

Szén-monoxid-tűrő katalizátorok tüzelőanyag-elemekhez

PhD értekezés tézisei

Vass Ádám

Témavezető: Dr. Tompos András

Tudományos főmunkatárs, intézetigazgató



Szegedi Tudományegyetem

Természettudományi és Informatikai Kar

Környezettudományi Doktori Iskola



Magyar Tudományos Akadémia

Természettudományi Kutatóközpont

Anyag- és Környezetkémiai Intézet

Megújuló Energia Kutatócsoport

2019

Bevezetés

Napjaink egyik legfontosabb megoldandó feladata az emberiség egyre növekvő energiaigényének kielégítése a megújuló energiaforrások minél nagyobb arányban történő felhasználásával, amik azonban térben és időben eltérő mértékben állnak rendelkezésre, emiatt szükséges a megtermelt energia tárolása további felhasználásig. A hidrogén bármelyik megújuló energiaforrásból közvetve előállítható: az elsődleges energiaforrásokból elektromos energia nyerhető, ami a víz elektrolízisével hidrogénné alakítható. A hidrogén eltárolható, majd, amikor szükséges, tüzelőanyag-elemekben nagy hatásfokkal visszaalakítható elektromos energiává.

A tüzelőanyag-elemek közül különösen nagy szerepe lehet a Polimer Elektrolit Membrános (PEM) tüzelőanyag-elemeknek. Méretüknek, viszonylag alacsony működési hőmérsékletüknek és gyors indíthatóságuknak köszönhetően alkalmasak akár különböző mobil eszközök –a telefonoktól a közlekedési eszközökig–, akár kiegészítő tápegységek vagy kombinált hő- és villamos energia előállító egységek energiaellátására. Széleskörű elterjedésükhöz azonban jelentős előrelépést kell még tenni az egyes tüzelőanyag-elem komponensek –például az elektrokatalizátorok– anyagtudományi fejlesztése területén, amelyek jelentős hatással vannak a technológia költségére, a környezeti fenntarthatóságára és a berendezések élettartamára.

A PEM elemek platina katalizátorral működnek, aminek ára jelentős tétel a nagy előállítási költségekben. A kereskedelmi forgalomban jelenleg kapható PEM tüzelőanyag-elemekben szénhordozós platinakatalizátort alkalmaznak. Ugyan a Pt tartalom csökkenése jelentős volt az elmúlt évtizedben, a kutatások és fejlesztések egyik iránya továbbra is a felhasznált platina mennyiségének csökkentése (akár nulláig, platina mentes elektródok kifejlesztésével). Szintén a fejlesztések középpontjában van a katalizátorok és a belőlük készült elektródok stabilitásának, élettartamának növelése.

A szakirodalom szerint az elektródok stabilitását elsősorban a katalizátorhordozó stabilitásának növelésével lehet javítani. Az aktív szén kiváló vezetőképességgel rendelkezik, de korrózióra hajlamos, különösen, ha gyors terhelés változások hatására (például egy jármű energiaforrásként) az elektród potenciálja is ingadozik.

Ugyancsak megoldandó probléma az anód oldalon, ahol az üzemanyag oxidációja történik, a katalizátor szén-monoxid érzékenysége. Jelenleg az üzemanyagként használt hidrogén jelentős részét még a szénhidrogének reformálásából nyerik, ennek következtében az mindig tartalmaz szennyezőként szén-monoxidot is. Emiatt fontos feladat megnövelt CO-tűrő képességű anód oldali katalizátorok fejlesztése.

A fenti problémák megoldásán dolgoznak az MTA TTK AKI Megújuló Energia Kutatócsoport munkatársai is, akik korábbi munkáik során bízató eredményeket értek el.^{1,2} Ebbe a kutatásba kapcsolódtam be doktori munkám során.

¹ D. Gubán, I. Borbáth, Z. Pászt, I.E. Sajó, E. Drotár, M. Hegedűs, A. Tompos, *APPLIED CATALYSIS B-ENVIRONMENTAL* **174**: pp. 455-470. (2015)

² D. Gubán, Z. Pászt, I. Borbáth, I. Bakos, E. Drotár, I. Sajó, A. Tompos, *PERIODICA POLYTECHNICA-CHEMICAL ENGINEERING* **60**: (1) pp. 29-39. (2016)

Célkitűzés

Doktori munkám során hidrogén üzemű PEM tüzelőanyag-elemben anód oldali elektródként használható, jó szén-monoxid-tűrő képességgel és megfelelő stabilitással rendelkező katalizátorok előállítását céloztam meg. Ehhez a kutatócsoport korábbi eredményei és a szakirodalom alapján platina elektrokatalizátorok hordozóiként szolgáló, különböző összetételű, titán-molibdén vegyes-oxid-aktív szén kompozit anyagok előállítását, az ehhez szükséges módszer kidolgozását tűztem ki célul.

