

# 焙烧气氛对 Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂上甲烷部分氧化制合成气反应性能的影响

郑好转<sup>1</sup>, 王梅柳<sup>1</sup>, 华卫琦<sup>2</sup>, 翁维正<sup>1</sup>, 伊晓东<sup>1</sup>, 黄传敬<sup>1</sup>, 万惠霖<sup>1</sup>

<sup>1</sup>厦门大学固体表面物理化学国家重点实验室, 醇醚酯化工清洁生产国家工程实验室, 化学化工学院化学系, 福建厦门 361005; <sup>2</sup>烟台万华聚氨酯股份有限公司, 山东烟台 264002

ZHENG Haozhuan<sup>1</sup>, WANG Meiliu<sup>1</sup>, HUA Weiqi<sup>2</sup>, WENG Weizheng<sup>1,\*</sup>, YI Xiaodong<sup>1</sup>, HUANG Chuanjing<sup>1</sup>, WAN Huilin<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>State Key Laboratory of Physical Chemistry of Solid Surfaces, National Engineering Laboratory for Green Chemical Productions of Alcohols, Ethers and Esters, Department of Chemistry, College of Chemistry and Chemical Engineering, Xiamen University, Xiamen 361005, Fujian, China; <sup>2</sup>Yantai Wanhua Polyurethanes Co., Ltd., Yantai 264002, Shandong, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (705KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

**摘要** 采用气相色谱、质谱和原位时间分辨红外光谱等技术对空气和 Ar 气氛中焙烧的 Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂样品上甲烷部分氧化 (POM) 制合成气反应进行了跟踪, 并采用化学吸附、X 射线衍射、拉曼光谱和 H<sub>2</sub>-程序升温还原等技术对催化剂进行了表征. 结果表明, 在 Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Air 上 POM 反应出现振荡现象, 而在 Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Ar 上则可较平稳地进行. 经 600 °C 还原后, Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Air 上 Ru 的分散度仅为 1%, 而 Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Ar 上接近 9%. 这是导致两种样品上 POM 反应性能差异的主要因素. 新鲜催化剂上存在两类 Ru 物种, 分别是与载体相互作用较弱、较易还原的 RuO<sub>2</sub> 物种以及与载体相互作用较强、较难还原的 Ru-O-Al 物种. 前者在 POM 反应过程中被还原为金属 Ru<sup>0</sup>, 后者则可随温度的升降发生周期性的还原和氧化, 进而改变催化剂对 CH<sub>4</sub> 燃烧、重整或部分氧化等反应的相对活性, 导致 Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Air 上 POM 反应尾气中各组分的浓度随时间而发生振荡.

**关键词:** 钌 氧化铝 焙烧气氛 甲烷 部分氧化 合成气 振荡

**Abstract:** The catalytic performance for partial oxidation of methane (POM) to syngas over the Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst calcined in air (Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Air) and Ar (Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Ar) was studied. Steady-state reactivity was observed on the Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Ar sample, whereas oscillations in CH<sub>4</sub>, CO, H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, and H<sub>2</sub>O were observed on the Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Air sample. Comparative studies using CO and O<sub>2</sub> chemisorption, X-ray diffraction, Raman, and temperature-programmed reduction (TPR) techniques were carried out in order to elucidate the property-structure relationship of the samples. The Ru dispersion on Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Air was only 1%, whereas that on Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Ar was about 9%. The significant difference in the Ru dispersion on the two samples is the major factor affecting the POM reaction. Two types of Ru species, RuO<sub>2</sub> species weakly interacting with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and the Ru-O-Al species strongly interacting with the support, were identified by H<sub>2</sub>-TPR experiments on the fresh catalyst. The former species could be easily reduced by H<sub>2</sub> (below 200 °C), while the latter can only be reduced by H<sub>2</sub> at above 700 °C. During the POM reaction at above 600 °C, the RuO<sub>2</sub> species were in the metal state, whereas the Ru-O-Al species could undergo cyclic redox transformation. Such transformation is responsible for the oscillation on Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Air sample.

