

Marcus V. Castegnaro* [1], Ione M. Baibich [2], Jonder Morais [1]

*marcus_castegnaro@hotmail.com

[1] UFRGS – Instituto de Física - Porto Alegre/RS [2] UFRGS – Instituto de Química - Porto Alegre/RS

INTRODUÇÃO

Os óxidos de nitrogênio (NO_x) são formados principalmente por fontes antropogênicas e contribuem largamente, de forma direta ou indireta, para uma série de problemas ambientais e de saúde.

O NO representa cerca de 95% das emissões de NO_x , sendo de suma importância o desenvolvimento de novas tecnologias que controlem a quantidade deste poluente lançada na atmosfera.

A decomposição direta do NO utilizando como catalisadores metais de transição suportados em materiais como zeólitas ou óxidos é uma das soluções mais atrativas para o controle das emissões deste poluente. Devido a sua alta capacidade de reduzir os óxidos de nitrogênio, o Pd vem sendo estudado como alternativa para outros metais, tais como Ag, Rh e Pt.

OBJETIVOS

Estudo da atividade catalítica de nanopartículas de Pd suportadas em carvão ativado na reação de decomposição direta de NO. Análise da influência da concentração de Pd na atividade e seletividade do catalisador Pd/C.

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

CARACTERIZAÇÃO DOS CATALISADORES

Os catalisadores foram caracterizados por Difração de Raios-X (difratômetros Siemens D5000 do IF-UFRGS e do Instituto de Geociências-UFRGS) e Espectrometria de energia dispersiva (Jeol Scanning Microscope – JSM5800 do CME-UFRGS).

TESTES DE ATIVIDADE CATALÍTICA

Foram utilizados catalisadores com 3% e 1,5% de concentração de Pd, que foram reduzidos antes dos testes por 30 min na temperatura de reação, sob fluxo contínuo de 28 mLmin⁻¹ de H₂.

A reação de decomposição de NO foi feita em um reator de leito fixo de quartzo sob fluxo contínuo de 500 ppm de NO em He. Os gases efluentes foram analisados em um espectrômetro de IV (MB-100-BOMEM).

Os testes foram realizados em duas etapas, na primeira, o catalisador Pd/C (3%) foi testado em temperaturas entre 50°C e 400°C, para se estabelecer as melhores temperaturas para reação. Na segunda etapa, foram realizados os testes com os dois catalisadores nas temperaturas em que o catalisador Pd/C (3%) apresentou melhores resultados (100°C e 300°C).

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Os difratogramas (Figuras 1 e 2) mostram que o Pd está presente na sua forma metálica, Pd⁰. Nota-se também que o padrão de difração não se alterou após as reações.

