

## Ni基催化剂上CH<sub>4</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>和C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>的裂解积炭性能

杨咏来; 徐恒泳; 李文钊

中国科学院大连化学物理研究所, 大连 116023

摘要:

采用脉冲微反技术研究了添加半导体氧化物对Ni基催化剂上CH<sub>4</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>和C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>的裂解积炭反应特性的影响。结果表明, n型半导体CeO<sub>2</sub>的添加降低了CH<sub>4</sub>和C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>的积炭活性, 而p型半导体Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>的添加则加速CH<sub>4</sub>和C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>的裂解积炭; 而对于与CH<sub>4</sub>和C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>活化机制不同的C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>分子的活化, 上述影响机制正好相反, n型半导体CeO<sub>2</sub>的添加促进C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>的裂解积炭反应, 而p型半导体Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>的添加则抑制C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>的裂解积炭反应。XPS分析表明, 活性金属Ni与半导体氧化物之间存在的金属-半导体相互作用是这种影响机制的主要因素。

关键词: 甲烷 乙烷 乙烯 镍催化剂 金属-半导体相互作用

收稿日期 2001-05-25 修回日期 2001-06-28 网络版发布日期 2001-09-15

通讯作者: 李文钊 Email: wzli@dicp.ac.cn

### 本刊中的类似文章

1. 陈吉祥; 邱业君; 张继炎; 苏万华. La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和CeO<sub>2</sub>对CH<sub>4</sub>-CO<sub>2</sub>重整Ni/MgO催化剂结构和性能的影响[J]. 物理化学学报, 2004, 20(01): 76-80
2. 王军威; 徐金光; 田志坚; 徐云鹏; 徐竹生; 林励吾. Ba、Mn对Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>热稳定性和甲烷催化燃烧活性的影响[J]. 物理化学学报, 2002, 18(11): 1018-1022
3. 邹吉军; 李阳; 张月萍; 刘昌俊. 甲烷二氧化碳介质阻挡放电转化产物分布研究[J]. 物理化学学报, 2002, 18(08): 759-763
4. 冀永强; 冯文林; 郝茂荣; 李会英. CH<sub>3</sub>NO<sub>2</sub>和CH<sub>3</sub>自由基吸氢反应途径和变分速率常数计算[J]. 物理化学学报, 2002, 18(08): 721-726
5. 周灵萍; 李伟; 陶克毅; 李赫咄; 李宣文. NaBr/KY催化剂在甲苯氧化甲基化反应中的稳定性[J]. 物理化学学报, 2002, 18(10): 916-919
6. 阎震; 寇元. 氧化条件下NO<sub>x</sub>催化的甲烷均相部分氧化[J]. 物理化学学报, 2002, 18(11): 1048-1051
7. 张现仁; 汪文川. 甲烷在中孔分子筛MCM-41中吸附的计算机模拟[J]. 物理化学学报, 2002, 18(08): 680-685
8. 季亚英; 李文钊; 徐恒泳; 陈燕馨. 用MS-PSR技术研究甲烷部分氧化反应的引发过程[J]. 物理化学学报, 2001, 17(03): 201-205
9. 唐晓萍; 王素凡; 高丽蓉; 王操; 孔繁敖. 甲烷在飞秒强激光场中的解离[J]. 物理化学学报, 2003, 19(07): 661-665
10. 曹达鹏; 汪文川; 沈志刚; 陈建峰. 超临界甲烷在纳米材料中最适吸附压力的确定 [J]. 物理化学学报, 2001, 17(10): 940-943
11. 纪敏; 毕颖丽; 甄开吉; 徐立羽华; 魏途. 利用Eu<sup>3+</sup>荧光特性研究CaO-La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>催化剂结构[J]. 物理化学学报, 1995, 11(02): 175-179
12. 熊国兴; 夏新瑞; 陈恒荣; 郭燮贤. NaCl和B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>在修饰FeO<sub>x</sub>催化剂中的协同作用[J]. 物理化学学报, 1994, 10(11): 971-977
13. 赵震; 远松月; 于作龙. 锂在甲烷氧化偶联多元氧化物催化剂中的作用[J]. 物理化学学报, 1994, 10(07): 616-622
14. 潘竟军; 韩布兴; 闫海科; 李芝芬; 刘瑞麟. 甲烷在水-叔丁醇混合溶剂中的溶解度[J]. 物理化学学报, 1994, 10(06): 501-507
15. 赵震; 远松月; 于作龙. 甲烷氧化偶联Ti-La-Li系混合氧化物催化剂[J]. 物理化学学报, 1994, 10(04): 324-329
16. 罗晓鸣; 韩巧凤; 陈懿; 韩世莹; 金通政; 睦霞霞. Na<sub>2</sub>SnO<sub>3</sub>系催化剂表面吸附氧的EPR研究[J]. 物理化学学报, 1993, 9(06): 746-751
17. 刘薇; 徐奕德; 李丽云; 胡红兵. <sup>27</sup>Al和<sup>29</sup>Si MAS-NMR对Mo/HZSM-5催化剂的研究[J]. 物理化学学报, 1997, 13(08): 693-699
18. 王达望; 马腾才; 崔锦华. 大气压旋转螺旋状电极辉光放电等离子体催化甲烷偶联[J]. 物理化学学报, 2005, 21(11): 1291-1294
19. 王操; 孔繁敖. 多原子分子在强飞秒激光场中的解离[J]. 物理化学学报, 2004, 20(08S): 1055-1062
20. 崔锦华; 许根慧; 刘昌俊. 新型多尖端旋转电极甲烷偶联等离子体反应器[J]. 物理化学学报, 2004, 20(05): 557-560
21. 李春义; 余长春; 沈师孔. Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>催化剂上甲烷部分氧化制合成气反应CO<sub>2</sub>主要来源[J]. 物理化学学报,

