

碱土金属对锆基钙钛矿材料负载钌催化剂氨合成性能的影响

王自庆, 马运翠, 林建新, 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

WANG Ziqing, MA Yuncui, LIN Jianxin*, 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 (383KB) [HTML](#) (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) [Supporting Info](#)

摘要 采用柠檬酸络合法制备了含 Ca, Sr 和 Ba 的锆基钙钛矿材料, 负载 Ru 后用于催化氨合成反应; 研究了碱土金属对催化剂织构性能和载体材料表面碱性的影响, 并与催化剂活性相关联. 同时, 采用程序升温脱附技术对催化剂表面 H₂ 脱附性能进行了表征. 结果显示, 碱土金属对催化剂活性的促进顺序为 Ba > Sr > Ca. 研究发现, 不同锆基碱土金属钙钛矿材料表面均具有较强的碱性位, 碱土金属的加入影响了载体碱性强度以及金属-载体的相互作用, 其中 BaZrO₃ 可有效抑制 H₂ 的吸附. 因此, Ru/BaZrO₃ 催化剂表现出优异的氨合成活性.

关键词: 碱土金属 钙钛矿 锆 钌催化剂 氨合成

Abstract: Zirconium-based perovskite materials with different **alkaline earth metals** were synthesized by the citric acid method and used as supports for ruthenium catalysts to catalytic ammonia synthesis reaction. The effects of alkaline earth metals on the texture properties, basicity, and catalytic activity were discussed. Additionally, **the desorption** properties of H₂ on the surface of various catalysts were characterized by temperature-programmed desorption. The results showed that there were lots of strong basic sites appeared on the Ca, Sr, and Ba perovskite-style supports, and the order of activity was Ba > Sr > Ca. The addition of different alkaline earth metals not only affected the electron donating ability but also influenced the metal-support interaction as well as the adsorption-desorption properties of these catalysts. The adsorption of H₂ was inhibited significantly by the presence of BaZrO₃ and increased the number of active sites for dissociatively adsorbed N₂ which may be the major reason why the Ru/BaZrO₃ catalyst exhibited so high activity for ammonia synthesis.

Keywords: **alkaline earth metal**, **perovskite**, **zirconium**, **ruthenium catalysts**, **ammonia synthesis**

收稿日期: 2012-07-26; 出版日期: 2012-10-26






引用本文:

王自庆, 马运翠, 林建新等. 碱土金属对锆基钙钛矿材料负载钌催化剂氨合成性能的影响[J] 催化学报, 2013, V34(2): 361-366

WANG Zi-Qing, MA Yun-Cui, LIN Jian-Xin etc. Effect of Alkali Earth Metals on Performance of Zirconium-Based Perovskite Composite Oxides Supported Ruthenium for Ammonia Synthesis[J] Chinese Journal of Catalysis, 2013, V34(2): 361-366

链接本文:

<http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2012.20744> 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2013/V34/I2/361>

- [1] 王自庆, 张留明, 林建新, 王榕, 魏可镁. 催化学报(Wang Z Q, Zhang L M, Lin J X, Wang R, Wei K M. Chin J Catal), 2012, 33: 377
- [2] Luo X J, Wang R, Ni J, Lin J X, Lin B Y, Xu X J, Wei K M. Catal Lett, 2009, 133: 382 
- [3] Liang C, Wei Z, Xin Q, Li C. React Kinet Catal Lett, 2004, 83: 39 
- [4] Liang C, Li Z, Qiu J, Li C. J Catal, 2002, 211: 278
- [5] Aika K, Ohya A, Ozaki A, Inoue Y, Yasumori I. J Catal, 1985, 92: 305 
- [6] Cai Y, Lin J D, Chen H B, Zhang H B, Guo D L, Liao D W. Chin Chem Lett, 2000, 11: 373
- [7] Moggi P, Predieri G, Maione A. Catal Lett, 2002, 79: 7 
- [8] Aika K, Kawahara T, Murata S, Onishi T. Bull Chem Soc Jpn, 1990, 63: 1221 
- [9] 韩文锋, 霍超, 刘化章. 高校化学工程学报 (Han W F, Huo Ch, Liu H Zh. J Chem Eng Chin Univ), 2002, 16: 565
- [10] 杨晓龙, 唐立平, 夏春谷, 熊绪茂, 慕新元, 胡斌. 分子催化 (Yang X L, Tang L P, Xia Ch G, Xiong X M, Mu X Y, Hu B. J Mol Catal (China)), 2012, 26: 1

