

Καταλυτική οξείδωση του CO παρουσία περοβσκιτικών οξειδίων LaMnO_3 ενισχυμένων με υποκαταστάτες Co^{2+} και Cu^{2+}

Νικόλαος Δ. Χαρισίου¹, Γιώργος Ι. Σιακαβέλας¹, Αναστάσιος Τσιότσιας¹, Χρήστος Γιώτας¹, Βασιλική Ρόβα¹, Ιωάννης Γεντεκάκης^{2*} και Μαρία Α. Γούλα^{1*}

¹Εργαστήριο Εναλλακτικών Καυσίμων και Περιβαλλοντικής Κατάλυσης (LAFEC), Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Δυτικής Μακεδονίας, 50100, Κοίλα, Κοζάνης

²Εργαστήριο Φυσικοχημείας & Χημικών Διεργασιών, Σχολής Χημικών Μηχανικών και Μηχανικών Περιβάλλοντος, Χανιά 73100, Ελλάδα

* mgoula@uowm.gr, * ygentek@isc.tuc.gr

Περίληψη

Η καταλυτική οξείδωση του CO παρουσιάζει πληθώρα εφαρμογών, όπως ο έλεγχος των αερίων της πετροχημικής βιομηχανίας και των εκπομπών των αυτοκινήτων. Ωστόσο, για την τήρηση των ολοένα και πιο αυστηρών περιβαλλοντικών κανονισμών, υπάρχει η απαίτηση για την ανάπτυξη νέων καινοτόμων καταλυτικών συστημάτων με αυξημένη δραστικότητα και σταθερότητα για την οξείδωση του CO. Από την άλλη, αποτελεί μια εκτενώς διερευνημένη αντίδραση ως «αντίδραση-μοντέλο» για μια πρώτη αξιολόγηση της δραστικότητας καινοτόμων καταλυτικών συστημάτων.

Τα περοβσκιτικά οξείδια τύπου ABO_3 που περιέχουν μέταλλα μετάπτωσης στη θέση B αναφέρονται ως αποτελεσματικοί καταλύτες για αντιδράσεις οξείδωσης. Επιπρόσθετα, η τροποποιημένη θέση A ή B με άλλα κατιόντα μπορεί να ενισχύσει τα φυσικοχημικά χαρακτηριστικά του καταλύτη, συμπεριλαμβανομένης της ηλεκτροχημικής οξειδοαναγωγής των B-κέντρων, της κινητικότητας του πλεγματού οξυγόνου και της ιοντικής αγωγιμότητας. Συνήθως, τα οξείδια των μετάλλων, όπως Mn, Co και Cu παρουσιάζουν υψηλές αποδόσεις καταλυτικής οξείδωσης. Συγκεκριμένα, τα υλικά με βάση το Mn θεωρούνται υποσχόμενα καταλυτικά συστήματα λόγω του χαμηλότερου κόστους συγκριτικά με τους καταλύτες ευγενών μετάλλων, της ενισχυμένης καταλυτικής δραστηριότητας και σταθερότητας και της φιλικότητας προς το περιβάλλον. Τα περοβσκιτικά υλικά τύπου LaMnO_3 παρουσιάζουν αξιολογημένη καταλυτική απόδοση και σταθερότητα σε πληθώρα διεργασιών που έχουν χρησιμοποιηθεί. Επιπρόσθετα, η υποκατάσταση ενός δισθενούς μετάλλου αλκαλικής γαίας (π.χ. Co^{2+} , Cu^{2+}) στην θέση A του LaMnO_3 θα μπορούσε να ενισχύσει την καταλυτική απόδοση είτε προάγοντας την οξειδωτική κατάσταση του Mn, είτε αυξάνοντας τον αριθμό των κενών θέσεων οξυγόνου.

Στην παρούσα εργασία μελετήθηκε η αντίδραση της οξείδωσης του CO παρουσία καταλυτών LaMnO_3 , $\text{LaMn}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{O}_3$ και $\text{LaMn}_{0.8}\text{Cu}_{0.2}\text{O}_3$, οι οποίοι παρασκευάστηκαν με την τεχνική λύματος πηκτής κιτρικού οξέος, και η καταλυτική τους δραστικότητα εξετάστηκε σε εύρος θερμοκρασιών μεταξύ 75 και 400°C ακολουθώντας διαφορετικά πρωτόκολλα ενεργοποίησης του καταλύτη. Τα δομικά χαρακτηριστικά και οι φυσικοχημικές ιδιότητες των καταλυτών μελετήθηκαν με πληθώρα τεχνικών χαρακτηρισμού, όπως: (α) Περίθλαση ακτίνων X (XRD), (β) Φασματοσκοπία Raman, (γ) Θερμοπρογραμματιζόμενη αναγωγή με H_2 (H_2 -TPR) και (δ) Προσρόφηση – εκρόφηση N_2 . Από τις μελέτες καταλυτικής δραστικότητας παρατηρήθηκε ότι οι τροποποιημένοι καταλύτες παρουσιάζουν ενισχυμένη καταλυτική δραστικότητα στις χαμηλότερες θερμοκρασίες αντίδρασης.

Ευχαριστίες

Η εργασία υλοποιήθηκε στα πλαίσια της Δράσης Εθνικής Εμβέλειας «Διμερής & Πολυμερής E&T Συνεργασία Ελλάδας-Κίνας» και συγχρηματοδοτήθηκε από την Ευρωπαϊκή Ένωση και από εθνικούς πόρους, ειδικότερα από το Ευρωπαϊκό Ταμείο Περιφερειακής Ανάπτυξης (ΕΤΠΑ), στο πλαίσιο του Επιχειρησιακού Προγράμματος ΕΠΑνεΚ 2014-2020 (Κωδικός Έργου: Τ7ΔΚΙ-00356).



ΕΛΛΗΝΙΚΗ ΔΗΜΟΚΡΑΤΙΑ



ανάπτυξη - εργασία - αλληλεγγύη