ВПЛИВ ТЕРМІЧНОЇ ОБРОБКИ НАНОРОЗМІРНОГО ОКСИДУ ЦЕРІЮ НА ЙОГО КАТАЛІТИЧНУ АКТИВНІСТЬ В МОДЕЛЬНІЙ РЕАКЦІЇ РОЗКЛАДАННЯ ПЕРОКСИДУ ВОДНЮ

Гринько А. М.[1], Бричка А. В.[2], Бакалінська О. М.[2], Картель М. Т.[2]
[1]Національний університет "Києво-Могилянська академія",
вул. Сковороди, 2, Київ, 04070, Україна,
[2]Інститут хімії поверхні ім. О. О. Чуйка Національної академії наук України,
вул. Генерала Наумова, 17, Київ, 03164, Україна
alinagrinko2@gmail.com

Нанорозмірний оксид церію є унікальним матеріалом з широким спектром застосування, що пов'язано з будовою його поверхні та окисно-відновними властивостями. Умови синтезу дозволяють регулювати такі параметри нанооксиду, як розмір кристалітів, кількість поверхневих дефектів, тощо, і, таким чином, керовано впливати на властивості кінцевого продукту. Вплив параметрів синтезу на структуру наноцерію висвітлено у багатьох публікаціях, але вплив температури прожарювання після осадження на властивості, включаючи каталітичні, залишається досі не вивченим.

Для дослідження впливу температурної обробки на каталітичну активність нанорозмірного оксиду церію нами було синтезовано серію зразків. Осаджений оксид церію висушували при 20 °C та прожарювали протягом 1 год при температурах 120, 300, 500, 800 °C на повітрі. Було показано, що морфологія отриманих зразків наноцерію, досліджена електронною мікроскопією, істотно не змінюється з підвищенням температури обробки. За допомогою енергодисперсійного рентгенівського спектрометру визначено елементний склад та показано, що вміст кисню в зразках зі збільшенням температури прожарювання спочатку зростає а потім знижується. Так, співвідношення O:Ce для зразка висушеного при 20 °C складає 1,85, сягає максимуму - 2,08 для матеріалу термічно обробленого при 300 °C, при подальшому збільшенні температури прожарювання до 800 °C спадає до 1,69. Ми пояснюємо це тим, що під час прожарювання зразків відбуваються два паралельні процеси – відщеплення гідроксильних груп поверхні оксиду церію з втратою кисню, та поглинання кисню повітря із заповненням кисневих вакансій оксиду церію. Переважання одного процесу над іншим зумовлює різницю у співвідношенні O:Ce в досліджуваних зразках при підвищенні температури обробки. Для визначення структурних характеристик синтезованих матеріалів було застосовано метод рентгенофазового структурного аналізу, який показав, що ступінь кристалічності і середній розмір кристалітів наноцерію збільшуються зі збільшенням температури термічної обробки.

Каталітичну активність наноцерію досліджували в реакції розкладання пероксиду водню різної концентрації (1-10 %) наважками синтезованих матеріалів при кімнатній температурі в діапазоні pH 8-11. Було показано, що залежність каталітичної активності від pH є екстремальною з максимумом при pH 10.0. Найбільшу каталітичну активність виявив зразок, прожарений в середньому діапазоні температур (300 °C). Це пов'язано з тим, що на поверхні зразків, висушених при 20 °C і прожарених при 120 °C, присутні фізично зв'язані молекули води, які дезактивують активні центри. Нагрівання зразків до 300 °C приводить до десорбції фізично адсорбованої води, і, як наслідок, каталітичні центри стають активними. При подальшому підвищенні температури обробки (500-800 °C), хімічно зв'язані молекули води вивільняються з поверхні, а Ce^{3+} окислюється до Ce^{4+}, що призводить до зниження каталітичної активності.