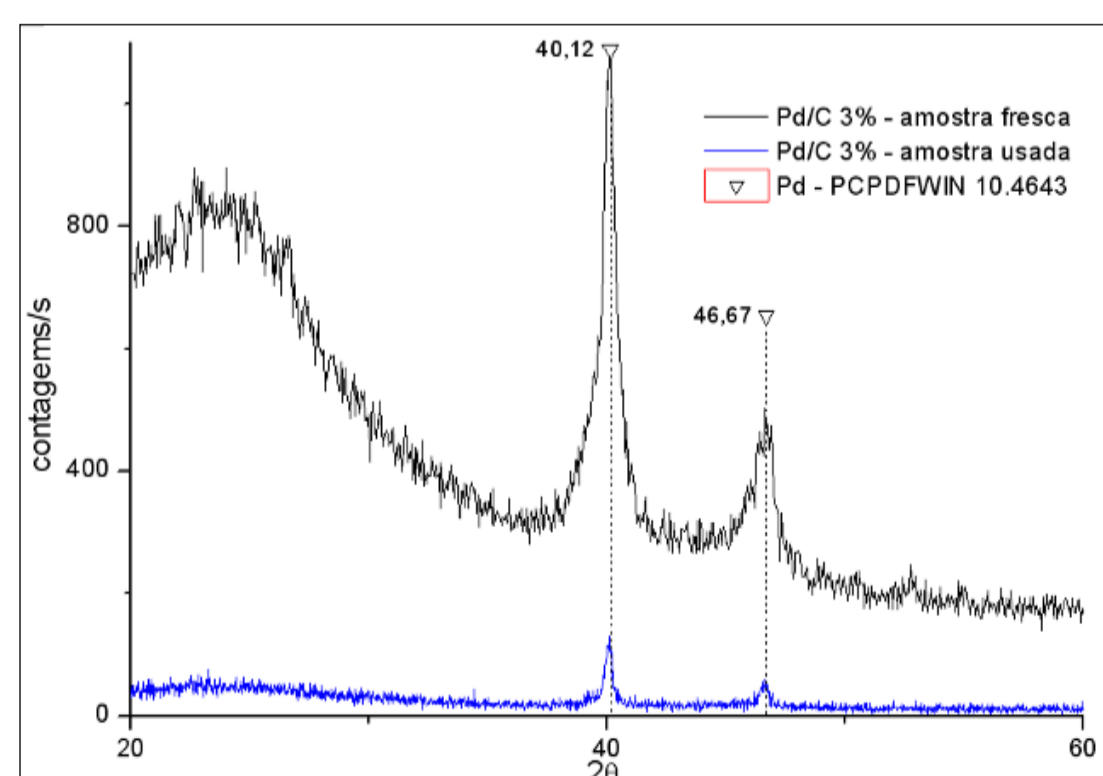


Figura 1. Difratogramas do catalisador Pd/C 3% antes e após os testes catalíticos.

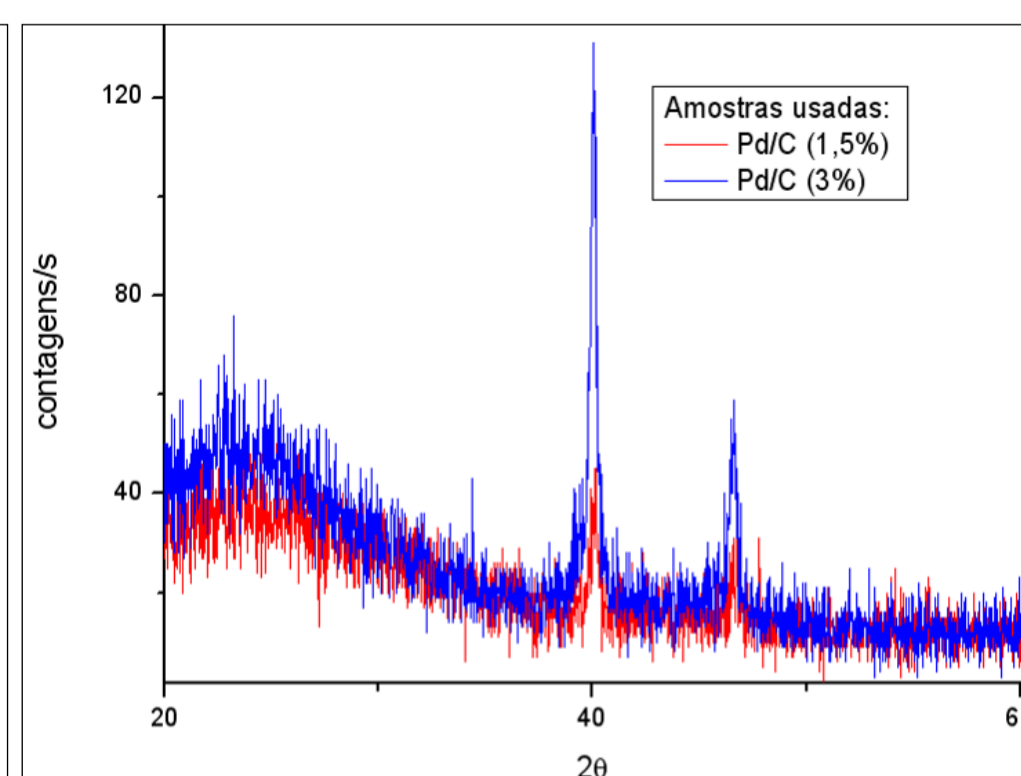


Figura 2. Difratogramas dos catalisadores Pd/C 3% e 1,5% após os testes catalíticos.

