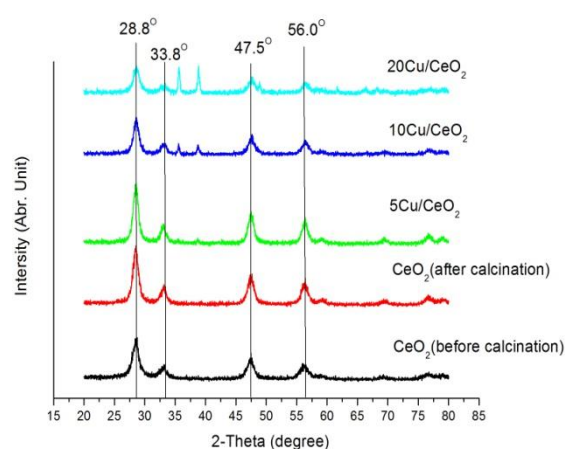


圖 1. Cu/CeO₂ 觸媒之 X-ray 繞射光譜圖。

表 1 銅擔載量與比表面積

	BET area (m ² /g)
CeO ₂	79.898
5Cu/CeO ₂	71.933
10Cu/CeO ₂	64.841
20Cu/CeO ₂	57.667

表 2 不同鍛燒溫度 2SDC 擔體及其所配製 Cu/2SDC 觸媒之 BET 比表面積(m²/g)

鍛燒溫度	2SDC 擔體	Cu/2SDC 觸媒
450°C	136.784	129.513
550°C	113.572	102.195
650°C	90.421	79.843
750°C	68.952	56.743

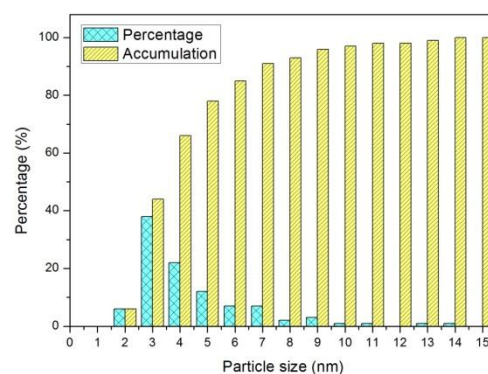


圖 2. 5Cu/CeO₂ 觸媒粒徑分佈圖

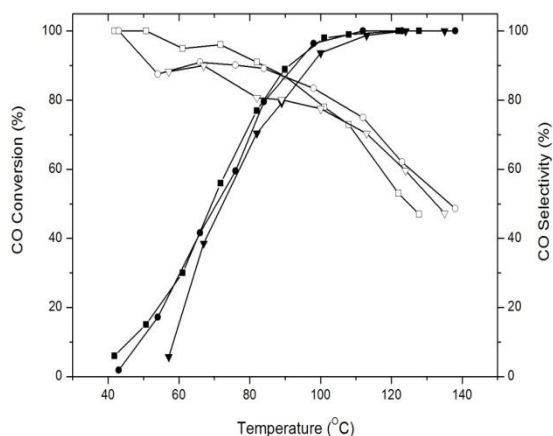


圖 3. 5Cu/CeO₂ CO 轉化率(■)選擇率(□)、10Cu/CeO₂ 轉化率(●)選擇率(○)、20Cu/CeO₂ 轉化率(▼)選擇率(▽)隨溫度變化之情形

