

Különböző fémekkel módosított vegyes vas-oxid katalizátorok szintézise és karakterizálása CO₂ redukcióhoz

PITÓ Ádám^{1,*}, SZAMOSVÖLGYI Ákos¹, PAPP Ádám¹, BAÁN Kornélia¹, BÉLTEKI Péter¹, SÁPI András¹, SZENTI Imre^{1,2}, KUKOVECZ Ákos¹, KÓNYA Zoltán^{1,2}

¹Szegei Tudományegyetem, Alkalmazott és Környezeti Kémiai Tanszék, H-6720, Rerrich Béla tér 1, Szeged, Magyarország

²Szegei Tudományegyetem, HUN-REN-SZTE Reakciókinetika és Felületkémiai Kutatócsoport, H-6720, Szeged, Magyarország

*E-mail: pito.adam@chem.u-szeged.hu

Absztrakt

- Jelenkorunk nagy problémája az antropogén CO₂
- Kémiailag átalakítva nyersanyagként használható
- Lehetséges megoldás Fe₃O₄ prekursor, különböző fémekkel módosítva (K, Mg, Mn, Na, Zn)
- A különböző promóterek hatásának vizsgálata

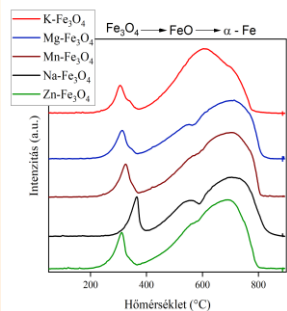
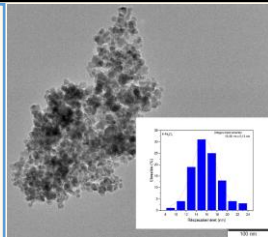
Szintézis

- Prekursor:
 - ✓ FeCl₂, FeCl₃
 - ✓ HCl oldat → reakcióközeg
 - ✓ NH₃ oldat → csapadék
 - ✓ Ar atmoszféra, 60 °C
- Promótálás:
 - ✓ Nitrát-só impregnálás
 - ✓ Szárítás, kalcinálás



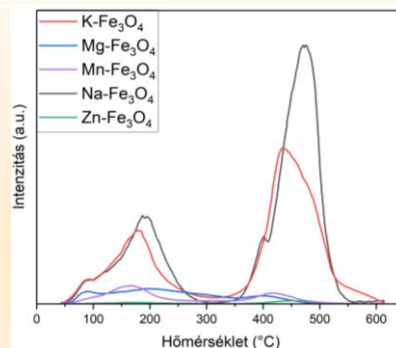
Karakterizálás

- TEM**
- Gömböserű
 - Aggregáció
 - 15,56-17,46 nm
- XRD**
- Kis eltérés a promóter hatására
 - Promóter nem detektálható



H₂-TPR

- Promóterek elősegítik a redukciót
- A K-Fe₃O₄ redukálódott legkisebb hőmérsékleten



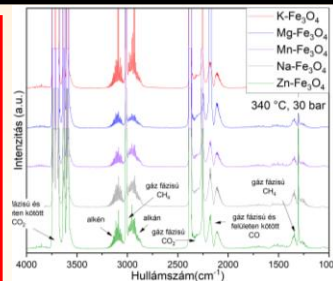
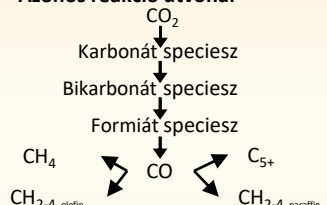
CO₂-TPD

- Jelentős eltérés promóter függvényében
- Na-, K-Fe₃O₄: legtöbb és legerősebb savas centrum