**Keywords:** ruthenium, alumina, calcination atmosphere, methane, partial oxidation, syngas, oscillation

收稿日期: 2010-06-25; 出版日期: 2011-01-13

## 引用本文:

.焙烧气氛对 Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂上甲烷部分氧化制合成气反应性能的影响[J] 催化学报, 2011,V32(1): 93-99

.Effect of Calcination Atmospheres on the Performance of Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Catalyst for Partial Oxidation of Methane to Syngas[J] , 2011,V32(1): 93-99

## 链接本文:

http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2011.00643 或 http://www.chxb.cn/CN/Y2011/V32/I1/93

没有本文参考文献

- [1] 马兰<sup>1,2</sup>, 李宇明<sup>1</sup>, 贺德华<sup>1</sup>. Ru-Re/SiO<sub>2</sub> 催化剂上丙三醇氢解制丙二醇: 催化剂的酸性质与 Re 组分的作用[J]. 催化学报, 2011,32(5): 872-876
- [2] 张丽, 刘福东<sup>a</sup>, 余运波, 刘永春, 张长斌, 贺泓<sup>b</sup>. CeO<sub>2</sub> 添加对 Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂低温氨氧化性能的影响[J]. 催化学报, 2011,32(5): 727-735
- [3] 李秋荣<sup>1,2</sup>, 武金宝<sup>1</sup>, 郝吉明<sup>2</sup>. 低温等离子体处理对 NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 吸附 NO<sub>x</sub> 的促进作用[J]. 催化学报, 2011,32(4): 572-581
- [4] 杨晓<sup>1</sup>, 刘仕伟<sup>1</sup>, 解从霞<sup>2,\*</sup>, 于世涛<sup>1</sup>, 刘福胜<sup>1</sup>. 水促进的氯化钨催化 α-蒎烯加氢反应[J]. 催化学报, 2011,32(4): 643-646
- [5] 姚艳玲, 何胜楠, 史忠华, 龚茂初, 陈耀强. BaO 含量对 Ba 改性 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 及其负载的 Pt-Rh 密偶催化剂性能的影响[J]. 催化学报, 2011,32(3): 502-507
- [6] 赵景月, 邹秀晶, 汪学广, 刘合之, 李林, 鲁雄刚, 丁伟中. 低水碳比条件下 Ni/CeO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂上液化石油气的预重整[J]. 催化学报, 2011,32(3): 456-462
- [7] 倪军<sup>1</sup>, 王榕<sup>1</sup>, 孔繁华<sup>2</sup>, 张天釜<sup>2</sup>, 林建新<sup>1</sup>, 林炳裕<sup>1</sup>, 魏可镁<sup>1</sup>. Mg 促进的 Ru-Ba/AC 高效氨合成催化剂[J]. 催化学报, 2011,32(3): 436-439

## 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

- [8] 杨建华, 于素霞, 胡慧晔, 初乃波, 鲁金明, 殷德宏, 王金渠. 无第二模板剂法合成多级结构 ZSM-5 分子筛微球及其在甲烷无氧芳构化反应中的应用[J]. 催化学报, 2011,32(2): 362-367
- [9] 齐和日玛 1,3, 李会峰 2, 袁蕙 2, 张韞宏 1, 徐广通 2.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  性质对加氢脱硫催化剂  $\text{Co-Mo}/\text{Al}_2\text{O}_3$  活性相形成的影响[J]. 催化学报, 2011,32(2): 240-249
- [10] 聂仁峰, 王军华, 费金华, 侯昭胤, 郑小明. 介孔氧化铝的制备及其在甲醇脱水制二甲醚反应中的应用[J]. 催化学报, 2011,32(2): 379-384
- [11] 高志华, 黄伟, 阴丽华, 谢克昌. La 和 Mn 助剂对完全液相法制备的 CuZr 浆状催化剂结构和性能的影响[J]. 催化学报, 2011,32(2): 309-314
- [12] 孙海杰, 周小莉, 陈志浩, 郭伟, 刘仲毅, 刘寿长. 单层分散型 Ru-Zn 催化剂及其催化苯选择加氢制环己烯的性能[J]. 催化学报, 2011,32(2): 224-230
- [13] 霍超, 夏庆华, 潘美华, 杨霞珍, 骆燕, 刘化章. 柠檬酸改性对掺 Ba 纳米 MgO 及其负载的 Ru 氨合成催化剂性能的影响[J]. 催化学报, 2011,32(2): 315-320
- [14] 陈雪莹, 乔明华, 贺鹤勇. 载体对负载型 Ni-B 催化剂催化 2-乙基蒽醌加氢制  $\text{H}_2\text{O}_2$  反应性能的影响[J]. 催化学报, 2011,32(2): 325-332
- [15] 胡诗婧, 龙华丽, 徐艳, 尚书勇, 印永祥. 冷等离子体喷射流对甲烷二氧化碳重整用  $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  催化剂的还原机制[J]. 催化学报, 2011,32(2): 340-344