

## [研究快报]

## 低温催化裂解烷烃法制备碳纳米管\*

陈萍 王培峰 林国栋 张鸿斌 蔡启瑞

(厦门大学化学系, 固体表面物理化学国家重点实验室, 厦门, 361005)

关键词 碳纳米管, 催化裂解, 甲烷

碳纳米管的制备与研究是国际上新材料领域的探索热点<sup>[1]</sup>. 由于具有纳米级的管径, 碳纳米管的量子限域很明显, 其物理化学性质独特; 又由于其管壁结构类似于石墨, 并具有异常大的比表面, 因而亦具有作为功能材料的巨大潜力.

碳纳米管的实验室制备方法主要有两种: (1)通过烃类在 Fe、Co、Ni 等催化剂上裂解(最佳条件: 600℃, 乙炔在 Ni-Cu 合金上分解)<sup>[2,3]</sup>; (2)在碳上电弧放电制备<sup>[4]</sup>. 前者的产率高, 但含管状结构的产物比例不高, 管径不整齐, 形状较不规则; 后者产物管直, 结晶性好, 但产率低, 且分离纯化较为困难. 国内在此方面的研究开展较少, 且多采用高温(1000℃)热裂方法制备, 所得产物同样面临分离纯化问题. 本文采用特定方法制备的 Ni 催化剂可在较低温度(约 450℃)下裂解甲烷并生成管径比较均匀的纳米级管状碳纤维, 且纯化方法简单.

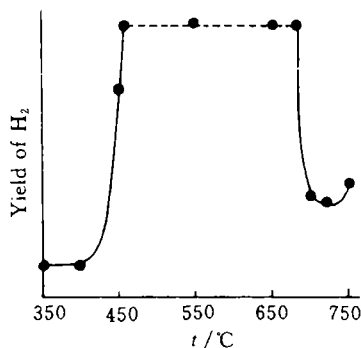
## 1 实验部分

1.1 催化剂制备 将一定量的 Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 与相应的载体依特定方法充分混合、烘干, 于 800℃、空气气氛中灼烧 5 h 制得相应的 Ni 催化剂.

1.2 碳纳米管的制备与表征 取少量催化剂, 于固定床常压连续流动反应器中 600℃、H<sub>2</sub> 气氛下预还原 0.5 h, 迅速转换到反应所需温度, 导入纯 CH<sub>4</sub> 气, 反应 0.5 h 后渐冷, 收集产品. 在 JEM-100CX 型透射电镜下观测所得产物, 最大放大倍率为 10 万倍. 程序升温反应中以 CH<sub>4</sub> 为载气, 升温速率 10℃/min.

## 2 结果与讨论

TPR 测试结果(图 1)表明: 在预还原催化剂上, 400℃时即可发生 CH<sub>4</sub> 裂解反应, 在 450~650℃范围内反应可持续进行, 但当温度升至~700℃时, 催化剂活性明显下降. 这可能是温度升至 700℃后, CH<sub>4</sub> 分解过快, 导致催化剂表面被无定形碳覆盖所致. 收集 400℃以上样品作 TEM 观测表明, 此催化剂上高于 450℃均生成具有明显管状结构的碳纤维(图 2), 当温度分别为 450、600、700℃时, 管状物外管径分别约为 14、17、24 nm, 即反应温度升高, 管径变大.

Fig. 1 TPR curve of CH<sub>4</sub> on Ni catalyst

收稿日期: 1995-05-29. 联系人: 张鸿斌. 第一作者: 陈萍, 女, 26岁, 博士研究生.

\* 国家自然科学基金资助课题.