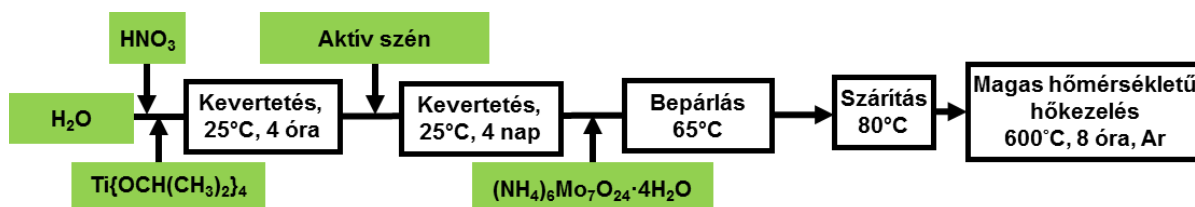
A szakirodalomban napjainkban is többféle elmélet található a CO_{ads} -stripping voltammogramokon megjelenő, úgynevezett CO oxidációs elő csúcs és a CO-tűrő képesség közötti kapcsolatra. Ezért a szakirodalomban leírt és az általam megfigyelt jelenségekre adható lehetséges magyarázatok feltárása érdekében szükségesnek találtam a CO elektrooxidációs tulajdonságok részletes vizsgálatát. Modell felületek előállításával és vizsgálatával is az volt a célom, hogy ezeket az összefüggéseket felderítsem, illetve megértsem, ami segítség lehet a minél jobb katalizátor elkészítéséhez. Vizsgálni kívántam a katalizátorok aktivitása, stabilitása és a katalizátorok szerkezete közötti összefüggéseket.

Az általam előállított minták katalitikus tulajdonságait össze kívántam hasonlítani a kereskedelmi forgalomban kapható hidrogén üzemű PEM tüzelőanyag-elemekben leggyakrabban alkalmazott szénhordozós platina katalizátoréval, és az irodalomban általában legjobb szén-monoxid-tűrő referencia-katalizátorként hivatkozott szénhordozós platina-ruténium katalizátoréval. Ennek érdekében kiemelt feladat volt a katalizátorok tüzelőanyag-elem tesztberendezésben történő vizsgálata.

Alkalmazott módszerek

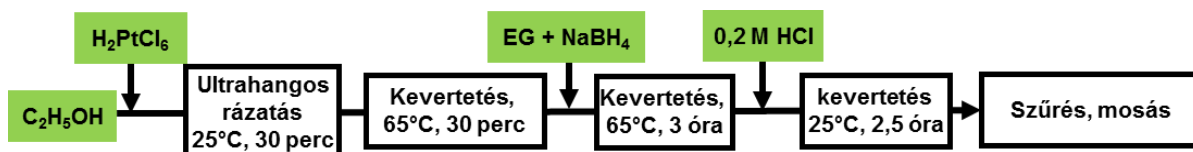
Elektrokatalizátorok előállítása

A különböző összetételű $\text{Ti}_{(1-x)}\text{Mo}_x\text{O}_2$ vegyes-oxidból és aktív szénből álló kompozit anyagokat egy módosított, többlépéses, szobahőmérsékletű szol-gél alapú szintézis módszerrel állítottam elő az 1. ábrán bemutatott séma szerint, amit egy magas hőmérsékletű hőkezelés követett.



1. ábra: A $\text{Ti}_{(1-x)}\text{Mo}_x\text{O}_2\text{-C}$ kompozit anyagok többlépéses szintézis úton történő előállításának folyamatábrája

A kompozit anyagokra platinát vittem fel redukciós-kicsapásos módszerrel, amelyben NaBH_4 etilén-glikolos oldatát alkalmaztam. Az előállítás folyamatát a 2. ábra szemlélteti.



