

## Pr 掺杂对 Ru/CeO<sub>2</sub> 催化剂结构和氨合成性能的影响

林建新\*, 张留明, 王自庆, 王榕, 魏可镁

福州大学化肥催化剂国家工程研究中心, 福建福州 350002

LIN Jianxin\*, ZHANG Liuming, WANG Ziqing, 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 (931KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

**摘要** 采用氧化-还原共沉淀法制备了 Pr 掺杂的 Ru/CeO<sub>2</sub>-PrO<sub>2</sub> 氨合成催化剂, 并运用 N<sub>2</sub> 物理吸附、X 射线粉末衍射、H<sub>2</sub> 程序升温还原、CO 化学吸附、N<sub>2</sub> 程序升温脱附、场发射扫描电镜、高分辨透射电镜和 X 射线光电子能谱等技术对其进行了表征, 考察了 Pr 添加量对催化剂表面结构和性能的影响。结果表明, Pr 掺杂对 Ru/CeO<sub>2</sub> 催化剂的比表面积和 Ru 分散度都有所影响。当 CeO<sub>2</sub> 中 Pr 掺杂量为 4% 时, 在 425 °C, 10 MPa, 10000 h<sup>-1</sup> 的反应条件下, 氨合成转化频率可达到 12.13 × 10<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>, 较 Ru/CeO<sub>2</sub> 催化剂提高了 58%, 这主要归结于复合材料电子传导性能的提高。

**关键词:** 铈 二氧化铈 钕 负载型催化剂 氨合成 电子传递

**Abstract:** The Pr-doped ceria supported ruthenium catalyst Ru/CeO<sub>2</sub>-PrO<sub>2</sub> for ammonia synthesis was prepared by a redox co-precipitation method. The obtained catalyst samples were characterized by N<sub>2</sub> physisorption, X-ray diffraction, H<sub>2</sub> temperature-programmed reduction, CO chemisorption, temperature-programmed desorption of nitrogen, field-emission scanning electron microscopy, high resolution transmission electron microscopy, and X-ray photoelectron spectroscopy. The effects of Pr doping amount on the microstructure and catalytic properties of Ru/CeO<sub>2</sub>-PrO<sub>2</sub> were investigated. The results showed that the composite oxide created from Pr-doped ceria has some influence on the Ru dispersion and surface texture. The activity test showed that the ammonia synthesis transformation frequency over the Ru/CeO<sub>2</sub>-PrO<sub>2</sub> catalyst with 4% Pr was 12.13 × 10<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> at 10 MPa, 10000 h<sup>-1</sup>, and 425 °C, which was 58% higher than that of Ru/CeO<sub>2</sub>. The improvement of electrical conductivity performance is the key factor for the higher catalytic activity.

**Keywords:** praseodymium, ceria, ruthenium, supported catalyst, ammonia synthesis

收稿日期: 2011-09-26; 出版日期: 2011-12-06

引用本文:

林建新, 张留明, 王自庆等. Pr 掺杂对 Ru/CeO<sub>2</sub> 催化剂结构和氨合成性能的影响[J]. 催化学报, 2012, V33(3): 536-542

LIN Jian-Xin, ZHANG Liu-Ming, WANG Zi-Qing etc. Effects of Pr Doping on Structure and Catalytic Performance of Ru/CeO<sub>2</sub> Catalyst for Ammonia Synthesis[J]. Chinese Journal of Catalysis, 2012, V33(3): 536-542

链接本文:

http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2012.10949 或 http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I3/536