Por EDS, obteve-se as composições elementares das amostras (Tabela 1, Figura 3), cujos valores foram próximos aos adicionados ao suporte, não havendo perdas após as reações.

Tabela 1. Resultado da composição elementar média obtida por EDS.

	Pd (%)	C (%)
Pd/C(3%) fresco	3,24	96,76
Pd/C(3%) usado	2,71	97,29
Pd/C(1,5%) fresco	1,33	98,67
Pd/C(1,5%) usado	1,34	98,66

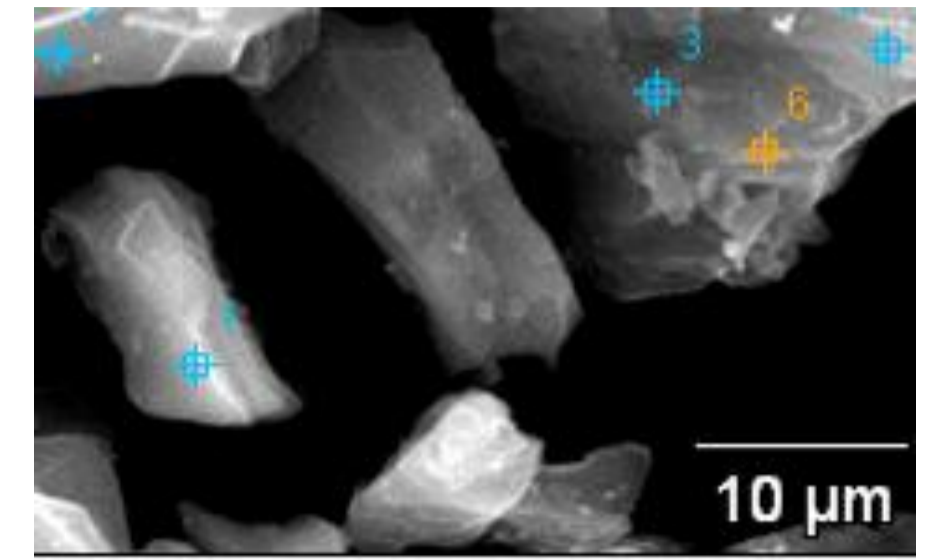


Figura 3. Imagem obtida por MEV do catalisador Pd/C (1,5%).

Reações a 100°C – Estes testes mostraram que os dois catalisadores permanecem ativos por longos períodos (Figura 4), sendo o catalisador Pd/C (1,5%) o mais ativo. A Figura 5 mostra a formação de N₂O vs tempo de reação, que representa uma medida indireta da seletividade dos catalisadores para a formação de N₂ e O₂, sendo que quanto menor a formação de N₂O, mais seletivo é o catalisador. A comparação entre as curvas das Figuras 4 e 5 mostra que há relação entre a desativação do catalisador e a formação de N₂O. Não houve formação de NO₂ e CO₂.