2. ábra: A platinafelvitel folyamatábrája

Elektrokatalizátorok és elektrokatalizátor hordozók jellemzése fizikai kémiai módszerekkel

A szobahőmérsékleten előállított kompozitot a hőkezelés optimális hőmérsékletének meghatározása érdekében hőmérséklet programozott redukciós mérésekkel (TPR) és *in-situ* hőkezelésekkel egybekötött röntgen fotoelektron spektroszkópiás (XPS) módszerrel vizsgáltuk. A hordozó előállítása során kapott anyagokat mind a szobahőmérsékletű szintézist, mind a magas hőmérsékletű hőkezelést követően vizsgáltam röntgen diffrakciós módszerrel (XRD) a fázisösszetétel és a molibdén beépülési fok meghatározására. A platina felvitelt követően a katalizátorokat a platina részecskeméret eloszlás meghatározása céljából transzmissziós elektronmikroszkópiával (TEM), a tömbi összetétel meghatározására energia-diszperzív röntgen analízissel (EDX), míg a felületi összetétel meghatározására XPS módszerrel vizsgáltuk.

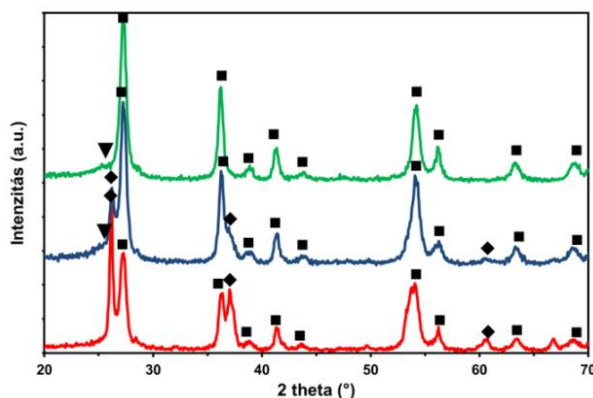
Elektrokatalizátorok jellemzése elektrokémiai módszerekkel és tüzelőanyag-elem vizsgálatokkal

A katalizátorok elektrokatalitikus (szén-monoxid és hidrogén oxidációs) tulajdonságait különböző elektrokémiai mérésekkel (ciklikus voltammetria, CO_{ads} -stripping voltammetria) és tüzelőanyag-elem vizsgálatokkal határoztam meg, összehasonlítva a referencia szénhordozós platina, és az irodalomban általában legjobb CO-tűrő referencia-katalizátorként hivatkozott szénhordozós platina-ruténium katalizátorokkal. A tüzelőanyag-elemekben a katalizátorokkal szemben fontos követelmény a megfelelő stabilitás, ezt a saját és a referencia szénhordozós platina-ruténium katalizátorok hosszan tartó ciklikus polarizációjával vizsgáltam. A polarizációs ciklusok számának az elektrokatalizátorok fizikai-kémiai jellemzőire és katalitikus tulajdonságaira gyakorolt hatását elektrokémiai (CO_{ads} -stripping voltammetria, hidrogén oxidációs reakció forgó korong elektródon), TEM és XPS mérésekkel vizsgáltuk. A molibdén oxidációs állapota és a molibdén tartalmú hordozóval készült elektrokatalizátorok CO toleráns viselkedése közötti összefüggés további tisztázása érdekében molibdénnel módosított platina modell felületek elektrokémiai mérését és XPS elemzését hajtottuk végre

Összehasonlítás céljából 40 és 20 m/m% Pt/C (Quintech) és a legkorszerűbb CO-tűrő katalizátornak tartott PtRu/C (Quintech, Pt=20 m/m%, Ru=10m/m%) elektrokatalizátorokat is vizsgáltam a fent leírt módszerekkel.

Eredmények és értékelésük. Tézispontok

T1. Módszert dolgoztam ki különböző összetételű titán-molibdén vegyes-oxid-aktív szén kompozit anyagok előállítására. Kimutattuk, hogy a $\text{Ti/Mo}=80/20$ atomi aránnyal jellemzett összetétel mellett a molibdén teljes mértékben beépül a rutil rácsha, az ennél több molibdént tartalmazó rendszerekben megjelenik a be nem épült, szegregált molibdén-oxid is. [1-2]



