

СО₂ РИФОРМИНГ МЕТАНА НА КАТАЛИЗАТОРАХ ИНТЕРМЕТАЛЛИДАХ, ПОЛУЧЕННЫХ МЕТОДОМ СВС

Аркатова Л.А.¹, Харламова Т.С.¹, Галактионова Л.В.¹, Курина Л.Н.¹,

Найбороденко Ю.С.², Касацкий Н.Г.², Голобоков Н.Н.²

¹Томский государственный университет

²Отдел структурной макрокинетики ТНЦ СО РАН

г. Томск, Россия, ala@inet.tsu.ru

CO₂ REFORMING OF METHANE OVER SHS-INTERMETALLIDES

Arkatova L.A.¹, Kharlamova T.S.¹, Galaktionova L.V.¹, Kurina L.N.¹,

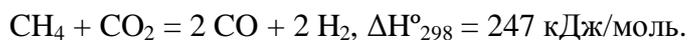
Naiborodenko Yu.S.², Kasatsky N.G.², Golobokov N.N.²

¹Tomsk State University

²Department of Structural Macrokinetics of the Tomsk Scientific Center of SB RAS

г. Томск, Россия

Переработка природного газа в моторные топлива в XXI веке становится одной из важнейших проблем нефте- и газохимии. Синтез диметилового эфира (ДМЭ) и бензина через ДМЭ – одно из новых направлений в этой области. Синтез ДМЭ вписывается в схему переработки природного газа как путь, альтернативный синтезу метанола. Главное преимущество диметилового эфира как дизельного топлива – экологически чистый выхлоп, кроме того, цетановое число ДМЭ составляет 55-60 против 40-45, а температура воспламенения 235 °С против 250 °С в сравнении с обычным дизельным топливом. Для производства ДМЭ в качестве первого этапа наиболее подходящим является получение синтез-газа (СО + Н₂) методом углекислотной конверсии метана (УКМ), вследствие того, что именно в данном процессе образуется эквимольная смесь СО и водорода:



В настоящее время для получения синтез-газа в промышленности реализован только процесс паровой конверсии метана. Однако, в последнее время все больший интерес исследователей привлекают пока еще нереализованные на практике процессы парциального окисления и углекислотной конверсии метана, так как они расширяют возможности эффективного использования природного газа.

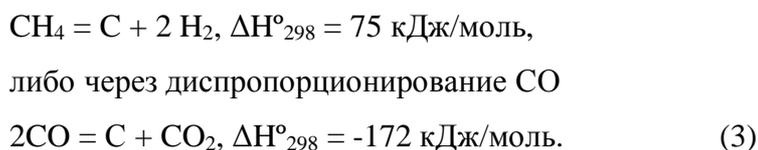
В представленной работе исследованы интерметаллиды переходных металлов (системы Ni-Al, Co-Al) в качестве контактных масс углекислотной конверсии метана. Впервые для синтеза катализаторов данного процесса применен метод самораспространяющегося высокотемпературного синтеза (СВС) как наиболее выгодный

способ организации синтеза с низкими энергозатратами, экспрессностью и высокой производительностью. Катализаторы данного типа отличаются термической стабильностью, механической прочностью и высокой теплопроводностью.

Высокую активность при температурах выше 1010 К проявила система на основе Ni_3Al . Интерметаллиды состава NiAl и Ni_2Al_3 - неактивны. Рентгенофазовый анализ образцов NiAl и Ni_2Al_3 и CoAl свидетельствовал об однофазности полученных систем и отсутствии каких-либо изменений в фазовом составе после проведения экспериментов УКМ. Ni_3Al , Co_xAl_y - многофазные системы, где наряду с фазами Ni_3Al и CoAl присутствовали фазы NiAl , металлического Ni и Co гексагонального и Co кубического, соответственно. После каталитических исследований фазовый состав данных систем изменился: кроме указанных фаз обнаружены фазы карбида никеля, кобальта и графитоподобного углерода.

Несмотря на достоинства изученных катализаторов – имеет место незначительное зауглероживание их поверхности.

Происхождение неактивного углерода может осуществляться либо через разложение метана:



Так как диспропорционирование CO является экзотермической реакцией, константа ее равновесия уменьшается с увеличением температуры, следовательно, в условиях высоких температур, в которых реализуется УКМ, одной из наиболее вероятных реакций образования углерода является крекинг метана (эндотермическая реакция). Углерод, образованный в ходе реакции УКМ наблюдается в нитевидной форме, а лимитирующей стадией для образования филаментарного углерода является

диффузия углерода через частицу металла. Движущей силой этого процесса является тепло, генерируемое экзотермическими поверхностными процессами (адсорбция CO и диспропорционирование) Таким образом, имеющиеся данные показывают, что образование углерода является зависимым от нескольких параметров, таких как: металл, структура металлического кристаллита, размеры ансамблей металла и др.