Katalitikus vizsgálat

In situ DRIFTS

Azonos reakció útvonal



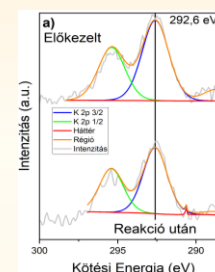
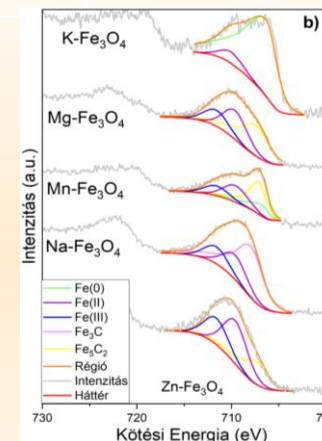
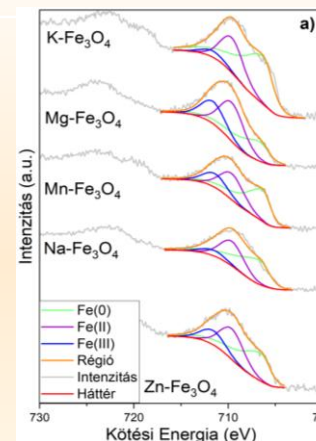
Catalyst	XCO ₂ (%)	SCO (%)	SCH (%)	Szénhidrogén eloszlás (%)			
				C ₁	C ₂ – C ₄ paraffin	C ₂ – C ₄ olefin	C ₅ +
K-Fe ₃ O ₄	40,03	15,30	84,71	15,85	42,63	4,92	36,61
Mg-Fe ₃ O ₄	35,17	5,97	94,04	36,93	6,05	39,81	17,23
Mn-Fe ₃ O ₄	30,39	9,47	90,54	24,01	24,00	25,99	26,03
Na-Fe ₃ O ₄	30,16	18,68	81,33	20,94	46,86	6,39	25,82
Zn-Fe ₃ O ₄	32,90	2,01	97,99	61,81	1,21	33,49	3,48

Gázromatográfia

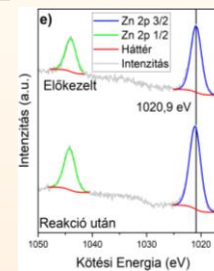
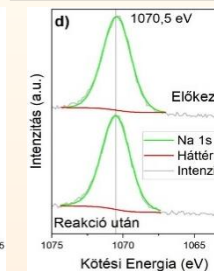
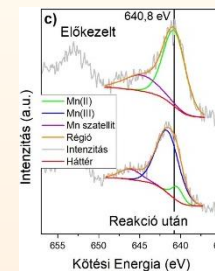
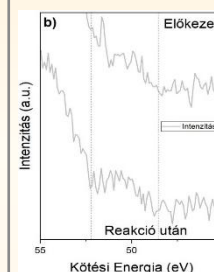
Előkezelés:
350 °C, H₂
Reakció:
340 °C, 30 bar,
CO₂:H₂ 1:3

„Kvázi” In situ XPS

	Felületi atom %	Fe(II)	Fe(III)	Fe(0)	Fe Karbid
K-Fe ₃ O ₄	Előkezelés	29,04	5,17	65,79	-
	Reakció után	7,75	-	92,25	-
Mg-Fe ₃ O ₄	Előkezelés	42,16	23,98	33,86	-
	Reakció után	32,66	18,14	-	49,20
Mn-Fe ₃ O ₄	Előkezelés	33,09	17,38	49,53	-
	Reakció után	24,99	14,88	16,32	43,81
Na-Fe ₃ O ₄	Előkezelés	35,49	8,16	56,35	-
	Reakció után	21,65	15,02	-	63,34
Zn-Fe ₃ O ₄	Előkezelés	35,14	16,35	48,51	-
	Reakció után	43,55	26,67	-	29,78



„Kvázi” in situ XPS
A felületi vas specieszek aránya nagyban változik reakciót követően. A promóterek kis mértékben változtak, amely arra enged következtetni, hogy nem vesznek részt közvetlen a reakcióban, hanem SMSI keretein belül segítik a CO₂ konverziót (kivéve a Mn).



Összegzés

A vizsgált katalizátorok (K-, Mg-, Mn-, Na-, Zn-Fe₃O₄) eltérő mutattak CO₂ redukciós reakció során. Mérések alapján elmondható, hogy mindegyik promóter más-más módon befolyásolja a szelektivitást és konverziót. Legmagasabb konverziót és hasznos termék szelektivitást (C₅+) a K-Fe₃O₄ katalizátor produkta, köszönhetően magas és erősen kötő savas centrumainak, illetve a kálium a vas-oxiddal való „SMSI” kölcsönhatás révén.

Köszönetnyilvánítás:

A Megújuló Energiák Nemzeti Laboratórium című, RRF-2.3.1-21-2022-00009 számú projekt a Recovery and Resilience Facility of the European Union támogatásával valósult meg, a Széchenyi Terv Plusz keretein belül.
A szerzők köszönetet mondanak a 2021-1.2.6-TÉT-IPARI-MA-2022-00009 jelű pályázatnak, melyet a Nemzeti Kutatási és Innovációs Hivatal tett lehetővé.