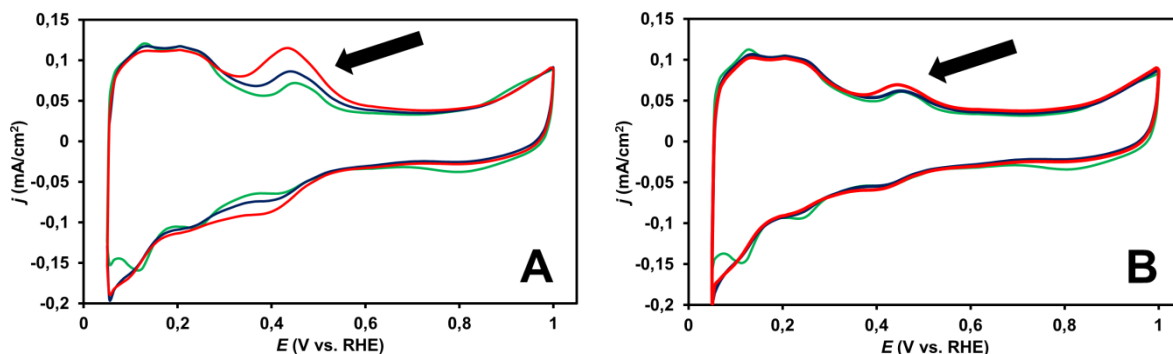
3. ábra: A $\text{Ti}_{0,8}\text{Mo}_{0,2}\text{O}_2\text{-C}$ (zöld vonal), $\text{Ti}_{0,7}\text{Mo}_{0,3}\text{O}_2\text{-C}$ (kék vonal) és $\text{Ti}_{0,6}\text{Mo}_{0,4}\text{O}_2\text{-C}$ (piros vonal) kompozitok röntgen diffraktogramjai a hőkezelés előtt (A) és után (B). ■ rutil; ◆ MoO_2 ; ● MoO_3 ; ▼ anatáz.

1. táblázat: A hőkezelt ($600\text{ }^\circ\text{C}$, 8h, Ar) $\text{Ti}_{(1-x)}\text{Mo}_x\text{O}_2\text{-C}$ ($\text{C}=25\text{ m/m}\%$) kompozitok szerkezetének tulajdonságai az XRD mérések alapján

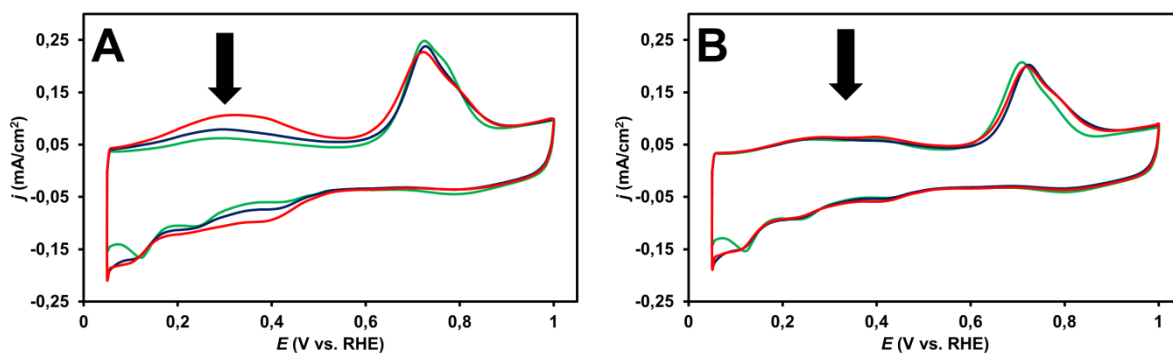
Minták	Fázis (m/m%)			Rácsparaméterek (Å)	Mo beépülés (atom%)
	Rutil	Anatáz	$\text{MoO}_3/\text{MoO}_2$		
Referencia TiO_2	100	0	-	$a=4,593$, $c=2,959$	-
$\text{Ti}_{0,8}\text{Mo}_{0,2}\text{O}_2\text{-C}$	90	10	0/0	$a=4,640$, $c=2,935$	21
$\text{Ti}_{0,7}\text{Mo}_{0,3}\text{O}_2\text{-C}$	86	10	0/4	$a=4,645$, $c=2,932$	25
$\text{Ti}_{0,6}\text{Mo}_{0,4}\text{O}_2\text{-C}$	80	5	0/15	$a=4,655$, $c=2,928$	30

A $\text{Ti}_{(1-x)}\text{Mo}_x\text{O}_2\text{-C}$ kompozitok XRD mérésinek eredményei alapján a mintákban a rutil rácsparaméterei megváltoztak a módosítatlan titán-dioxidéhoz képest. A cellák torzulásából levonható következtetések alapján a molibdén beépülés mértéke körülbelül 21-30 atom% (1. táblázat). A MoO_2 -ra jellemző diffrakciós csúcsok a szabad, azaz a be nem épült MoO_2 fázist jelzik (3. ábra), amelynek mennyisége növekszik a minták növekvő molibdén tartalmával. Az eredményekből az látszik, hogy az alkalmazott eljárás esetén a molibdén beépülésének maximuma van.