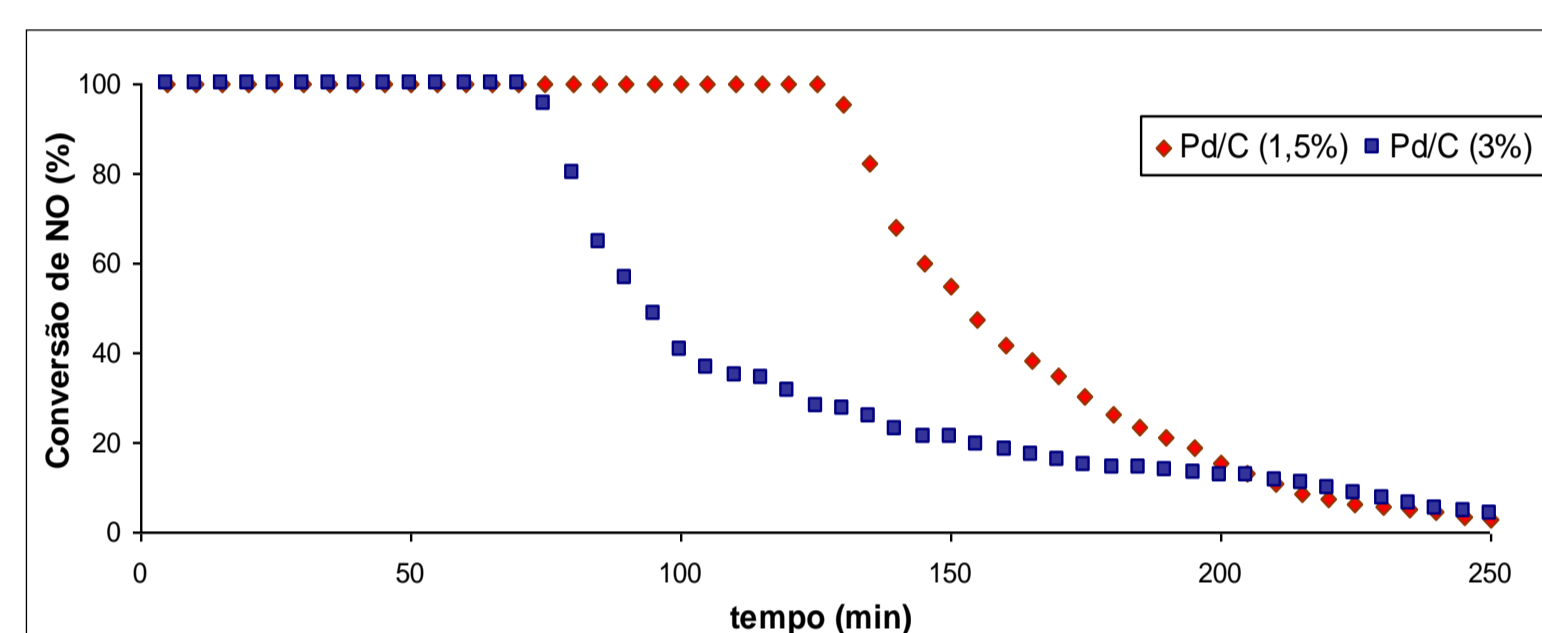


Figura 4. Conversão de NO vs tempo de reação dos catalisadores Pd/C (1,5%) e Pd/C (3%). Reação a 100°C.