- [1] Lin H B, Lin J D, Cai Y, Wang X Y, Yi J, Wang J, Wei G, Lin Y Z, Liao D W. Appl Surf Sci, 2001, 180: 328 
- [2] Liang C, Wei Z, Xin Q, Li C. Appl Catal A, 2001, 208: 193 
- [3] Li Y Z, Xu B L, Fan Y N, Feng N Y, Qiu A D, He J M J, Yan H P, Chen Y. J Mol Catal A, 2004, 216: 107 
- [4] Liang H S, Inazu K, Aika Ki. Appl Catal A, 2001, 219: 235 
- [5] Lin B, Wang R, Lin J, Ni J, Wei K. Catal Commun, 2011, 12: 1452 
- [6] Lin B, Wang R, Lin J, Ni J, Wei K. Catal Commun, 2011, 12: 553 
- [7] Lin B, Wang R, Lin J, Ni J, Wei K. Catal Lett, 2011: 1
- [8] Liu Q C, Lin J D, Fu X Z, Liao D W. Catal Commun, 2008, 9: 1214 
- [9] Liu Q, Lin J, Li J, Fu X, Liang Y, Liao D. Catal Commun, 2007, 8: 1881 
- [10] 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
- [11] 罗小军, 王榕, 倪军, 林建新, 魏可镁. 化学学报 (Luo X J, Wang R, Ni J, Lin J X, Wei K M. Acta Chim Sin), 2009, 67: 2573

### 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
- ▶ 张留明
- ▶ 王自庆
- ▶ 王榕
- ▶ 魏可镁

- [12] Izumi Y, Iwata Y, Aika Ki. *J Phys Chem*, 1996, 100: 9421 [crossref](#)
- [13] Wang X, Ni J, Lin B, Wang R, Lin J, Wei K. *Catal Commun*, 2010, 12: 251 [crossref](#)
- [14] Saito M, Itoh M, Iwamoto J, Li C, Machida K. *Catal Lett*, 2006, 106: 107 [crossref](#)
- [15] Luo X J, Wang R, Ni J, Lin J X, Lin B Y, Xu X M, Wei K M. *Catal Lett*, 2009, 133: 382 [crossref](#)
- [16] Niwa Y, Aika K. *J Catal*, 1996, 162: 138 [crossref](#)
- [17] Niwa Y, Aika K. *Chem Lett*, 1996, 25: 3
- [18] Patil S, Seal S, Guo Y, Schulte A, Norwood J. *Appl Phys Lett*, 2006, 88: 243110 [crossref](#)
- [19] Zhang Q, Zhan Y, Lin X, Zheng Q. *Catal Lett*, 2007, 115: 143 [crossref](#)
- [20] 杨晓龙, 夏春谷, 熊绪茂, 慕新元, 胡斌. *催化学报* (Yang X L, Xia Ch G, Xiong X M, Mu X Y, Hu B. *Chin J Catal*), 2010, 31: 377 [crossref](#)
- [21] Zhang L, Lin J, Ni J, Wang R, Wei K. *Catal Commun*, 2011, 15: 23 [crossref](#)
- [22] Borchert H, Frolova Y V, Kaichev V V, Prosvirin I P, Alikina G M, Lukashevich A I, Zaikovskii V I, Moroz E M, Trukhan S N, Ivanov V P, Paukshtis E A, Bukhtiyarov V I, Sadykov V A. *J Phys Chem B*, 2005, 109: 5728 [crossref](#)
- [23] Matovic B, Boskovic S, Logar M, Radovic M, Dohcevic- Mitrovic Z, Popovic Z V, Aldinger F. *J Alloys Compd*, 2010, 505: 235 [crossref](#)
- [24] Kuru Y, Bishop S R, Kim J J, Yildiz B, Tuller H L. *Solid State Ionics*, 2011, 193: 1 [crossref](#)
- [25] Guo M, Lu J, Wu Y, Wang Y, Luo M. *Langmuir*, 2011, 27: 3872 [crossref](#)
- [26] Chun W, Graham G W, Lupescu J A, McCabe R W, Koranne M M, Brezny R. *Catal Lett*, 2006, 106: 95 [crossref](#)
- [27] Singh P, Hegde M S. *Chem Mater*, 2009, 21: 3337 [crossref](#)
- [28] 高伟洁, 郭淑静, 张洪波, 潘秀莲, 包信和. *催化学报* (Gao W J, Guo Sh J, Zhang H B, Pan X L, Bao X H. *Chin J Catal*), 2011, 32: 1418
- [29] You Z, Inazu K, Aika K i, Baba T. *J Catal*, 2007, 251: 321 [crossref](#)
- [30] Yang X, Zhang W, Xia C, Xiong X, Mu X, Hu B. *Catal Commun*, 2010, 11: 867 [crossref](#)
- [31] Hosokawa S, Kanai H, Utani K, Taniguchi Y, Saito Y, Imamura S. *Appl Catal B*, 2003, 45: 181 [crossref](#)
- [32] Caballero A, Holgado J P, Gonzalez-delaCruz V M, Habas S E, Herranz T, Salmeron M. *Chem Commun*, 2010, 46: 1097 [crossref](#)
- [33] Jacobsen C J H, Dahl S, Hansen P L, Tornqvist E, Jensen L, Topsoe H, Prip D V, Moenshaug P B, Chorkendorff I. *J Mol Catal A*, 2000, 163: 19 [crossref](#)
- [34] Liang C H, Li Z L, Qiu J S, Li C. *J Catal*, 2002, 211: 278
- [35] Shuk P, Greenblatt M. *Solid State Ionics*, 1999, 116: 217 [crossref](#)
- [36] Torrens R, Sammes N M, Tompsett G. *J Electroceram*, 2004, 13: 683 [crossref](#)