扩展功能

本文信息

PDF(506KB)

服务与反馈

把本文推荐给朋友

加入我的书架

加入引用管理器

引用本文

Email Alert

文章反馈

浏览反馈信息

本文关键词相关文章

▶ 甲烷

▶ 乙烷

▶ 乙烯

▶ 镍催化剂

▶ 金属-半导体相互作用

本文作者相关文章

▶ 杨咏来

▶ 徐恒泳

▶ 李文钊

22. 耿春宇; 丁丽颖; 韩清珍; 温浩. 气体分子对甲烷水合物稳定性的影响[J]. 物理化学学报, 2008,24(04): 595-600
23. 郭亮; 吴占松. 超临界条件下甲烷在纳米活性炭表面的吸附机理[J]. 物理化学学报, 2008,24(05): 737-742
24. 曾余瑶; 张秉坚. 金属-有机骨架材料MOF-5的改进与吸附甲烷的巨正则蒙特卡罗模拟[J]. 物理化学学报, 2008,24(08): 1493-1497
25. 陈来元; 徐竹生; 张涛; 李新生; 林励吾. 甲烷在Mo/HZSM-5催化剂上的脱氢聚合反应[J]. 物理化学学报, 1995,11(07): 601-606
26. 刘新华; 苗茵; 李晓丽; 盛世善.  $\text{La}_2\text{O}_3$ 对Ni/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 甲烷化催化剂的助催化作用[J]. 物理化学学报, 1995,11(08): 746-750
27. 曾金龙; 熊智涛; 林国栋; 于腊佳; 张鸿斌. 甲烷脱氢芳构化Mo/HZSM-5基催化剂表征[J]. 物理化学学报, 1998,14(05): 394-400
28. 樊晓伟; 周少杰; 张庆祥; 邓景康; 郑延友; 高乃飞; 陈学俊. 精确的甲烷分子价轨道的电子动量谱学研究[J]. 物理化学学报, 1998,14(06): 573-576
29. 刘彦方; 赵敏; 申世刚; 高俊刚. TBBPAER/DDM的固化反应动力学[J]. 物理化学学报, 1998,14(10): 927-931
30. 蒋政; 侯红霞; 郝郑平; 康守方; 李进军; 胡春. La促进型六铝酸盐 $\text{Ba}_{1-x}\text{La}_x\text{FeAl}_{11}\text{O}_{19-\delta}$ 催化甲烷燃烧性能[J]. 物理化学学报, 2004,20(11): 1313-1319
31. 李永昕; 郭玉华; 冀永强. M/(MgO) $_y$ (CeO $_2$ ) $_{1-y}$  (M=Ni、Co、Cu)催化剂的催化甲烷燃烧性能[J]. 物理化学学报, 2005,21(05): 468-473
32. 田宜灵; 肖衍繁; 朱红旭; 董习靖; 任晓文; 张凤才. 高温高压下水与非极性流体间的界面张力[J]. 物理化学学报, 1997,13(01): 89-95
33. 樊晓伟; 周少杰; 郑延友; 陈学俊. 甲烷分子价电子的能谱和动量谱[J]. 物理化学学报, 1996,12(12): 1106-1109
34. 褚衍来; 李树本; 龚华; 陈正石. Ni-Cu- $\text{Al}_2\text{O}_3$ 催化剂的活性相及作用机理[J]. 物理化学学报, 1996,12(05): 429-435
35. 曾凡桂; 贾建波. 霍林河褐煤热解甲烷生成反应类型及动力学的热重-质谱实验与量子化学计算[J]. 物理化学学报, 2009,25(06): 1117-1124
36. 徐军科; 李兆静; 汪吉辉; 周伟; 马建新. 甲烷干重整催化剂Ni/ $\text{Al}_2\text{O}_3$ 表面积炭表征与分析[J]. 物理化学学报, 2009,25(02): 253-260
37. 陈善俊; 戴伟; 罗江山; 唐永建; 王朝阳; 孙卫国. 甲烷在AFS型分子筛中的吸附模拟[J]. 物理化学学报, 2009,25(02): 285-290
