

# 复合氧化物载体对镍基催化剂上 CO 甲烷化反应性能的影响

张罕<sup>1</sup>, 董云芸<sup>2</sup>, 方维平<sup>2,a</sup>, 连奕新<sup>2,b</sup>

1 厦门大学化学化工学院化学工程与生物工程系, 福建厦门 361005; 2 厦门大学化学化工学院化学系, 醇醚酯化工清洁生产国家工程实验室, 福建厦门 361005

ZHANG Han<sup>1</sup>, DONG Yunyun<sup>2</sup>, FANG Weiping<sup>2,a</sup>, LIAN Yixin<sup>2,b</sup>

1Department of Chemical and Biochemical Engineering, College of Chemistry and Chemical Engineering, Xiamen University, Xiamen 361005, Fujian, China;

2Department of Chemistry, College of Chemistry and Chemical Engineering, National Engineering Laboratory for Green Chemical Productions of Alcohols-Ethers-Esters, Xiamen University, Xiamen 361005, Fujian, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (715KB) [HTML \(1KB\)](#) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

**摘要** 采用改良的粉末混合法制备了系列经过其它金属氧化物改性的 NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂, 并运用 X 射线衍射, 透射电子显微镜, N<sub>2</sub> 低温物理吸附-脱附, 程序升温还原, 程序升温脱附, 拉曼以及 X 射线光电子能谱对催化剂进行了表征。结果显示, 在 300~700 °C 经 MgO 修饰的 NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂上 CO 甲烷化反应活性比 NiO/ZrO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和 NiO/SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的高。另一金属氧化物的加入削弱了 NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂中 Ni-Al 间相互作用, 形成更多的活性 Ni 物种, 从而促进了反应的进行。

**关键词:** 一氧化碳 甲烷化 镍基催化剂 合成气 复合氧化物载体

**Abstract:** Metal-oxide-modified NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts for methanation of CO were prepared using a modified grinding-mixing method and characterized using X-ray diffraction, transmission electron microscopy, N<sub>2</sub> adsorption-desorption isotherms, temperature-programmed reduction by H<sub>2</sub>, temperature-programmed desorption by H<sub>2</sub>, Raman spectroscopy, and X-ray photoelectron spectroscopy. The results show that the activity of an MgO-modified NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst is better than those of NiO/ZrO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and NiO/SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the reaction temperature range 300~700 °C. The incorporation of a metal oxide into NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> was found to weaken Ni-Al interactions, leading to generation of large numbers of active Ni species, and this was confirmed to be responsible for the improvement in the performances of the catalysts in the methanation reaction.

**Keywords:** carbon monoxide, methanation, nickel-based catalyst, syngas, mixed oxide support

收稿日期: 2012-09-21; 出版日期: 2012-12-10

## 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

- ▶ 张罕
- ▶ 董云芸
- ▶ 方维平
- ▶ 连奕新

**引用本文:** 张罕, 董云芸, 方维平等 .复合氧化物载体对镍基催化剂上 CO 甲烷化反应性能的影响[J] 催化学报, 2013,V34(2): 330-335

ZHANG Han, DONG Yun-Yun, FANG Wei-Ping etc .Effects of composite oxide supports on catalytic performance of Ni-based catalysts for CO methanation[J] Chinese Journal of Catalysis, 2013,V34(2): 330-335

链接本文:

[http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067\(11\)60485-3](http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(11)60485-3) 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2013/V34/I2/330>

- [1] Kopyscinski J, Schildhauer T J, Biollaz S M. Fuel, 2010, 89: 1763
- [2] Wu R F, Wang Y Z, Gao C G, Zhao Y X. J Fuel Chem Technol, 2009, 37: 578
- [3] Turner J A. Science, 2004, 305: 972
- [4] Huffman G P. Fuel, 2011, 90: 2671
- [5] Zhao A, Ying W, Zhang H, Ma H, Fang D. Catal Commun, 2012, 17: 34
- [6] Liu Z, Chu B, Zhai X, Jin Y, Cheng Y. Fuel, 2012, 95: 599
- [7] Wang S H, Lee J, Hong U G, Jung J C, Koh D J, Lim H, Byun C, Song I K. J Ind Eng Chem, 2002, 18: 243
- [8] Takenaka S, Shimizu T, Otsuka K. Int J Hydrogen Energy, 2004, 29: 1065
- [9] Urasaki K, Endo K I, Takahiro T, Kikuchi R, Kojima T, Satokawa S. Top Catal, 2010, 53: 707
- [10] Galletti C, Specchia S, Specchia V. Chem Eng J, 2011, 167: 616
- [11] Bajusz J G, Kwik D J, Goodwin J G. Catal Lett, 1997, 48: 151