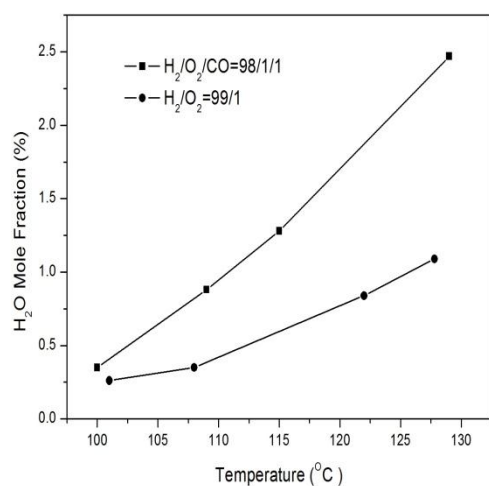


圖 4. 氧化反應後水氣生成量。

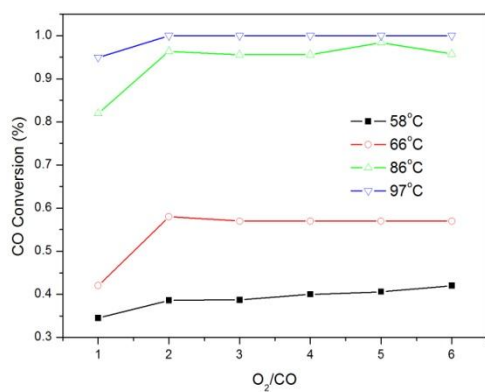


圖 5. 氧分壓對 CO 氧化活性的影響。

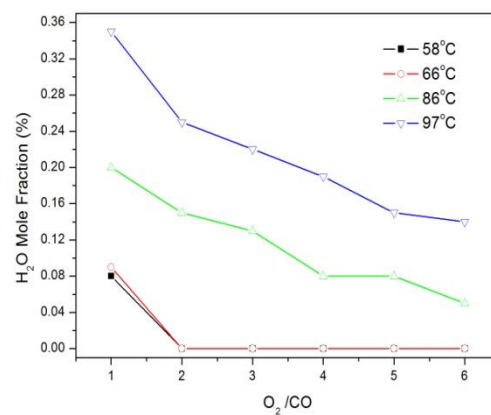


圖 6. 氧分壓對氫氣消耗量的影響。

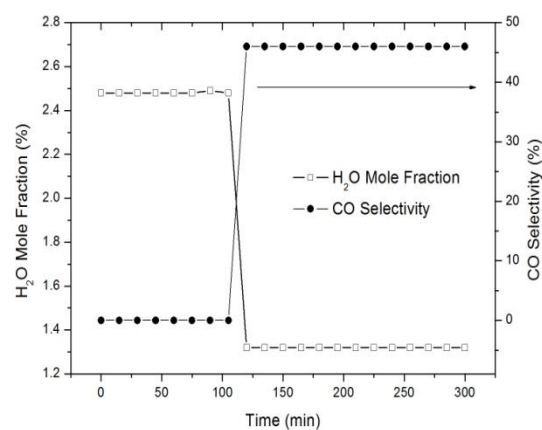


圖 7. 水的產率與氧氣選擇率隨時間變化的情形；溫度為 130°C 時，進料比例以 H₂/O₂ = 99/1 開始反應，於 120min 時進料比例改以 H₂/O₂/CO = 98/1/1。

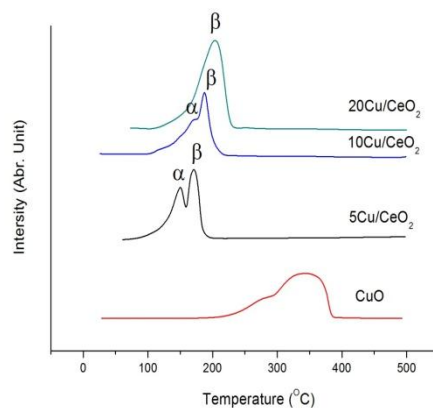


圖 8. 氧化銅擔載於氧化鈰之氫氣程序升溫還原圖

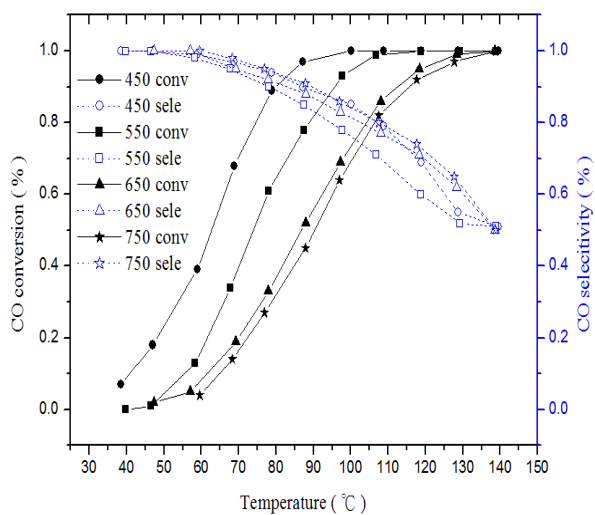


圖 9. 擔體經不同鍛燒溫度之 5Cu/2SDC 觸媒活性測試圖，氣體進料比 $H_2/O_2/CO = 98/1/1$

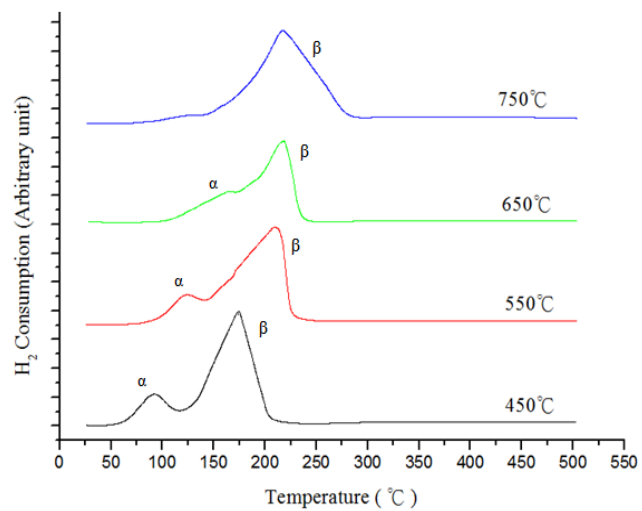


圖 11. 2SDC 擔體經不同鍛燒溫度製備出 Cu/2SDC 觸媒 H_2 -TPR 圖譜

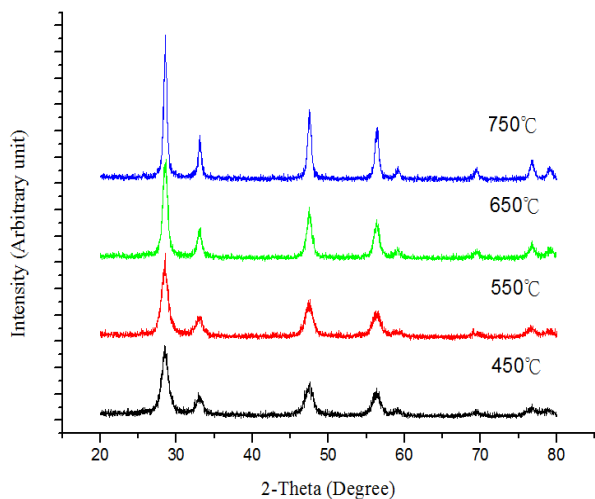


圖 10. 2SDC 擔體經不同溫度鍛燒之 XRD 圖譜