

СЛОЖНЫЕ ОКСИДЫ СО СТРУКТУРОЙ РОЗИАИТА $\text{LnFe}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{O}_6$ (Ln=La–Sm) И ПИРОХЛОРА ($\text{Ln}_{1.8}\text{Fe}_{0.2}$) FeSbO_7 (Ln=Pr–Tb) В РЕАКЦИИ ОКИСЛЕНИЯ СО

Эллерт О.Г.,^а Егорышева А.В.,^а Либерман Е.Ю.^б

^аФедеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт общей и неорганической химии им. Н. С. Курнакова Российской академии наук
e-mail: oellert@yandex.ru

^бРоссийский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева

Реакция окисления СО имеет большое практическое значение для решения задачи загрязнения окружающей среды. Многочисленны применения этой реакции в важнейших химических процессах восстановительного гетерогенного катализа. Методом соосаждения с последующим отжигом получены два ряда новых сложных оксидов со структурами розиаита $\text{LnFe}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{O}_6$ (Ln=La–Sm, пр. гр. *P-31m*) и пирохлора $\text{Ln}_{1.8}\text{Fe}_{0.2}\text{SbO}_7$ (Ln=Pr–Tb, пр. гр. *Fd-3mz*), содержащих комбинацию f- и d-элементов. Впервые установлено, что синтезированные соединения проявляют высокую активность и стабильность в реакции окисления СО (Рис.1а). Лучший результат показал образец со слоистой структурой розиаита $\text{LnFe}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{O}_6$ ($T_{50\%}=256^\circ\text{C}$).

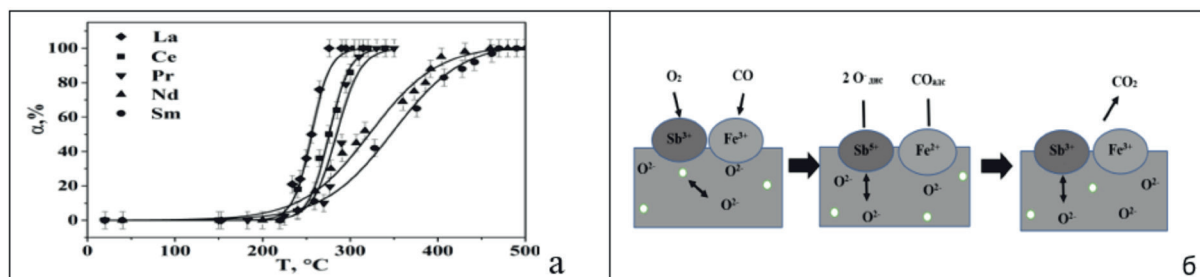


Рисунок 1. Зависимость конверсии СО, α (Т) на катализаторах со структурой розиаита $\text{LnFe}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{O}_6$ (а) и механизм окисления Марса-Ван Кревелена (б).

Каталитическая активность возрастает с увеличением электронного радиуса лантаноида в ряду $\text{La} > \text{Ce} > \text{Pr} > \text{Nd} > \text{Sm}$. Методом рентгенофотоэлектронной спектроскопии изучен элементный состав и электронная структура поверхности катализаторов со структурой розиаита. Показано, что процесс окисления СО на катализаторах $\text{LnFe}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{O}_6$ протекает по механизму Марса-Ван Кревелена путем окислительно-восстановительных превращений на активных центрах $\text{Sb}^{3+} \leftrightarrow \text{Sb}^{5+}$ and $\text{Fe}^{3+} \leftrightarrow \text{Fe}^{2+}$, располагающихся в соседних октаэдрах в слоях $(\text{Fe,Sb})\text{O}_6$.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, проект 18-03-00470-а.