

ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΩΝ ΥΔΡΟΘΕΡΜΙΚΩΝ ΠΑΡΑΜΕΤΡΩΝ ΣΤΗΝ ΟΞΕΙΔΟΑΝΑΓΩΓΙΚΗ ΣΥΜΠΕΡΙΦΟΡΑ ΝΑΝΟΚΑΤΑΛΥΤΩΝ ΧΑΛΚΟΥ-ΔΗΜΗΤΡΙΟΥ ΓΙΑ ΤΗΝ ΕΚΛΕΚΤΙΚΗ ΟΞΕΙΔΩΣΗ ΤΟΥ CO

Κ. Καπλής¹, Γ. Παπαβασιλείου^{1,2,*}

¹Τμήμα Επιστήμης των Υλικών, Πανεπιστήμιο Πατρών, Πάτρα, Ελλάδα

²Ίδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας, Ινστιτούτο Επιστημών Χημικής Μηχανικής (ΙΤΕ/ΙΕΧΜΗ), Πάτρα, Ελλάδα

(*jpapav@iceht.forth.gr; ipapavas@upatras.gr)

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Η ολοένα αυξανόμενη ζήτηση για "καθαρή" ενέργεια έχει κατατάξει τις κυψελίδες καυσίμου πολυμερούς ηλεκτρολύτη (PEMFCs) ως ένα από τα αποδοτικότερα συστήματα παραγωγής ενέργειας, ειδικά για κινητές και εκτός δικτύου εφαρμογές. Ωστόσο, τα αέρια μίγματα πλούσια σε υδρογόνο (H₂-rich streams) τα οποία χρησιμοποιούνται ως καύσιμα στο συγκεκριμένο τύπο κυψελίδας καυσίμου περιέχουν ένα ποσοστό μονοξειδίου του άνθρακα (CO) ικανό να δηλητηριάσει τον ανοδικό ηλεκτροκαταλύτη. Επομένως, κρίνεται αναγκαία η προσθήκη ενός ακόμη σταδίου για τον καθαρισμό αέριων μιγμάτων υδρογόνου από το περιεχόμενο CO σε ποσοστά κάτω από 10 ppm. Ανάμεσα στις διάφορες μεθόδους καθαρισμού, η εκλεκτική οξείδωση του CO (Preferential Oxidation of CO, CO-PROX) θεωρείται ως η πιο αποτελεσματική.

Τα μικτά οξείδια χαλκού-δημητρίου (CuCeO_x) έχουν προταθεί ως αποδοτικοί καταλύτες για την εκλεκτική οξείδωση του CO, εμφανίζοντας ελκυστικά χαρακτηριστικά που έχουν να κάνουν με (α) την υψηλή ενεργότητα για τη μετατροπή του CO σε CO₂, (β) την εκλεκτικότητα σε σχέση με την ανεπιθύμητη οξείδωση του H₂, (γ) την ανθεκτικότητά τους στην παρουσία CO₂ και H₂O στην τροφοδοσία, (δ) τη σταθερότητά τους, (ε) το χαμηλό κόστος που παρουσιάζουν, σε σχέση με τους καταλύτες που στηρίζονται σε ευγενή μέταλλα. Η επίτευξη υψηλής ενεργότητας και εκλεκτικότητας επηρεάζεται από τις οξειδοαναγωγικές ιδιότητες αυτών των καταλυτών, την αλληλεπίδραση των υψηλά διασπαρμένων ενεργών ειδών χαλκού με τη νανοδομή της δημητριάς, την αναγωγιμότητά τους, καθώς και από την παρουσία μεγάλου αριθμού ατελειών οξυγόνου στη δημητρία. Σημαντικό ρόλο για την ενίσχυση αυτών των ιδιοτήτων που καθορίζουν την απόδοση των καταλυτών CuCeO_x φαίνεται να διαδραματίζει η μέθοδος παρασκευής και για αυτό το λόγο, πληθώρα μεθόδων έχει χρησιμοποιηθεί για την επίτευξη των παραπάνω χαρακτηριστικών. Ανάμεσα σε αυτές τις μεθόδους, η υδροθερμική μέθοδος θεωρείται ικανή για την παρασκευή νανοκαταλυτών χαλκού-δημητρίου με επιθυμητές ιδιότητες, μέσω του κατάλληλου συνδυασμού των υδροθερμικών παραμέτρων (π.χ. θερμοκρασία, χρόνος, συγκέντρωση).

Στην παρούσα εργασία εξετάστηκε η επίδραση των υδροθερμικών παραμέτρων στις οξειδοαναγωγικές και καταλυτικές ιδιότητες νανοϋλικών CuCeO_x. Οι καταλύτες παρασκευάστηκαν μέσω μιας τροποποιημένης υδροθερμικής μεθόδου και παράμετροι της μελέτης ήταν η συγκέντρωση του καυστικού νατρίου (NaOH) και η θερμοκρασία της υδροθερμικής κατεργασίας. Για το χαρακτηρισμό των καταλυτών χρησιμοποιήθηκαν: α) περίθλαση ακτίνων-X (XRD) και in-situ XRD, β) ρόφηση-εκρόφηση N₂, γ) φασματοσκοπία Raman, δ) φασματοσκοπία φωτοηλεκτρονίων ακτίνων-X (XPS) και ε) ηλεκτρονική μικροσκοπία σάρωσης (SEM). Σε κάθε περίπτωση εξετάστηκε η εκλεκτικότητα και η ενεργότητα των καταλυτών ως προς την εκλεκτική οξείδωση του CO. Τα αποτελέσματα έδειξαν ότι μέσω του κατάλληλου συνδυασμού των υδροθερμικών παραμέτρων, είναι εφικτή η παρασκευή νανοδομών CuCeO_x με αξιοσημείωτα φυσικοχημικά χαρακτηριστικά και υψηλή καταλυτική απόδοση.