T2. Kimutattam, hogy a különböző molibdén tartalmú minták stabilitása a beépülés mértékétől és nem a molibdén mennyiségétől függ. [2]



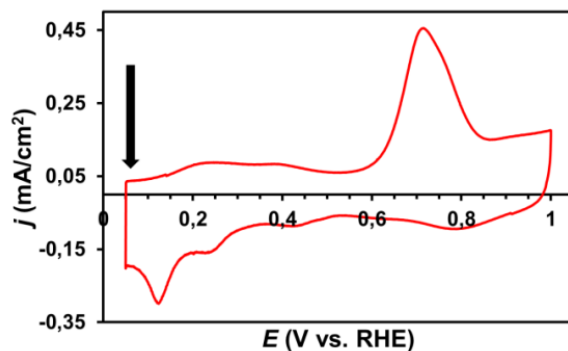
4. ábra: A 20 m/m% Pt/Ti_{0,6}Mo_{0,4}O₂-C (piros vonal), 20 m/m% Pt/Ti_{0,7}Mo_{0,3}O₂-C (kék vonal) és 20 m/m% Pt/Ti_{0,8}Mo_{0,2}O₂-C (zöld vonal) katalizátorok ciklikus voltammogramjai egy elő-kioldási folyamat előtt (A) és után (B). 0,5 M H₂SO₄, 10 mV/s, T=25 °C.



5. ábra: 20 m/m% Pt/Ti_{0,6}Mo_{0,4}O₂-C (piros vonal), 20 m/m% Pt/Ti_{0,7}Mo_{0,3}O₂-C (kék vonal) és 20 m/m% Pt/Ti_{0,8}Mo_{0,2}O₂-C (zöld vonal) katalizátorok Ar-öblítéses CO_{ads}-stripping voltammogramjai egy elő-kioldási folyamat előtt (A) és után (B). 0,5 M H₂SO₄, 10 mV/s, T=25 °C.

A 4. és 5. ábrán látható, hogy a 20 m/m% Pt/Ti_(1-x)Mo_xO₂-C katalizátorok felületének ciklikus polarizáció (30 ciklus, 50-1000 mV, 100 mV/s) hatására bekövetkező változása a minták be nem épült molibdén tartalmával arányos.

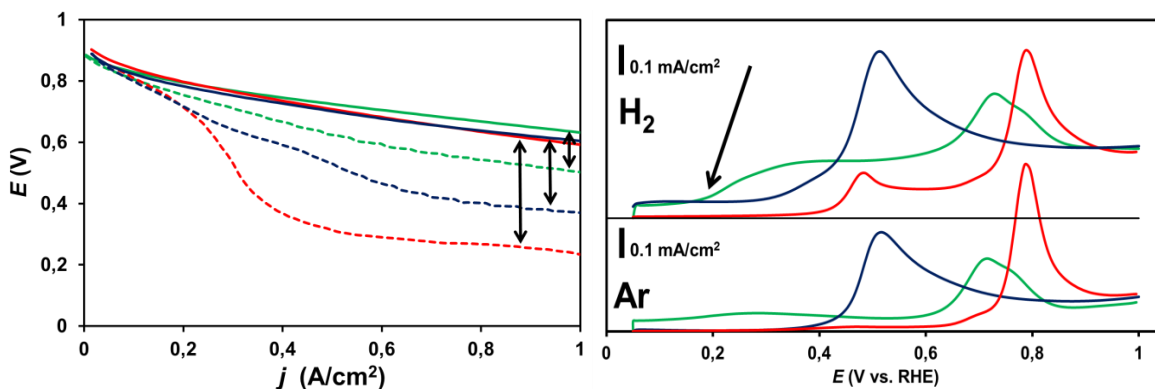
T3. Kimutattam, hogy a $\text{Pt}/\text{Ti}_{(1-x)}\text{Mo}_x\text{O}_2\text{-C}$ katalizátorok felületén az adszorbeált CO elektrooxidációja már kivételesen alacsony potenciál értéken (50 mV) megkezdődik. Ez a Pt és a vegyes-oxid redukálható ionos felületi Mo képződményei közötti határfelületi aktív helyek kialakulásával magyarázható. [1]



6. ábra: A 40 m/m% $\text{Pt}/\text{Ti}_{0,7}\text{Mo}_{0,3}\text{O}_2\text{-C}$ katalizátor Ar-öblítéses CO_{ads} -stripping voltammogramja. 0,5 M H_2SO_4 , 10 mV/s, $T=25^\circ\text{C}$.

