

柠檬酸络合法制备 Ba 促进 ZrO_2 负载 Ru 催化剂上氨合成反应性能

林建新*, 王自庆, 张留明, 倪军, 王榕, 魏可镁

福州大学化肥催化剂国家工程研究中心, 福州 350002

LIN Jianxin*, WANG Ziqing, ZHANG Liuming, NI Jun, WANG Rong, WEI Kemei

National Engineering Research Center of Chemical Fertilizer Catalyst, Fuzhou University, Fuzhou 350002, Fujian, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (494KB) [HTML \(1KB\)](#) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

摘要 采用柠檬酸络合法制备了一系列不同含量 Ba 掺杂的 ZrO_2 , 再用浸渍法制备了 K-Ru/Ba-ZrO₂ 催化剂并将其用于氨合成反应。采用 X 射线衍射和 CO₂ 程序升温脱附技术考察了 Ba 含量对催化剂结构与性能的影响。结果表明, Ba 掺入 ZrO₂ 后形成的 BaZrO₃ 有助于其负载的 Ru 催化剂氨合成活性的显著提高。在 5.0 MPa, 10000 h⁻¹, 425 °C 时, Ru/Ba-ZrO₂ (Ba:Zr 摩尔比为 1:1) 催化剂活性最高, 出口氨浓度和反应速率分别达 9.24% 和 29.77 mmol/(g·h)。这主要归因于载体的强电子传导性能和碱性提高。

关键词: 钡 二氧化锆 钯 氨合成 电子作用

Abstract: Barium-promoted zirconia (Ba-ZrO_2) was synthesized by the citric acid method and used as supports for Ru/Ba-ZrO₂ catalysts, which were prepared by incipient wetness impregnation with K_2RuO_4 as precursor. The obtained Ba-ZrO₂ and catalysts were characterized by X-ray diffraction and CO₂ temperature-programmed desorption. The effect of Ba content on the structure and catalytic activity of K-Ru/Ba-ZrO₂ catalysts is discussed. The formation of BaZrO₃ can improve significantly the catalytic activity of Ru/Ba-ZrO₂ for ammonia synthesis. The ammonia concentration and rate of ammonia synthesis of the K-Ru/Ba-ZrO₂ catalyst (molar ratio of Ba:Zr is 1:1) were 9.24% and 29.77 mmol/(g·h), respectively, at 425 °C, 5.0 MPa, and 10000 h⁻¹. Improvements in electron conductivity and the basic nature of the catalyst may be the main reasons for such high catalytic activity in ammonia synthesis.

Keywords: barium, zirconia, ruthenium, ammonia synthesis, electronic conductivity

收稿日期: 2012-04-23; 出版日期: 2012-06-12

Service

- ▶ 把本文推荐给朋友
- ▶ 加入我的书架
- ▶ 加入引用管理器
- ▶ Email Alert
- ▶ RSS

作者相关文章

- ▶ 林建新
- ▶ 王自庆
- ▶ 张留明
- ▶ 倪军
- ▶ 王榕
- ▶ 魏可镁

引用本文:林建新, 王自庆, 张留明等. 柠檬酸络合法制备 Ba 促进 ZrO_2 负载 Ru 催化剂上氨合成反应性能[J] 催化学报, 2012,V33(7): 1075-1079

LIN Jian-Xin, WANG Zi-Qing, ZHANG Liu-Ming etc .Ammonia Synthesis over Ruthenium Catalysts using Barium-Doped Zirconia as Supports Prepared by Citric Acid Method[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012,V33(7): 1075-1079

链接本文:[http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067\(11\)60413-0](http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(11)60413-0) 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I7/1075>

- [1] Niwa Y, Aika K. J Catal, 1996, 162: 138
- [2] Rossetti I, Mangiarini F, Forni L. Appl Catal A, 2007, 323: 219
- [3] Lin B Y, Wang R, Lin J X, Du S W, Yu X J, Wei K M. Catal Commun, 2007, 8: 1838
- [4] Lin B Y, Wang R, Lin J X, Ni J, Wei K M. Catal Commun, 2011, 12: 553
- [5] 张新波, 李小年, 霍超, 岑亚青, 祝一峰, 刘化章. 催化学报 (Zhang X B, Li X N, Huo Ch, Cen Y Q, Zhu Y F, Liu H Zh. Chin J Catal), 2002, 23: 207
- [6] Luo X J, Wang R, Ni J, Lin J X, Lin B Y, Xu X M, Wei K M. Catal Lett, 2009, 133: 382
- [7] Zhang L M, Lin J X, Ni J, Wang R, Wei K M. Catal Com-mun, 2011, 15: 23
- [8] Tanabe K. Mater Chem Phys, 1985, 13: 347
- [9] Yin Sh F, Xu B Q, Wang Sh J, Au Ch K. Appl Catal A, 2006, 301: 202
- [10] Sun G L, Xu A H, He Y, Yang M, Du H Zh, Sun Ch L. J Hazard Mater, 2008, 156: 335
- [11] 刘仲毅, 孙海杰, 王栋斌, 郭伟, 周小莉, 刘寿长, 李中军. 催化学报 (Liu Zh Y, Sun H J, Wang D B, Guo W, Zhou X L, Liu Sh Ch, Li Zh J. Chin J Catal), 2010, 31: 150

