

Povzetek

Lahkohlapne organske spojine (Volatile Organic Compounds - VOC), se v ozračje izločajo predvsem iz industrijskih procesov, prometa ter potrošniških produktov. VOC predstavljajo skupino primarnih onesnažil v zraku, ki pa vplivajo tudi na nastanek ozona v nižjih zračnih plasteh. Za odstranjevanje VOC iz stacionarnih virov se med drugim uporabljata tudi termični (500-800 °C) in katalitski postopek (sobna temperatura - 500 °C). Pri slednjem sta najbolj pogosta tipa katalizatorjev na osnovi žlahtnih kovin, kot so zlato, srebro, paladij in na osnovi oksidov ostalih prehodnih kovin. Katalitska aktivnost žlahtnih kovin je večja pri nižjih temperaturah (150-280 °C) v primerjavi z oksidi prehodnih kovin (280-450 °C), kar posledično vodi k nižjimi obratovalnim stroškom. Kljub temu pa njihove pomanjkljivosti, kot so cena, dostopnost, geografska razširjenost in nagnjenost k zastrupitvi, vodijo v hitro razvijajoče se področje razvoja katalizatorjev na osnovi prehodnih kovin in njihovih oksidov, katerih aktivnost bi se približala temperaturnemu razponu aktivnosti katalizatorjev z žlahtnimi kovinami. V doktorskem delu sem se osredotočil na proučevanje in razvoj kompozitnih katalizatorjev na osnovi bakrovega in železovega oksida na silikatnem in aluminatnem nosilcu in njihovo aktivnost pri oksidaciji toluena kot modelne VOC spojine.

Ugotovil sem, da je za aktivnost Cu-Fe kompozitnega katalizatorja na silikatnem nosilcu zelo pomembno razmerje med obema aktivnima zvrstema, saj lahko v specifičnem molskem razmerju Cu/Fe pride do sinergije in s tem izboljšanja katalitske aktivnosti. V nadaljevanju sem opažen učinek želel doseči na cenovno ugodnejšem in zato aplikativno zanimivejšem aluminatnem nosilcu, pri čemer sem se najprej osredotočil na lastnosti in izvor slednjega. Ugotovil sem, da lastnosti in izvor nosilca vplivajo na aktivnost Cu-Fe/Al₂O₃ katalizatorja s specifičnim Cu/Fe razmerjem. Zaradi slednjega sem se poglobil v pripravo in vpliv različnih prekursorjev aluminijevih oksidov in ugotovil, da slednji močno vplivajo na aktivnost Cu/Al₂O₃ katalizatorja. Na aktivnost močno vpliva tudi kristalna struktura nosilca, ki jo dosežemo z uporabo različnih prekursorjev ter temperatur transformacije, saj lahko le-ta nastopa v več oblikah; od najmanj stabilne in široko uporabne γ -Al₂O₃ do termodinamsko najstabilnejše α -Al₂O₃. V nadaljevanju sem določil optimalno vsebnost CuO v Cu/Al₂O₃ katalizatorjih, ki je znašala 12 ut.%, ter zasledoval vpliv razmerja Fe/Al na aktivnost Cu-Fe/Al₂O₃ katalizatorja v reakciji oksidacije toluena kot modelnega VOC onesnažila. Pripravil sem različne kompozitne katalizatorje, katerih nosilci so različnih izvorov, pri čemer je v enem primeru prišlo do očitne izboljšave v aktivnosti kompozitnega Cu-Fe/Al₂O₃ katalizatorja. V nadaljevanju sem tako preučeval njegovo strukturo in poskušal pojasniti vzrok za razlike v aktivnosti in nastanek sinergijskega učinka med dvema kovinskima oksidoma in dotičnim nosilcem dawsonitnega izvora. Ugotovil sem, da prisotnost specifične vsebnosti Fe in Cu spojin (molski razmerji Fe/Al = 0,007 in Cu/Al = 0,054) vodi do nastanka optimalne koncentracije Cu-O-Al in Fe-O-Al mostov, pri čemer se s porastom vsebnosti železovih zvrsti ali spremembo kristalne

strukture nosilca, ter posledično najverjetneje tudi strukturne urejenosti in sprememb v mikrostrukturi katalizatorja, to razmerje spremeni, kar vodi do upada katalitske aktivnosti.

Najaktivnejši katalizator, pripravljen v okviru doktorskega dela, tako izkazuje izboljšano katalitsko aktivnost oksidov prehodnih kovinskih oksidov bakra in železa na aluminatnem nosilcu v nižjem temperaturnem območju (200-380 °C) in sicer doseže 90 % konverzijo toluena pri 372 °C. V delu sem sistematično preučil vplive struktur in lastnosti različnih aluminijevih oksidov kot nosilcev za tovrstne katalizatorje, ter prikazal pomembnost priprave ali izbire ustreznega nosilca v katalitskih procesih. Razumevanje delovanja omenjenega, cenovno ugodnega katalizatorja, ki sem ga pridobil skozi doktorsko delo in skupaj s soavtorji objavil v znanstvenih revijah, bo doprineslo kamen k mozaiku razumevanja priprave in delovanja teh katalizatorjev.