

Povzetek

V doktorski nalogi predstavljamo dve področji uporabe katalizatorjev na osnovi ZnO. Prvo področje zajema pripravo modificiranih materialov na osnovi ZnO, ki so se izkazali kot učinkoviti fotokatalizatorji, saj imajo fotoelektrokemijsko sposobnost razklopa H₂O. Drugi del doktorske naloge zajema pripravo modificiranih Cu-Zn oksidnih katalitskih materialov za reakcijo razklopa NH₃. Lastnosti sintetiziranih fotokatalizatorjev in katalizatorjev smo raziskovali s spektroskopskimi in mikroskopskimi metodami, fotokatalitske oz. katalitske aktivnosti pa smo nato preverili s fotokatalitskim oz. katalitskim testom. Zanimala nas je predvsem razlika v aktivnostih med nemodificiranimi ter modificiranimi fotokatalizatorji oz. katalizatorji ter stabilnosti pripravljenih fotokatalitskih oz. katalitskih materialov.

Prvi del raziskovalnega dela se nanaša na pripravo modificiranih fotokatalitskih materialov ZnO z grafitiziranimi ogljikovimi strukturami, ki vključujejo dušik (v nadaljevanju g-C_xN_y). Pripravljeni fotokatalizatorji so aktivni za proizvodnjo O₂ s fotoelektrokemijskim razklopom H₂O. Fotoelektrokemijske celice oz. fotokatalizatorji, modificirani z metodo potapljanja v vodne disperzije prekursorja CM-kompleksa (CM – cianurna kislina–melamin), kažejo najvišje fotoelektrokemijske aktivnosti za proizvodnjo O₂. Tako pripravljene materiali ohranjajo porozno strukturo, ki med fotoelektrokemijskim testiranjem omogoča penetracijo elektrolita ter dotok simulirane sončne svetlobe do aktivnih mest na površini fotokatalizatorjev. Vzorec, sintetiziran z metodo potresanja CM-kompleksa, kaže najnižjo fotoelektrokemijsko aktivnost, ki je precej nižja od fotoelektrokemijske aktivnosti nemodificiranega ZnO, ki ima morfologijo nanožičk. Slednje je posledica dejstva, da prekomerna plast g-C_xN_y blokira možnost vstopa elektrolita ter simulirane sončne svetlobe v medprostore med nanožičkami ZnO. S podrobno fotoelektrokemijsko karakterizacijo je bilo ugotovljeno, da ima sloj g-C_xN_y sposobnost učinkovite ekstrakcije elektronskih vrzeli, ki so dejansko aktivna mesta za proces oksidacije H₂O. Posledično to vodi do velike izboljšave v fotoelektrokemijski aktivnosti oksidacije H₂O. Relativno na fotokatalizator ZnO brez nanosa g-C_xN_y ima modificirani vzorec ZnO z optimalnim nanosom sloja g-C_xN_y, ki je sintetiziran z metodo potapljanja, kar 3,5-krat večjo gostoto toka pri potencialu 1,23 V, merjenem glede na reverzibilno vodikovo elektrodo (RHE; angl. Reversible Hydrogen Electrode). S tem se izboljša tudi stabilnost fotokatalizatorja v močno alkalni raztopini.

V drugem delu raziskave se osredotočamo na pripravo Cu-Zn oksidnih katalizatorjev, sintetiziranih po sol-gel postopku. Katalizatorji so nadalje modificirani z Al₂O₃ na dva načina (s sol-gel metodo ter z metodo mokre impregnacije). Tovrstni katalizatorji so bili testirani za proces razklopa NH₃ ter proizvodnjo H₂ visoke čistote z namenom priprave goriva za gorivne celice. Katalizatorja, pripravljena s tehniko mokre impregnacije, ki vsebujeta nosilec γ -Al₂O₃, imata na površini boljše disperzijo baker vsebujočih zvrsti v primerjavi s katalizatorji brez nosilca Al₂O₃. Analiza slik z vrstično elektronsko mikroskopijo (SEM) na omenjenih katalizatorjih kaže na enakomerno porazdelitev delcev zvrsti Cu in ZnO ter podobno morfologijo med katalizatorji ne glede na razmerje Cu/Zn. Katalizatorja, pripravljena z metodo mokre impregnacije, imata boljši katalitski aktivnosti v primerjavi s katalizatorjema, pripravljenima z modificirano sol-gel metodo. Slednje lahko pripišemo vsebnosti nanodelcev Cu^o na površini katalizatorjev ter sinergijskemu vplivu mezoporoznega nosilca γ -Al₂O₃. Ta pomaga pri porazdelitvi aktivnih mest na površini katalizatorjev ter znatno poveča njihovo specifično površino.

Ključne besede: ZnO, katalizator, proizvodnja O₂, proizvodnja H₂, aktivnost

