

**ТЕРМОДЕСОРБЦИОННОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СОСТОЯНИЯ ПОВЕРХНОСТИ
Ni-Fe КАТАЛИЗАТОРОВ РЕАКЦИИ МЕТАНИРОВАНИЯ CO₂**

Мешкинфар Р. С., Беда А. А., Дяченко А. Г., Ищенко Е. В.

Киевский национальный университет имени Тараса Шевченка

r.meshkinifar@gmail.com

Проведены исследования эффективности Ni-Fe катализаторов в реакции метанирования CO₂. Показано, что наиболее активные образцы находятся в диапазоне высоких концентраций Ni при которых, в условиях протекания реакции, сохраняется структура твердого раствора γ -FeNi₃. Анализ состояния поверхности методом термопрограммированной десорбционной масс-спектрометрии (ТПД МС) активного (Ni₈₀Fe₂₀) и неактивного (Ni₇₅Fe₂₅) образцов показал, что на Ni-Fe катализаторах процесс метанирования происходит по механизму прямого гидрогенирования CO₂ в метан. На рисунке приведены ТД профили CO, CO₂ и H₂O с поверхности этих образцов.

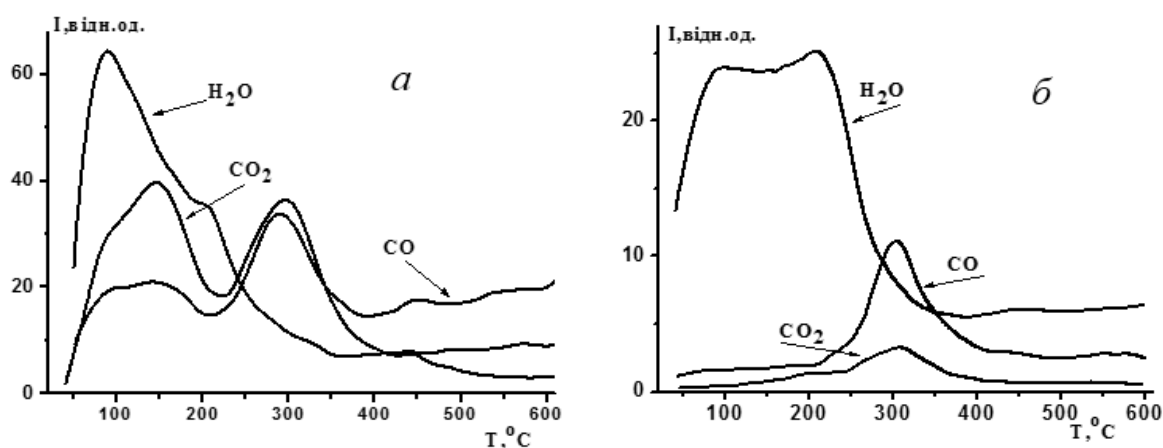


Рис. ТД спектры CO ($m/z = 28$), CO₂ ($m/z = 44$) и H₂O ($m/z = 18$) с поверхности образцов: Ni₈₀Fe₂₀ (а) та Ni₇₅Fe₂₅ (б)

ТД анализ поверхности исследуемых образцов Ni₈₀Fe₂₀ и Ni₇₅Fe₂₅ указывает на возможность протекания реакции по механизму с образованием адсорбированных на активных центрах атомов углерода и кислорода. На рисунке видно, что десорбционные пики CO и CO₂ имеют симметричный вид, а это значит, что их десорбция с поверхности катализаторов протекает по второму порядку. То есть на поверхности находятся в адсорбированном состоянии атомы С и О, которые в газовой фазе рекомбинируют в СО и СО₂ при десорбции с поверхности.

Поскольку на ТД спектрах не зафиксировано ни одного из возможных промежуточных соединений (CHO*, CH₂O*, CH*, CH₂*, CH₃*), можно предположить, что на Ni-Fe катализаторах процесс метанирования протекает по механизму с прямым гидрированием CO₂ в метан. То есть, CO₂ хемосорбируется на активном центре катализатора, находящегося на границе раздела фаз, с полной диссоциацией до С_{адс} и О_{адс}. После этого адсорбированный углерод реагирует с адсорбированным водородом или водородом из газовой фазы с последующей десорбцией основного продукта реакции, метана. В этом процессе лимитирующей является стадия диссоциации CO₂ на активном центре в С_{адс} и О_{адс}.

С другой стороны низкая активность образца Ni₇₅Fe₂₅ объясняется тем, что его поверхность заблокирована хемосорбированием СО, который тормозит процесс гидрирования CO₂. Об этом свидетельствуют данные ТД анализа поверхности катализаторов.