

Μερική υποκατάσταση του La από Sr σε περοβσκίτες $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ και η επίδρασή της στην καταλυτική οξειδωση του CO και του CH_4

Κ. Δρόσου^{1,*}, Θ. Γεωργακοπούλου¹, Σ. Φανουργιάκης¹, Γ. Αρτεμάκης¹, Ε. Νικολαράκη¹, Α. Στρατάκης², Χ. Ματσούκα^{3,4}, Α. Ναλμπαντιάν⁴, Β. Ζασπάλης^{3,4}, Ν. Χαρισίου⁵, Μ. Γούλα⁵,

Ι. Γεντεκάκης^{1,6,*}

¹ Σχολή Χημικών Μηχανικών και Μηχανικών Περιβάλλοντος, Πολυτεχνείο Κρήτης, Χανιά, Ελλάδα

² Σχολή Μηχανικών Ορυκτών Πόρων, Πολυτεχνείο Κρήτης, Χανιά, Ελλάδα

³ Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Αριστοτέλειο Πανεπιστήμιο Θεσσαλονίκης, 54124, Θεσσαλονίκη

⁴ Ινστιτούτο Χημικών Διεργασιών και Ενεργειακών Πόρων, ΙΔΕΠ/ΕΚΕΤΑ

⁵ Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Δυτικής Μακεδονίας, Κοζάνη, Ελλάδα

⁶ Ίδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας/Ινστιτούτο Γεωενέργειας (ΙΤΕ/ΙΓ), Χανιά, Κρήτη, Ελλάδα

* corresponding authors: yentek@chenveg.tuc.gr (Ι. Γεντεκάκης); edrosou@isc.tuc.gr (Κ. Δρόσου)

Περίληψη

Τα καυσαέρια των αυτοκινήτων, βενζινοκίνητων ή μεθανοκίνητων, τυπικά εμπεριέχουν CO και CH_4 ως αποτέλεσμα της ατελούς καύσης ή διαφυγής του καυσίμου αλλά και της διάσπασης των μεγάλων υδρογονανθρακικών μορίων σε μικρότερα. Οι καταλυτικοί μετατροπείς που χρησιμοποιούν τα αυτοκίνητα για την αντιμετώπιση των ρύπων τους είναι μεν αποτελεσματικοί στην αντιμετώπιση του CO αλλά όχι ιδιαίτερα του CH_4 λόγω της δύσκολης ενεργοποίησης του τελευταίου [1,2] στα καταλυτικά συστήματα ευγενών μετάλλων που εφαρμόζονται στους καταλυτικούς μετατροπείς. Οι περοβσκίτες, με γενικό τύπο ABO_3 , αποτελούν πολλά υποσχόμενα υλικά στις καταλυτικές οξειδώσεις και γενικότερα στην κατάλυση εξαιτίας των εξαιρετικών οξειδο-αναγωγικών ιδιοτήτων τους, της υψηλής κινητικότητας του οξυγόνου στο πλέγμα τους και της εξαιρετικής θερμικής και υδροθερμικής σταθερότητά τους [3,4,5]. Η ευελιξία που διαθέτουν ως υλικά να αντικαθιστούν τα κατιόντα της θέσης Α ή/και Β με άλλα κατιόντα ίδιου ή διαφορετικού σθένους (δηλ. $\text{A}_{1-x}\text{A}'_x\text{B}_{1-x}\text{B}'_x\text{O}_{3\pm\delta}$), τους δίνει τη δυνατότητα να δημιουργούν κενά οξυγόνου (oxygen vacancies) στην επιφάνειά τους και να μεταβάλλουν το σθένος των μετάλλων μετάπτωσης της Β-θέσης, τροποποιώντας κατά αυτόν τον τρόπο (α) τη κινητικότητα των ιόντων O^{2-} στο πλέγμα τους, (β) τις επιφανειακές οξειδοαναγωγικές τους ιδιότητες, βελτιώνοντας κατ' επέκταση την καταλυτική τους απόδοση [1, 3-5]. Στην παρούσα εργασία μελετήθηκε συγκριτικά η καταλυτική δραστηριότητα περοβσκιτικών υλικών του τύπου $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSM) που παρασκευάστηκαν με τη μέθοδο της συγκαταβύθισης ως προς την οξειδωση του CO και την πλήρη οξείδωση του CH_4 σε συνθήκες περίσσειας O_2 ώστε να διαφανεί η δυνατότητα χρήσης τέτοιων υλικών, μη-ευγενών μετάλλων στην τεχνολογία των καταλυτικών μετατροπέων, δεδομένου ότι η βιβλιογραφία έχει αποδείξει την καταλληλότητά τους σε αντιδράσεις αναγωγής των NO_x [4]. Συγκεκριμένα, μελετάται η επίδραση της μερικής σταδιακής αντικατάστασης της Α-θέσης του μαγγανίτη $\text{La}_{1-x}\text{A}'_x\text{MnO}_3$ (όπου $\text{A}'=\text{Sr}$ και $x=0, 0.3, 0.5$ και 0.7) στην δραστηριότητα και σταθερότητα των υλικών στις αντιδράσεις οξειδωσης του CO και πλήρη οξείδωση του μεθανίου. Προκειμένου να συσχετιστεί η δομή των περοβσκιτών με την ενεργότητά τους, χρησιμοποιήθηκαν διάφορες τεχνικές χαρακτηρισμού όπως BET, XRD και H_2 -TPR για την αξιολόγηση των φυσικοχημικών και χημικών ιδιοτήτων τους και εφαρμόστηκαν διάφορα πρωτόκολλα προ-επεξεργασίας τους, όπως (α) προ-αναγωγή (β) προ-οξείδωση και (γ) οξειδωτική γήρανση σε υψηλές θερμοκρασίες.

Αναφορές

- [1] Faye J., Baylet A., Trentesaux M., et al. *Appl. Catal. B* 126 (2012) 134-143.
- [2] Gao Y., Jiang M., Yang L., Li Z., Tian F.-X., He Y. *Front. Chem.* 10 (2022) 959422.
- [3] Zhu, W., Chen, X., Liu, Z., Liang, C. *J. Phys. Chem. C* 124 (2020) 14646-14657.
- [4] Yentekakis, I.V., Georgiadis, A.G., Drosou, C., Charisiou, N.D., Goula, M.A. *Nanomaterials* 12 (2022) 1042.
- [5] Royer, S., Duprez, D., Can, F., Courtois, X., et al. *Chem. Rev.* 114 (2014) 10292-10368.

Ευχαριστίες

Η εργασία υλοποιήθηκε στα πλαίσια της Δράσης Εθνικής Εμβέλειας «Διμερής & Πολυμερής Ε&Τ 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).