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

- ▶ [王自庆](#)
- ▶ [马运翠](#)
- ▶ [林建新](#)
- ▶ [王榕](#)
- ▶ [魏可镁](#)

- [11] 郑晓玲, 傅武俊, 俞裕斌, 张淑娟, 许交兴, 魏可镁. 燃料化学学报 (Zheng X L, Fu W J, Yu Y B, Zhang Sh J, Xu J X, Wei K M. J Fuel Chem Technol), 2003, 31: 86
- [12] 林建新, 张留明, 王自庆, 王榕, 魏可镁. 燃料化学学报 (Lin J X, Zhang L M, Wang Z Q, Wang R, Wei K M. J Fuel Chem Technol), 2012, 40: 848
- [13] Kowalczyk Z, Jodzis S, Raróg W, Zieliński J, Pielaszek J. Appl Catal A, 1998, 173: 153 [crossref](#)
- [14] Kowalczyk Z, Jodzis S, Raróg W, Zieliński J, Pielaszek J, Presz A. Appl Catal A, 1999, 184: 95 [crossref](#)
- [15] 林建新, 王自庆, 张留明, 倪军, 王榕, 魏可镁. 催化学报 (Lin J X, Wang Z Q, Zhang L M, Ni J, Wang R, Wei K M. Chin J Catal), 2012, 33: 1075 [crossref](#)
- [16] 钱逸泰. 结晶化学导论. 第 3 版. 合肥: 中国科学技术大学出版社 (Qian Y T. Introduction of Crystalline Chemistry. 3rd Ed. Hefei: University of Science and Technology of China Press), 2009. 249 [crossref](#)
- [17] Aika K, Shimazaki K, Hattori Y, Ohya A, Ohshima S, Shirota K, Ozaki A. J Catal, 1985, 92: 296 [crossref](#)
- [18] 朱月香, 庄伟, 江德恩, 谢有畅. 催化学报 (Zhu Y X, Zhuang W, Jiang D E, Xie Y Ch. Chin J Catal), 2000, 21: 52
- [19] Günter M M, Ressler T, Jentoft R E, Bems B. J Catal, 2001, 203: 133 [crossref](#)
- [20] Yue C, Qiu L, Trudeau M, Antonelli D. Inorg Chem, 2007, 46: 5084 [crossref](#)
- [21] Yang X L, Tang L P, Xia C G, Xiong X M, Mu X Y, Hu B. Catal Commun, 2010, 11: 867 [crossref](#)
- [22] 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 [crossref](#)
- [23] You Z, Inazu K, Aika K, Baba T. J Catal, 2007, 251: 321 [crossref](#)
- [24] Iwamoto J, Itoh M, Kajita Y, Saito M, Machida K. Catal Commun, 2007, 8: 941 [crossref](#)
- [25] Izumi Y, Iwata Y, Aika K. J Phys Chem, 1996, 100: 9421 [crossref](#)
- [26] Kadowaki Y, Aika K. J Catal, 1996, 161: 178 [crossref](#)
- [27] Lin B, Wang R, Lin J, Ni J, Wei K. Catal Lett, 2011, 141: 1557 [crossref](#)
- [28] Lin B, Wang R, Yu X, Lin J, Xie F, Wei K. Catal Lett, 2008, 124: 178 [crossref](#)
- [29] 林敬东, 廖代伟, 张鸿斌, 万惠霖, 蔡启瑞. 催化学报 (Lin J D, Liao D W, Zhang H B, Wan H L, Cai Q R. Chin J Catal), 2010, 31: 153 [crossref](#)
- [30] Muhler M, Rosowski F, Hinrichsen O, Hornung A, Ertl G. Stud Surf Sci Catal, 1996, 101: 317 [crossref](#)
- [31] Urabe K, Aika K, Ozaki A. J Catal, 1976, 42: 197 [crossref](#)
- [32] Dahl S, Törnqvist E, Chorkendorff I. J Catal, 2000, 192: 381 [crossref](#)
- [33] Dahl S, Sehested J, Jacobsen C J H, Törnqvist E, Chorkendorff I. J Catal, 2000, 192: 391 [crossref](#)
- [34] Wang X Y, Ni J, Lin B Y, Wang R, Lin J X, Wei K M. Catal Commun, 2010, 12: 251 [crossref](#)
- [35] Tauster S J, Fung S C, Baker R T K, Horsley J A. Science, 1981, 211: 1121 [crossref](#)
- [36] 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
- [37] Niwa Y, Aika K. J Catal, 1996, 162: 138 [crossref](#)
- [38] 林建新, 张留明, 王自庆, 王榕, 魏可镁. 催化学报 (Lin J X, Zhang L M, Wang Z Q, Wang R, Wei K M. Chin J Catal), 2012, 33: 536
- [39] Lezau A, Skadtchenko B, Trudeau M, Antonelli D. Dalton Trans, 2003: 4115 [crossref](#)
- [40] Yue Ch Y, Trudeau M, Antonelli D. Chem Commun, 2006: 1918