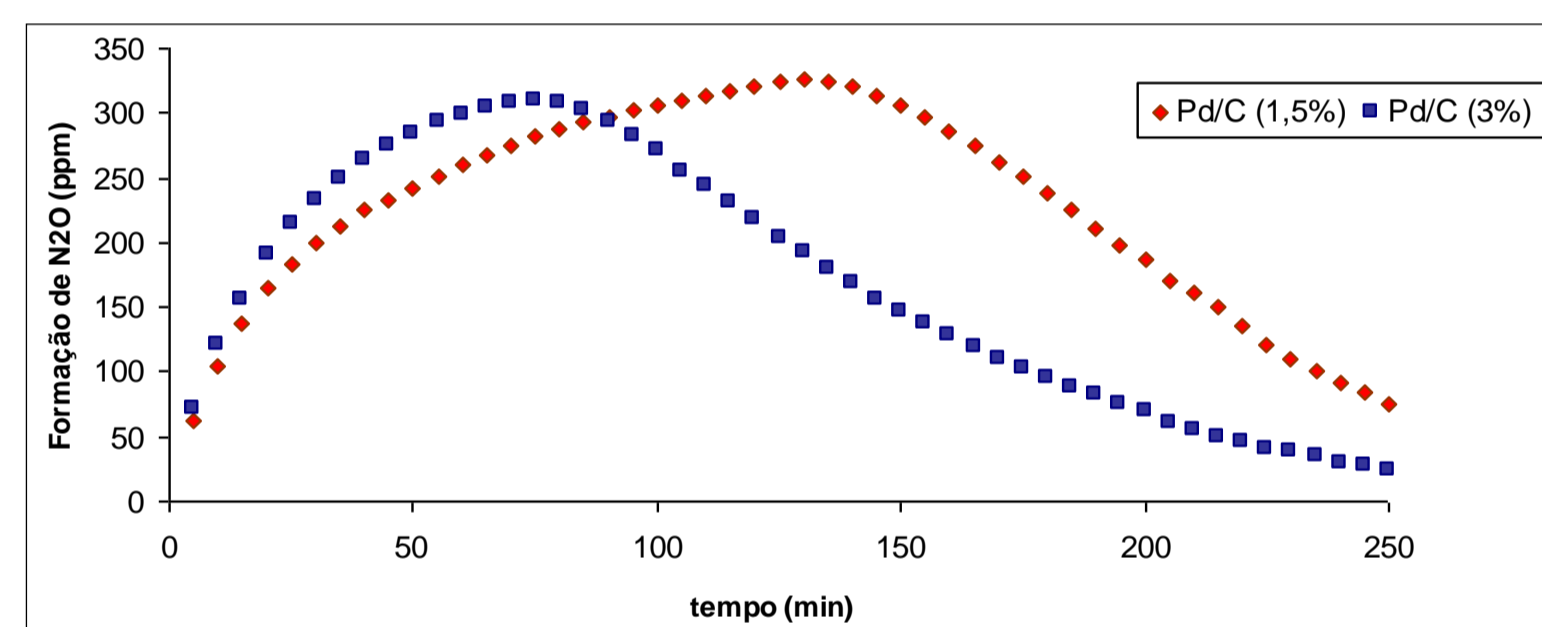


Figura 5. Formação de N₂O vs tempo de reação dos catalisadores Pd/C (1,5%) e Pd/C (3%). Reação a 100°C.

Reações a 300°C – A Figura 6 mostra os gráficos dos resultados das reações feitas a 300°C. Devido à alta temperatura, há formação de CO₂, (Figura 6c) o que indica que o suporte está sendo consumido durante a reação. É provável que isto esteja associado ao comportamento visto na Figura 6a.

