

КРАТКАЯ АННОТАЦИЯ РАБОТЫ

«Исследование физико-химических аспектов увеличения активности нанесенных Pt/TiO₂ катализаторов в реакции окисления СО при модифицировании добавкой оксида железа»

Шутилов Алексей Александрович, Пахаруков Илья Юрьевич

Введение

Нанесенные Pt/TiO₂ катализаторы проявляют достаточно высокую каталитическую активность в реакциях низкотемпературного окисления СО. Кроме того, они активны в реакциях фотокаталитического окисления СО и целого ряда вредных органических веществ, таких как красители и пестициды [1,2].

В настоящее время в мире проводятся исследования по созданию все более эффективных катализаторов окисления СО. В частности, одним из направлений является создание нанесенных биметаллических катализаторов, содержащих Pt в сочетании с добавками таких элементов как железо, кобальт, никель.

Известно, что каталитические свойства нанесенных благородных металлов на оксидных носителях определяются взаимодействием нанесенного металла с носителем. При таком взаимодействии, как правило, формируется межфазная граница металл–носитель. Химическое взаимодействие в области межфазной границы является одним из факторов, которые определяют дисперсность и электронное состояние нанесенного металла и, следовательно, прочность связи компонентов реакционной смеси с катализатором. В нанесенных металлических катализаторах именно сильное взаимодействие Pt с носителем приводит к увеличению электронной плотности на атоме Pt, что изменяет хемосорбционные свойства Pt и способствует образованию слабо связанных комплексов Pt–СО и увеличению активности катализатора [1, 3–5].

Модифицирование наноструктуры диоксида титана позволяет регулировать взаимодействие платины с носителем. Можно предположить, что особенности нанокристаллического состояния диоксида титана определяют морфологию и электронное состояние нанесенных частиц платины и, следовательно, их каталитические свойства. Как было показано ранее [6], характер нанокристаллического состояния анатаза, можно регулировать путем модифицирования добавками различной химической природы. На основе ряда таких носителей уже были синтезированы катализаторы Pt/(CeO₂–TiO₂), Pd/(CeO₂–TiO₂), проявляющие высокую каталитическую активность в реакции окисления СО [7].

Цель работы

Целью данной работы является изучение влияния добавок оксида железа на наноструктуру, состояние платины и каталитические свойства нанесенных Pt/TiO₂ катализаторов в реакции окисления СО.

Основные задачи

- разработать новые Pt/TiO₂ катализаторы, модифицированные добавками оксида железа, с улучшенной каталитической активностью в реакции окисления СО;
- получить новые научные результаты мирового уровня по формированию микроструктуры диоксида титана, модифицированного оксидом железа;
- установить состояние платины в Pt,Fe/TiO₂ катализаторах в зависимости от содержания железа и его влияния на каталитические свойства в реакции окисления СО.

Предполагаемые подходы к решению задач (этапы исследований)

Для решения поставленных в проекте задач будут синтезированы наноструктурированные носители на основе TiO₂ анатазной модификации, модифицированные добавкой оксида железа. Методами рентгенофазового анализа, электронной микроскопии и РФЭС будет установлена их микроструктура и электронное состояние железа.

Полученный носитель будет использован для приготовления нанесенных Pt,Fe/TiO₂ катализаторов. Будут изучены особенности взаимодействия Pt с носителем в зависимости от содержания железа, установлено электронное состояние Pt и состояние O₂ в катализаторе. Изучено влияние состава и микроструктуры катализаторов на каталитические свойства, выявлены оптимальные составы катализаторов и методы их приготовления.

Этапы исследований:

Этап 1.

1. Синтез образцов носителей TiO₂, модифицированных оксидом железа, с нанокристаллической структурой анатаза и Pt,Fe/TiO₂ катализаторов на их основе по «способу 1».
2. Исследование каталитических свойств полученных катализаторов («серия 1») в реакции окисления СО.
3. Изучение влияния состава и микроструктуры катализаторов на каталитические свойства.

Этап 2.

1. Синтез образцов носителей TiO₂, модифицированных оксидом железа, с нанокристаллической структурой анатаза и Pt,Fe/TiO₂ катализаторов на их основе по «способу 2».
2. Исследование каталитических свойств полученных катализаторов («серия 2») в реакции окисления СО.

3. Изучение влияния состава и микроструктуры катализаторов на каталитические свойства.

4. Разработка рекомендаций по синтезу катализаторов оптимального состава с улучшенными каталитическими свойствами.

Имеющийся научный задел; экспериментальное оборудование

Имеется богатый опыт в синтезе наноструктурированных носителей на основе диоксида титана, модифицированных добавками различной природы (например, CeO_2). Нанесенные на носители такой природы платиновые и палладиевые катализаторы демонстрируют более высокую активность в реакции окисления CO, по сравнению с традиционными Pt/TiO₂ катализаторами [7]. В отношении катализаторов, заявленных в проекте, предварительно проведенные исследования показывают существенно более высокую каталитическую активность по сравнению с традиционными катализаторами. Однако физико-химические аспекты увеличения активности нанесенных Pt/TiO₂ катализаторов в реакции окисления CO при модифицировании добавкой оксида железа в литературе мало изучены.

Для решения поставленной в проекте задачи оборудование для синтеза и исследования катализаторов имеется в полном объеме. Для изучения микроструктуры носителей и катализаторов имеется электронный микроскоп высокого разрешения JEM-2010 (Япония) в сочетании с рентгеновским микроанализом, сканирующий электронный микроскоп JSM 6460-V (JEOL), дифрактометр Bruker (Германия). Для проведения текстурных исследований катализаторов имеется сорбтометр DigiSorb-2600 Micromeritics (США). Имеется проточно-циркуляционная установка VI-CATr(oxu) (Россия) для измерения каталитических свойств образцов в режиме полного смешения при термической и концентрационной безградиентности в слое катализатора и другое необходимое оборудование, имеющееся в Институте катализа.

Использованная литература

1. Alexeev O.S., Chin S.Y., Engelhard M.H., Ortiz-Soto L., Amiridis M.D. // J. Phys. Chem. B. 2005. V. 109. P. 23430.
2. Hwang S., Lee M.S., Choi W. // Appl. Catal. B. 2003. V. 46. P. 49.
3. Diebold U. // Surface Science Reports. 2003. V. 48. P. 53.
4. Harris P.J.F. // Int. Mater. Rev. 1995. V. 40. P. 97.
5. Abbet S., Heiz U., Yakkimen H., Landman U. // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. P. 5950.
6. Zenkovets G.A., Shutilov A.A., Gavrilov V.Yu., Tsybulya S.V., Kryukova G.N. // Kinet. Catal. 2007. V. 48. N 5. P. 742.
7. Shutilov A.A., Zenkovets G.A., Kryukova G.N., Gavrilov V. Yu., Boronin A.I., Tsybulya S.V. // Kinet. Catal. 2008. V. 49. N 2. P. 271.