- [1] 张鸿鹏, 刘海超. Ce-Zr 复合氧化物负载 Au 纳米粒子催化甲醇氧化反应中的载体效应[J]. 催化学报, 2013,34(1): 235-242
- [2] 张元卓, 于兹瀛, 张富民, 肖强, 钟依均, 朱伟东. 纳米 Li_2ZrO_3 吸收剂原位移除 CO_2 强化水煤气变换反应制氢[J]. 催化学报, 2012,33(9): 1572-1577
- [3] 林建新, 王自庆, 张留明, 倪军, 王榕, 魏可镁. 柠檬酸络合法制备 Ba 促进 ZrO₂ 负载 Ru 催化剂上氨合成反应性能[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1075-1079
- [4] 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
- [5] 张晓静, 李华举, 李勇, 申文杰. Sr 取代 LaFeO₃ 钙钛矿的结构性质和催化性能[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1109-1114
- [6] 王兆宇, 李晓辉, 张跃, 石雷, 孙琪. 碱土金属氧化物对丙三醇和苯胺气相合成 3-甲基吡啶的 Cu/SiO₂-Al₂O₃ 催化剂的作用[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1139-1145
- [7] 刘爽, 丛昱, Charles KAPPENSTEIN, 张涛. Zr 掺杂对 La(Ba)Zr_xCo_{1-x}O_{3-δ} 钙钛矿催化 N₂O 分解性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(6): 907-913
- [8] 张波, 汤明慧, 袁剑, 吴磊. 负载型 ZrO₂ 催化苯甲醛 Meerwein-Ponndorf-Verley 反应中的载体效应[J]. 催化学报, 2012,33(6): 914-922
- [9] 杨铮铮, 陈永东, 赵明, 周菊发, 龚茂初, 陈耀强. 具有低 SO₂ 氧化活性的 Pt/Zr_xTi_{1-x}O₂ 柴油车氧化催化剂的制备及性能[J]. 催化学报, 2012,33(5): 819-826
- [10] 阮春晓, 陈崇启, 张燕杰, 林性贻, 詹瑛瑛, 郑起. 低温水煤气变换催化剂 Cu/ZrO₂ 的制备、表征与性能[J]. 催化学报, 2012,33(5): 842-849
- [11] 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
- [12] 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
- [13] 闫朝阳, 兰丽, 陈山虎, 赵明, 龚茂初, 陈耀强*. 高性能 Ce_{0.5}Zr_{0.5}O₂ 稀土储氧材料的制备及其负载的单 Pd 三效催化剂[J]. 催化学报, 2012,33(2): 336-341

朱琳, 鲁继青, 谢冠群, 陈萍, 罗孟飞. 还原温度对 Ir/ZrO₂ 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

[15] 张燕杰, 詹瑛琪, 曹彦宁, 陈崇启, 林性贻, 郑起. 以水热法合成的 ZrO₂ 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