

ΜΕΛΕΤΗ ΤΗΣ ΑΛΛΗΛΕΠΙΔΡΑΣΗΣ VOC ΚΑΙ O₂ ΣΕ ΚΑΤΑΛΥΤΕΣ Co₃O₄: Η ΠΕΡΙΠΤΩΣΗ ΤΗΣ ΠΛΗΡΟΥΣ ΟΞΕΙΔΩΣΗΣ ΤΟΥ ΒΟΥΤΑΝΙΟΥ

Π. Δημητρόπουλος^{1,2}, Μ. Σμυρνιώτη¹, Μ. Βασιλειάδης,³ Γ. Γεωργίου¹, Β. Δρακόπουλος¹, Α. Ευσταθίου³, Θ. Ιωαννίδης^{1*}

¹Ίδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας / Ινστιτούτο Επιστημών Χημικής Μηχανικής, Πάτρα

²Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Πατρών, Πάτρα

³Τμήμα Χημείας, Πανεπιστήμιο Κύπρου, Λευκωσία, Κύπρος

(*theo@iceht.forth.gr)

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Εισαγωγή: Η καταλυτική οξείδωση πτητικών οργανικών ενώσεων (VOCs) είναι μια από τις σημαντικότερες τεχνολογίες ελέγχου των αέριων εκπομπών από στατικές πηγές. Οξειδία μετάλλων μετάπτωσης, όπως το Co₃O₄, είναι ενεργοί καταλύτες οξείδωσης των VOCs αλλά ο μηχανισμός της αντίδρασης δεν έχει μελετηθεί ενδελεχώς. Είναι γενικά αποδεκτό ότι η αντίδραση πραγματοποιείται μέσω ενός οξειδοαναγωγικού μηχανισμού Mars-van Krevelen, όπου το VOC οξειδώνεται από πλεγματικό οξυγόνο με αποτέλεσμα τη μερική αναγωγή του καταλύτη, ο οποίος στη συνέχεια επανοξειδώνεται από το οξυγόνο της αέριας φάσης. Η παρούσα εργασία αποσκοπεί στη μελέτη της αλληλεπίδρασης του βουτανίου με τα διάφορα είδη επιφανειακού οξυγόνου-ροφημένο, πλεγματικό- της καταλυτικής επιφάνειας του Co₃O₄. Επιπροσθέτως, εξετάστηκε η ύπαρξη δομικής ευαισθησίας της αντίδρασης σε καταλύτες Co₃O₄, μεταβάλλοντας την ειδική επιφάνεια και το μέγεθος των κρυσταλλιτών των δειγμάτων.

Πειράματα/Μεθοδολογία: Καταλύτες Co₃O₄ παρασκευάστηκαν με διάφορες συνθετικές μεθόδους με σκοπό την παραλαβή δειγμάτων με διαφορετικές ειδικές επιφάνειες. Ακολούθησε φυσικοχημικός χαρακτηρισμός με φυσική ρόφηση N₂, SEM, p-XRD, XPS, H₂-TPR. Οι καταλύτες αξιολογήθηκαν στην αντίδραση πλήρους οξείδωσης του βουτανίου. Τέλος, η αλληλεπίδραση του VOC και του O₂ με την καταλυτική επιφάνεια εξετάστηκε μέσω δυναμικών πειραμάτων, ισοτοπικής εναλλαγής σε μόνιμη κατάσταση (SSITKA) και in situ-DRIFTS.

Συζήτηση αποτελεσμάτων: Όλοι οι καταλύτες έχουν δομή σπινελίου, με παρόμοιους επιφανειακούς λόγους Co²⁺/Co³⁺ και ειδική επιφάνεια στην περιοχή 1-100 m² g⁻¹. Η επιφανειακή συγκέντρωση των ενεργών θέσεων οξείδωσης για κάθε καταλύτη υπολογίστηκε από τα πειράματα TPSR χρησιμοποιώντας το βουτάνιο ως μόριο αναφοράς. Από τα προφίλ εκρόφησης παρατηρείται σημαντική ετερογένεια των ενεργών κέντρων οξείδωσης. Όσον αφορά τη συγκέντρωση των ενεργών θέσεων, αυτή είναι παρόμοια ανεξαρτήτως της ειδικής επιφάνειας των δειγμάτων. Οι καταλύτες υψηλότερης ειδικής επιφάνειας παρουσιάζουν υψηλότερους ρυθμούς οξείδωσης ανά μονάδα μάζας καταλύτη ωστόσο δεν διαφαίνεται σαφής τάση όσον αφορά τους ειδικούς ρυθμούς οξείδωσης (ανά m²). Από τα πειράματα μεταβατικής κατάστασης και ισοτοπικής εναλλαγής επιβεβαιώνεται η συμμετοχή του πλεγματικού οξυγόνου καθώς και ροφημένων ειδών οξυγόνου στην αντίδραση. Από τις μετρήσεις in-situ DRIFTS, βρέθηκε ότι στην επιφάνεια των καταλυτών όπου κυριαρχούν ανθρακικά είδη με διάφορους τρόπους πρόσδεσης.

ΛΕΞΕΙΣ ΚΛΕΙΔΙΑ: Co₃O₄, οξείδωση, πτητικές οργανικές ενώσεις, κατάλυση.

Το ερευνητικό έργο υποστηρίχθηκε από το Ελληνικό Ίδρυμα Έρευνας και Καινοτομίας (ΕΛ.ΙΔ.Ε.Κ.) στο πλαίσιο της Δράσης "1η Προκήρυξη ερευνητικών έργων ΕΛ.ΙΔ.Ε.Κ. για την ενίσχυση των μελών ΔΕΠ και Ερευνητών/τριών και την προμήθεια ερευνητικού εξοπλισμού μεγάλης αξίας» (Αριθμός έργου: 1876).