

红外光谱研究甲烷和氧与SrO-La₂O₃/CaO表面的相互作用

余林, 徐奕德, 郭燮贤

中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室, 大连 116023

摘要:

在甲烷氧化偶联(OCM)反应条件下,用原位红外光谱研究SrO-La₂O₃/CaO催化剂,结果表明,晶格氧使甲烷深度氧化。La₂O₃和CaO具有活泼的晶格氧, SrO的晶格氧比较稳定,气相氧通过补充催化剂表面消耗掉的晶格氧,加速了甲烷的深度氧化。另一方面,催化剂表面的碳酸根物种在氧气和LC催化剂中,催化剂表面La₂O₂(CO₃)的分解形成配位不饱和的晶格氧O₂⁻,并为气相氧吸附提供氧空穴。气相氧在氧空穴上吸附和配位不饱和晶格氧向吸附氧转移电荷,产生活性氧物种(可能为O₂⁻)。红外光谱能检测到波数为1118cm⁻¹的吸收峰。在CaO, SrO和SLC催化剂上,未能用F₂性氧物种,但有C₂产物生成,推测表面碳酸根分解可能直接产生活性氧物种(可能为O₂⁻)。

关键词: SrO-La₂O₃/CaO 原位红外光谱 甲烷氧化偶联 晶格氧 配位不饱和和晶格氧 活性氧物种 表面碳酸根物种

收稿日期 1994-11-19 修回日期 1995-03-15 网络版发布日期 1995-10-15

通讯作者: 徐奕德 Email:

本刊中的类似文章

1. 王必勋,伏义路,方书农. Cu-ZSM-5分子筛上[Cu-O-Cu]²⁺物种的原位红外光谱研究[J]. 物理化学学报, 1995,11(11): 974-978
2. 纪敏,毕颖丽,甄开吉,徐立羽华,魏途. 利用Eu³⁺荧光特性研究CaO-La₂O₃催化剂结构[J]. 物理化学学报, 1995,11(02): 175-179
3. 熊国兴,夏新瑞,陈恒荣,郭燮贤. NaCl和B₂O₃在修饰FeO_x催化剂中的协同作用[J]. 物理化学学报, 1994,10(11): 971-977
4. 郑瑜,谢伟文,张琳娜,傅桂香,俞璐,宋自莹. Na₃Fe(C₂O₄)₃·5H₂O的热解过程和FAB-MS断裂规律[J]. 物理化学学报, 1994,10(09): 774-778
5. 赵震,运松月,于作龙. 钨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
6. 罗晓鸣,韩巧凤,陈懿,韩世莹,金通政,睦云霞. Na₂SnO₃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
7. 李美超,吴海峰,胡佳琦,马淳安. 对硝基苯酚在酸性介质中的电化学还原反应机理[J]. 物理化学学报, 2008,24(10): 1937-1940
8. 金国杰,郭杨龙,刘晓晖,姚伟,郭耘,王筠松,袁芳,卢冠忠. Ag-MoO₃催化丙烯直接气相环氧化反应的原位红外研究[J]. 物理化学学报, 2006,22(07): 809-814
9. 陈宏善,牛建中,夏春谷,李树木. 甲烷氧化偶联Na-W-Mn/SiO₂催化剂的喇曼光谱[J]. 物理化学学报, 2000,16(06): 543-546
10. 李绪渊,张自萍,马建泰,朱宗楨,孟益民. 钙钛矿型La_{1-x/2}Sr_{1-x/2}Co_{1-x}Cu_xO₃催化CO氧化活性与表征[J]. 物理化学学报, 1996,12(06): 502-507
11. 侯思聪,刘凌涛,寇元. 低温甲烷氧化偶联Li-ZnO/La₂O₃催化剂[J]. 物理化学学报, 2006,22(08): 1040-1042
12. 王江,甄开吉,魏途,毕颖丽. ABO₃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