- [12] Kok E, Scott J, Cant N, Trimm D. Catal Today, 2011, 164: 297 
- [13] Kim S H, Nam S W, Lim T H, Lee H I. Appl Catal B, 2008, 81: 97 
- [14] Duan X, Qian G, Zhou X, Sui Z, Chen D, Yuan W. Appl Catal B, 2011, 101: 189 
- [15] Kelley R D, Candela G A, Madey T E, Newbury D E, Schehl R R. J Catal, 1983, 80: 235
- [16] Song H L, Yang J, Zhao J, Chou L J. Chin J Catal (宋焕玲, 杨建; 赵军; 丑凌军. 催化学报), 2010, 31: 21 浏览
- [17] Zhao A M, Ying W Z, Zhang H T, Ma H F, Fang D Y. J Nat Gas Chem, 2012, 21: 170 
- [18] Ma S L, Tan Y S, Han Y Z. J Nat Gas Chem, 2011, 20: 435
- [19] Wang J, Wang Y, Wen J, Shen M, Wang W. Microporous Mesoporous Mater, 2009, 121: 208 
- [20] Guo J, Lou H, Zhao H, Chai D, Zheng X. Appl Catal A, 2004, 273: 75 
- [21] Dietz R E, Parisot G I, Meixner A E. Phys Rev B, 1971, 4: 2302 
- [22] Aminzadeh A, Sarikhani-Fard H. Spectrochim Acta Part A, 1999, 55A: 1421
- [23] Mortensen A, Christensen D H, Nielsen O F, Pedersen E. J Raman Spectrosc, 1991, 22: 47 
- [24] Alstrup I. J Catal, 1995, 151: 216 
- [25] Yadav R, Rinker R G. Ind Eng Chem Res, 1992, 31: 502 
- [26] Dai X P, Yu C C. J Nat Gas Chem, 2008, 17: 365 
- [27] Cai M D, Wen J, Chu W, Cheng X Q, Li Z J. J Nat Gas Chem, 2011, 20: 318 
- [28] Seo J G, Youn M H, Song I K. J Mol Catal A, 2007, 268: 9 
- [29] Yang J, Wang X, Li L, Shen K, Lu X, Ding W. Appl Catal B, 2010, 96: 232 
- [30] Wang W Z, Liu Y K, Xu C K, Zheng C L, Wang G H. Chem Phys Lett, 2002, 362: 119 
- [31] Liu S L, Xiong G X, Yang W S, Xu L Y, Xiong G, Li C. Catal Lett, 1999, 63: 167 
- [32] Maluf S S, Assaf E M. Fuel, 2009, 88: 1547 
- [33] Guimon C, Auroux A, Romero E, Monzon A. Appl Catal A, 2003, 251: 199 
- [34] Ashok J, Raju G, Reddy P S, Subrahmanyam M, Venugopal A. Int J Hydrogen Energy, 2008, 33: 4809 
- [1] 仙存妮, 王少飞, 孙春文, 李泓, 陈晓惠, 陈立泉. Ni掺杂对纳米结构牡丹花状  $\text{CeO}_2$  材料催化特性的影响[J]. 催化学报, 2013, 34(2): 305-312
- [2] 陈国星, 李巧灵, 魏育才, 方维平, 杨意泉. 镍促进  $\text{CuO}-\text{CeO}_2$  催化剂的结构表征及低温 CO 氧化活性[J]. 催化学报, 2013, 34(2): 322-329
- [3] 余运波, 赵娇娇, 韩雪, 张燕, 秦秀波, 王宝义. 焙烧与预处理条件对  $\text{Co}_3\text{O}_4$  催化氧化 CO 性能的影响[J]. 催化学报, 2013, 34(2): 283-293
- [4] 瑶莫汗, 付晓娟, 雷艳秋, 苏海全. 介孔  $\text{Ni}-b-\text{Mo}_2\text{C}/\text{SBA}-16$  催化剂在  $\text{CH}_4/\text{CO}_2$  重整制合成气反应中的催化性能[J]. 催化学报, 2013, 34(2): 379-384
- [5] 许响生, 陈傲昂, 周莉, 李小青, 顾辉子, 严新煥. Ru-Fe/C 催化剂上邻氯硝基苯原位液相加氢性能[J]. 催化学报, 2013, 34(2): 391-396
- [6] 肖康, 鲍正洪, 齐行振, 王新星, 钟良枢, 房克功, 林明桂, 孙予罕. 合成气制混合醇双功能催化研究进展[J]. 催化学报, 2013, 34(1): 116-129
- [7] 李登峰, 单尚, 石利军, 郎睿, 夏春谷, 李福伟. 钷催化吲哚直接碳化合成吲哚-3-炔酮类化合物[J]. 催化学报, 2013, 34(1): 185-192
- [8] 刘瑞艳, 杨美华, 黄传敬, 翁维正, 万惠霖. 介孔  $\text{Co}-\text{Al}_2\text{O}_3$  催化剂上甲烷部分氧化制合成气[J]. 催化学报, 2013, 34(1): 146-151
- [9] 宗保宁, 孟祥堃, 慕旭宏, 张晓昕. 磁稳定床反应器[J]. 催化学报, 2013, 34(1): 61-68
- [10] 石川, 徐力, 朱爱民, 张玉卓, 区泽棠. 氧化铈稳定的 CuO 簇在 CO,  $\text{C}_3\text{H}_6$  和 NO 消除中的催化性能[J]. 催化学报, 2012, 33(9): 1455-1462
- [11] 闫少伟, 范辉, 梁川, 李忠, 于智慧. 二硝基甲苯低压加氢 Ni-La-B 非晶态合金催化剂的制备及结构表征[J]. 催化学报, 2012, 33(8): 1374-1382
- [12] 余强, 高飞, 董林. 铜基催化剂用于一氧化碳催化消除研究进展[J]. 催化学报, 2012, 33(8): 1245-1256
- [13] 曹昌燕, 窦智峰, 刘华, 宋卫国. 三维花状  $\text{Co}_3\text{O}_4$  的低成本制备及其在催化 CO 氧化中的应用[J]. 催化学报, 2012, 33(8): 1334-1339
- [14] 张慧丽, 任丽会, 陆安慧, 李文翠. Au/CeO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> 催化 CO 低温氧化反应过程中 CeO<sub>2</sub> 的作用[J]. 催化学报, 2012, 33(7): 1125-1132
- [15] 温在恭, 李虎, 翁维正, 夏文生, 黄传敬, 万惠霖. Rh/SiO<sub>2</sub> 催化剂上甲烷部分氧化制合成气的反应机理[J]. 催化学报, 2012, 33(7): 1183-1190