38. 万丽华; 颜克凤; 李小森; 樊栓狮. 热力学抑制剂作用下甲烷水合物分解过程的分子动力学模拟[J]. 物理化学学报, 2009,25(03): 486-494
39. 张诺伟; 黄传敬; 匡飞平; 高晓晓; 翁维正; 万惠霖. Mg助剂对Co/Mg/HZSM-5催化剂结构及其催化甲烷部分氧化制合成气性能的影响[J]. 物理化学学报, 2008,24(12): 2165-2171
40. 肖利华; 孙鲲鹏; 徐贤伦. CeO $_2$ -MO $_x$  (M=La $^{3+}$ , Ca $^{2+}$ )改性Pd/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 催化甲烷燃烧性能[J]. 物理化学学报, 2008,24(11): 2108-2113
41. 马淳安; 王晓娟; 李国华; 李美超; 陈松. 硝基甲烷在离子液体BMI $\text{mBF}_4$ 中的电还原特性[J]. 物理化学学报, 2007,23(11): 1719-1722
42. 姜勇; 储伟; 江成发; 王耀红. Pd $_n$  (n=1-7)团簇及其与甲烷相互作用的密度泛函理论研究[J]. 物理化学学报, 2007,23(11): 1723-1727
43. 任秀彬; 李换英; 郭向云. 甲烷部分氧化反应过程中的振荡行为[J]. 物理化学学报, 2008,24(02): 197-200
44. 张涯远; 蒋政; 张世超; 朱庆山. La $_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{FeMn}_{1.5}\text{Al}_{9.5}\text{O}_{19-\delta}$ 六铝酸盐气溶胶催化剂的催化性能[J]. 物理化学学报, 2008,24(02): 211-216
45. 张晓菲; 胡瑞生; 高官俊; 孟和; 苏海全. 两种络合剂对Ce-Sn-O复合氧化物结构与性能的影响[J]. 物理化学学报, 2007,23(05): 659-663
46. 周健; 汪文川. Gibbs系综Monte Carlo模拟甲烷的吸附平衡[J]. 物理化学学报, 2001,17(08): 723-727
47. 崔锦华; 许根慧; 韩森. 等离子体甲烷偶联体系中纯氢气放电消除积炭 [J]. 物理化学学报, 2002,18(03): 276-278
48. 严前古; 罗春容; 翁维正; 杨乐夫; 万惠霖; 吴廷华. 甲烷在Ni/TiO $_2$ 催化剂表面的活化[J]. 物理化学学报, 2001,17(08): 733-738
49. 周长军; 朱月香; 谢有畅. 甲烷催化燃烧催化剂Ag/SnO $_2$ 体系的研究 [J]. 物理化学学报, 2001,17(09): 850-854
50. 李建昌; 宋延林; 薛增泉; 刘维敏; 江雷; 朱道本. 聚苯胺-TCNQ复合薄膜的微观结构与电学特性[J]. 物理化学学报, 2000,16(04): 289-293
51. 苏文悦; 付贤智; 魏可镁. SO $_4^{2-}$ 表面修饰对TiO $_2$ 结构及其光催化性能的影响[J]. 物理化学学报, 2001,17(01): 28-31
52. 朱爱民; 张秀玲; 宫为民; 张报安. 有氧气氛下等离子体甲烷偶联反应的研究[J]. 物理化学学报, 2000,16(09): 839-843
53. 陈宏善; 牛建中; 夏春谷; 李树本. 甲烷氧化偶联Na-W-Mn/SiO $_2$ 催化剂的喇曼光谱[J]. 物理化学学报, 2000,16(06): 543-546
54. 李建昌; 薛增泉; 张浩; 曾燕; 刘惟敏; 吴全德. 真空沉积TCNQ薄膜的手性分形结构[J]. 物理化学学报, 2000,16(07): 579-582
55. 金荣超; 陈燕馨; 崔巍; 李文钊; 于春英; 江义. 甲烷催化部分氧化制合成气的反应机理[J]. 物理化学学报, 1999,15