- [12] 徐春凤, 欧阳亮, 张佳, 周斌, 李瑛, 刘化章. 催化学报 (Xu Ch F, Ouyang L, Zhang J, Zhou B, Li Y, Liu H Zh. Chin J Catal), 2010, 31: 677
- [13] Li X C, Wu M, Lai Zh H, He F. Appl Catal A, 2005, 290: 81 
- [14] Takeuchi K, Loong C K, Richardson J W Jr, Guan J, Dorris S E, Balachandran U. Solid State Ionics, 2000, 138: 63 
- [15] You Z X, Inazu K, Aika K, Baba T. J Catal, 2007, 251: 321 
- [16] Aika K, Tamaru K. In: Nielsen A Ed. Ammonia: Catalysis and Manufacture. Berlin: Springer-Verlag, 1995. 103 
- [17] Liang Ch H, Li Z L, Qiu J S, Li C. J Catal, 2002, 211: 278
- [18] 高伟洁, 郭静淑, 张洪波, 潘秀莲, 包信和. 催化学报 (Gao W J, Guo J Sh, Zhang H B, Pan X L, Bao X H. Chin J Catal), 2011, 32: 1418
- [19] Song Z, Cai T, Hanson J C, Rodriguez J A, Hrbek J. J Am Chem Soc, 2004, 126: 8576 
- [20] 杨晓龙, 唐立平, 夏春谷, 熊绪茂, 慕新元, 胡斌. 催化学报 (Yang X L, Tang L P, Xia Ch G, Xiong X M, Mu X Y, Hu B. Chin J Catal), 2012, 33: 447 
- [21] Sin A, E Montaser B, Odier P. J Sol-Gel Sci Technol, 2003, 26: 541 
- [22] 罗小军, 王榕, 林建新, 魏可镁. 催化学报 (Luo X J, Wang R, Lin J X, Wei K M. Chin J Catal), 2009, 30: 1125
- [23] Saito M, Itoh M, Iwamoto J, Li Ch Y, Machida K. Catal Lett, 2006, 106: 107 
- [1] 冯国全, 蓝国钧, 李瑛, 韩文锋, 刘化章. 硝酸水热处理活性炭对其负载的 Ba-Ru-K 氨合成催化剂性能的影响[J]. 催化学报, 2012, 33(7): 1191-1197
- [2] 秦瑞香, 王金波, 熊伟, 冯建, 刘德蓉, 陈华. 聚乙二醇 400-水介质中水溶性钉膦二胺催化苄叉丙酮的不对称加氢反应[J]. 催化学报, 2012, 33(7): 1146-1153
- [3] 刘爽, 丛昱, Charles KAPPENSTEIN, 张涛, Zr 掺杂对 $\text{La}(\text{Ba})\text{Zr}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_{3-\delta}$ 钙钛矿催化 N_2O 分解性能的影响[J]. 催化学报, 2012, 33(6): 907-913
- [4] 孙海杰, 潘雅洁, 王红霞, 董英英, 刘仲毅, 刘寿长. 二乙醇胺作添加剂 Ru-Zn 催化剂上苯选择加氢制环己烯[J]. 催化学报, 2012, 33(4): 610-620
- [5] 胡全红, 黎先财, 杨爱军, 杨春燕. $\text{BaTiO}_3\text{-BaAl}_2\text{O}_4\text{-Al}_2\text{O}_3$ 复合载体的制备、表征及其 Ni 基催化剂催化 CH_4/CO_2 重整反应性能[J]. 催化学报, 2012, 33(3): 563-569
- [6] 王自庆, 张留明, 林建新, 王榕, 魏可镁. 纳米材料负载钉催化剂的制备与应用[J]. 催化学报, 2012, 33(3): 377-388
- [7] 杨晓龙, 唐立平, 夏春谷, 熊绪茂, 慕新元, 胡斌. $\text{MgO}/\text{h-BN}$ 复合载体对 Ba-Ru/MgO/h-BN 氨合成催化剂性能的影响[J]. 催化学报, 2012, 33(3): 447-453
- [8] 林建新, 张留明, 王自庆, 王榕, 魏可镁. Pr 掺杂对 Ru/CeO₂ 催化剂结构和氨合成性能的影响[J]. 催化学报, 2012, 33(3): 536-542
- [9] 王伟鹏, 杨华, 县涛, 魏智强, 马金元, 李瑞山, 冯旺军. BaTiO_3 纳米颗粒的聚丙烯酰胺凝胶法合成及光催化降解甲基红性能[J]. 催化学报, 2012, 33(2): 354-359
- [10] 张燕杰, 詹瑛瑛, 曹彦宁, 陈崇启, 林性贻, 郑起. 以水热法合成的 ZrO_2 负载 Au 催化剂的低温水煤气变换反应[J]. 催化学报, 2012, 33(2): 230-236
- [11] 秦瑞香, 王金波, 熊伟, 刘德蓉, 冯建, 陈华. 聚乙二醇-水介质中水溶性膦稳定的钉催化芳香酮的不对称加氢反应[J]. 催化学报, 2011, 32(9): 1490-1495
- [12] 周功兵, 刘建良, 许可, 裴燕, 乔明华, 范康年. 载体焙烧温度对 Ru/MgAl₂O₄ 催化剂液相苯部分加氢性能的影响[J]. 催化学报, 2011, 32(9): 1537-1544
- [13] 冯建, 熊伟, 贾云, 王金波, 刘德蓉, 陈华, 李贤均. Ru/TiO₂ 催化剂上甘油氢解制 1,2-丙二醇[J]. 催化学报, 2011, 32(9): 1545-1549
- [14] 高伟洁, 郭淑静, 张洪波, 潘秀莲, 包信和. 氮掺杂碳纳米管对其负载的 Ru 催化剂上合成氨的促进作用[J]. 催化学报, 2011, 32(8): 1418-1423
- [15] 邱春天, 林涛, 张秋林, 徐海迪, 陈耀强, 龚茂初. 改性 $\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ 基整体式催化剂上 NH_3 选择性催化还原 NO[J]. 催化学报, 2011, 32(7): 1227-1233