- [1] 赫巍, 何松波, 孙承林, 吴凯凯, 王连弟, 余正坤. 多相双金属 Pt-Sn/ $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  催化的胺 N-烷基化反应合成仲胺和叔胺[J]. *催化学报*, 2012,33(4): 717-722
- [2] 孙海杰, 潘雅洁, 王红霞, 董英英, 刘仲毅, 刘寿长. 乙二醇胺作添加剂 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
- [3] 施梅勤, 陈宁宇, 马淳安, 李璇, 魏爱平. 双功能 WC/HZSM-5 催化剂上正己烷芳构化反应性能[J]. *催化学报*, 2012,33(3): 570-575
- [4] 王自庆, 张留明, 林建新, 王榕, 魏可镁. 纳米材料负载钨催化剂的制备与应用[J]. *催化学报*, 2012,33(3): 377-388
- [5] 杨晓龙, 唐立平, 夏春谷, 熊绪茂, 慕新元, 胡斌. MgO/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
- [6] 张岩, 黄翠英, 王俊芳, 孙琪, 王长生. Ti/SiO<sub>2</sub> 催化 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 氧化苯甲醇制苯甲醛反应机理的理论研究[J]. *催化学报*, 2012,33(2): 360-366
- [7] 张元华, 陈世萍, 袁成龙, 方维平, 杨意泉. 焙烧温度对甲硫醇催化剂 K<sub>2</sub>WO<sub>4</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 结构和性能的影响[J]. *催化学报*, 2012,33(2): 317-322
- [8] 张燕杰, 詹瑛瑛, 曹彦宁, 陈崇启, 林性怡, 郑起. 以水热法合成的 ZrO<sub>2</sub> 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
- [9] 朱琳, 鲁继青, 谢冠群, 陈萍, 罗孟飞. 还原温度对 Ir/ZrO<sub>2</sub> 催化剂上巴豆醛选择性加氢的影响[J]. *催化学报*, 2012,33(2): 348-353
- [10] 冯建, 熊伟, 贾云, 王金波, 刘德蓉, 陈华, 李贤均. Ru/TiO<sub>2</sub> 催化剂上甘油氢解制 1,2-丙二醇[J]. *催化学报*, 2011,32(9): 1545-1549
- [11] 秦瑞香, 王金波, 熊伟, 刘德蓉, 冯建, 陈华. 聚乙二醇-水介质中水溶性磷稳定的钨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/MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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] 杨文, 储伟, 江成发\*, 文婕, 孙文晶. CeO<sub>2</sub> 助 Ni/MgO 催化剂用于化学气相沉积法制备多壁碳纳米管[J]. *催化学报*, 2011,32(8): 1323-1328
- [14] 高伟洁, 郭淑静, 张洪波, 潘秀莲a, 包信和b. 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] 李京京1, 刘兴海1,2, 石雷1,\* , 孙琪1, 周永刚2, 徐健峰2, 单作刚2, 王福冬2. 担载 CuO 基催化剂上 2,4-二氯酚的有效氧化降解[J]. *催化学报*, 2011,32(8): 1387-1392