(04): 313-318

56. 金荣超;陈燕馨;李文钊;季亚英;秦永生;江义.甲烷部分氧化Ni催化剂及助剂的研究[J].物理化学学报,1998,14(08):737-741
57. 周长军;林伟;朱月香;谢有畅.氧化锡基甲烷催化燃烧催化剂的硫中毒反应机理[J].物理化学学报,2003,19(03):246-250
58. 朴玲钰;李永丹.气凝胶催化剂上甲烷裂解制备的碳纳米管结构特征[J].物理化学学报,2003,19(04):347-351
59. 侯思聪;刘凌涛;寇元.低温甲烷氧化偶联Li-ZnO/La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>催化剂[J].物理化学学报,2006,22(08):1040-1042
60. 杨达林;凌云;丁传凡;周游;朱起鹤.碘甲烷通过 $\tilde{A}$ 态和C态的多光子电离[J].物理化学学报,1993,9(04):442-446
61. 王江;甄开吉;魏谗;毕颖丽.ABO<sub>3</sub>型稀土铝酸盐的表面状态及其催化性能[J].物理化学学报,1992,8(02):247-250
62. 詹明生;周士康;储焰南;宋芳青;杨新;李方琳.F(<sup>2</sup>P)与CH<sub>2</sub>Br<sub>2</sub>反应的化学发光光谱及其动力学[J].物理化学学报,1992,8(02):274-278
63. 邵淑敏;席光康;王君容;李胜林;杨学柱;王金合;周志强;贺添喜;于宝霞.甲烷在Ni表面及La薄膜上激活解离化学吸附[J].物理化学学报,1992,8(06):767-771
64. 龚桦;姜永基;王贻;陈铭之;郑国康.某些Lewis碱与CCl<sub>4</sub>和CHCl<sub>3</sub>在298.15K的过量体积[J].物理化学学报,1991,7(01):49-56
65. 郭敬忠;顾月姝;刘传朴;李保中;印永嘉;蔡继业;曹德兆.He(2<sup>3</sup>S)与含氢卤代甲烷传能反应中产生的CH(A<sup>2</sup>Δ,v'=0)的新态转动分布[J].物理化学学报,1991,7(02):211-214
66. 曹晨忠;曾荣今.原子电负性和极化度对卤代甲烷C 1s电子电离能的影响[J].物理化学学报,2006,22(09):1085-1089
67. 余林;徐奕德;郭燮贤.红外光谱研究甲烷和氧与SrO-La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CaO表面的相互作用[J].物理化学学报,1995,11(10):902-906
68. 张昌华,张延,张嵩,张冰.氯碘甲烷在A带的光解动力学[J].物理化学学报,0,():0-0