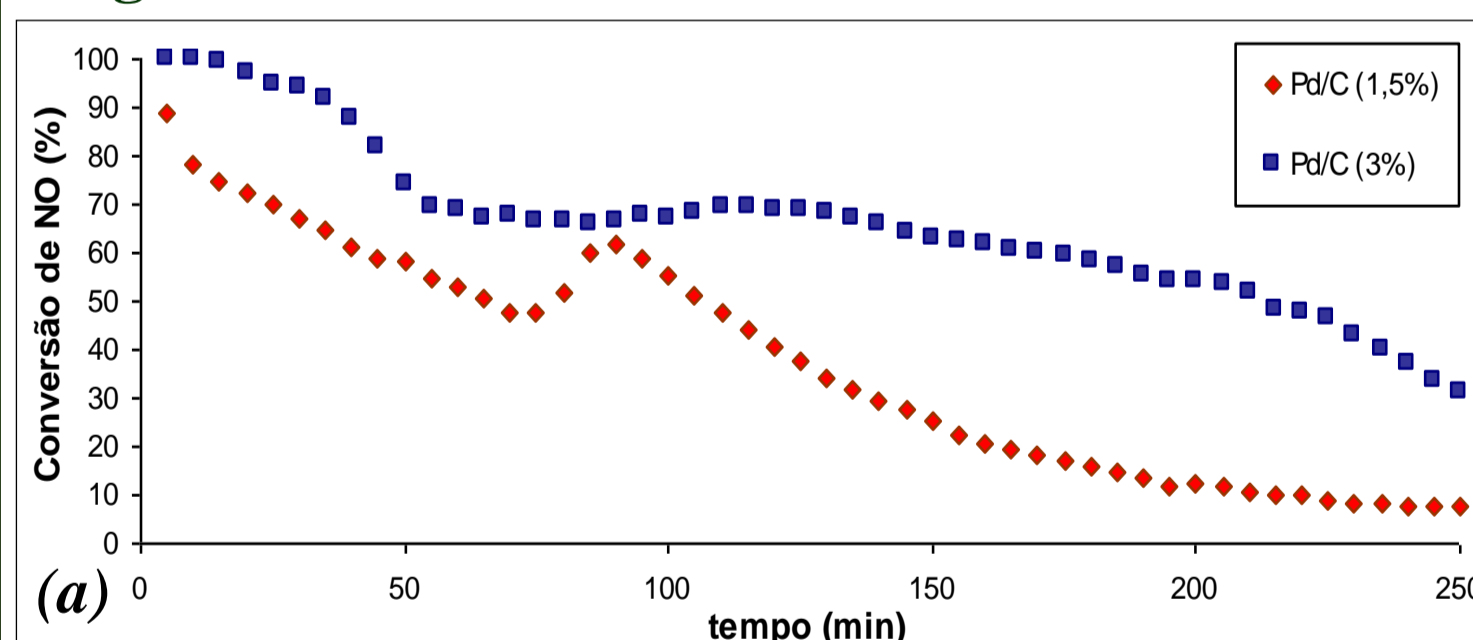
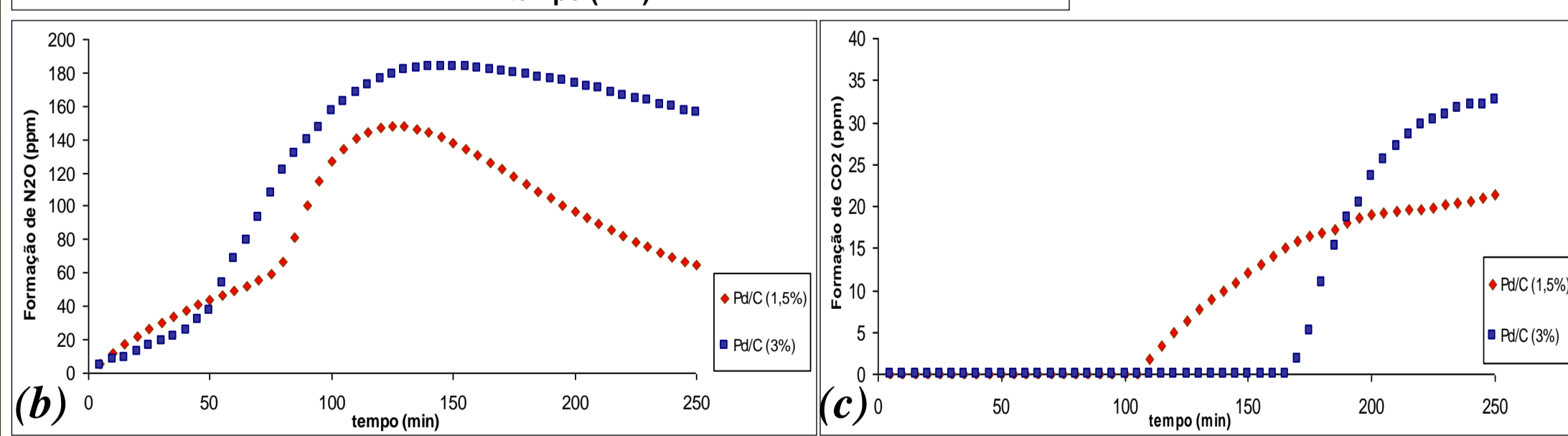


Figura 6. Reação a 300°C. (a) Conversão de NO vs tempo de reação. (b) Formação de N₂O vs tempo de reação. (c) Formação de CO₂ vs tempo de reação.



CONCLUSÃO

- Os catalisadores de Pd/C apresentam atividade catalítica para a decomposição de NO, mesmo a baixas temperaturas.
- A 100°C, o catalisador com menor quantidade de Pd mostrou-se mais ativo para decomposição de NO.
- A 300°C, o comportamento dos catalisadores mostra a degradação do suporte.
- Os catalisadores não sofreram alterações nas suas composições e estruturas básicas após as reações.
- As reações foram reproduzíveis.

agradecimentos: Prof^{ra}. Dra. Maria do Carmo M. Alves, CNPq, FAPERGS, COPESUL, LEe⁻, CME, CNANO.