A 6. ábrán látható, hogy a kompozit hordozós katalizátoron már 50 mV-on megfigyelhető CO elektrooxidációs áram.

T4. Elektrokémiai mérésekkel és tüzelőanyag-elem vizsgálattal is bizonyítottam, hogy az általam előállított $\text{Pt}/\text{Ti}_{(1-x)}\text{Mo}_x\text{O}_2\text{-C}$ katalizátorok az alacsony potenciálon történő szén-monoxid oxidációban előnyösebb tulajdonságokkal rendelkeznek, mint az irodalomban általában legjobb CO-tűrő referencia-katalizátorként hivatkozott, kereskedelmi forgalomban kapható szénhordozós platina-ruténium. A $\text{Ti}_{0,8}\text{Mo}_{0,2}\text{O}_2\text{-C}$ hordozós Pt katalizátor kisebb mértékű degradációt mutatott a ruténium tartalmúhoz képest. [1-2, 5]

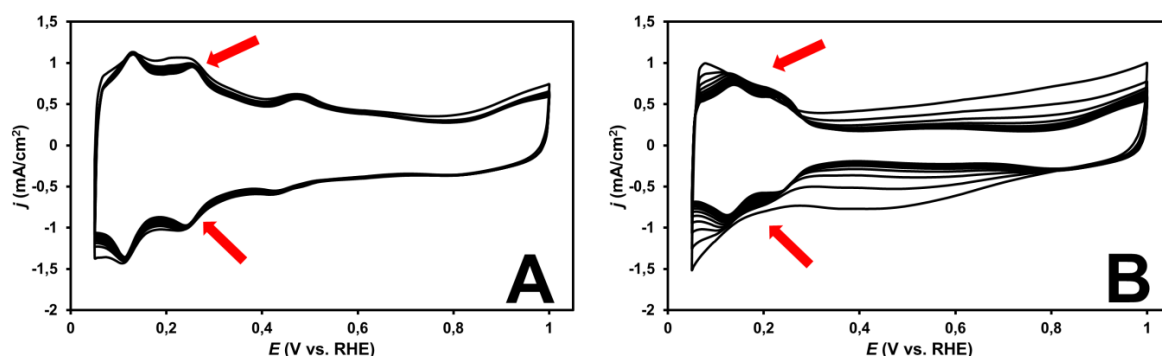


7. ábra: A 40 m/m% $\text{Pt}/\text{Ti}_{0,7}\text{Mo}_{0,3}\text{O}_2\text{-C}$ (zöld vonal), Pt/C (piros vonal) és a PtRu/C (kék vonal) katalizátorok tüzelőanyag-elem vizsgálat során kapott cellafeszültség vs. áramsűrűség görbék H_2 (folytonos vonal) és 100 ppm CO/H_2 (szaggatott vonal) alkalmazása esetén.

8. ábra: A 20 m/m% $\text{Pt}/\text{Ti}_{0,8}\text{Mo}_{0,2}\text{O}_2\text{-C}$ (zöld vonal), Pt/C (piros vonal) és PtRu/C (kék vonal) katalizátorok Ar- és H_2 -öblítéses CO_{ads} -stripping voltammogramjainak anódos áramsűrűség görbéi. 0,5 M H_2SO_4 , 10 mV/s, $T=25^\circ\text{C}$.

A tüzelőanyag-elem vizsgálatok (7. ábra) során 1 A/cm^2 áramsűrűségnél H_2 illetve 100 ppm CO/H_2 üzemanyagok alkalmazása esetén mért cellafeszültség értékek különbségei (ΔE) alapján a vizsgált katalizátorok CO -tűrő képességi sorrendje a következő: $40 \text{ m/m\% Pt/Ti}_{0,7}\text{Mo}_{0,3}\text{O}_2\text{-C}$ ($\Delta E=0,13 \text{ V}$) > $20 \text{ m/m\% Pt-10 m/m\% Ru/C}$ ($\Delta E=0,23 \text{ V}$) > $40 \text{ m/m\% Pt/C}$ ($\Delta E=0,37 \text{ V}$).

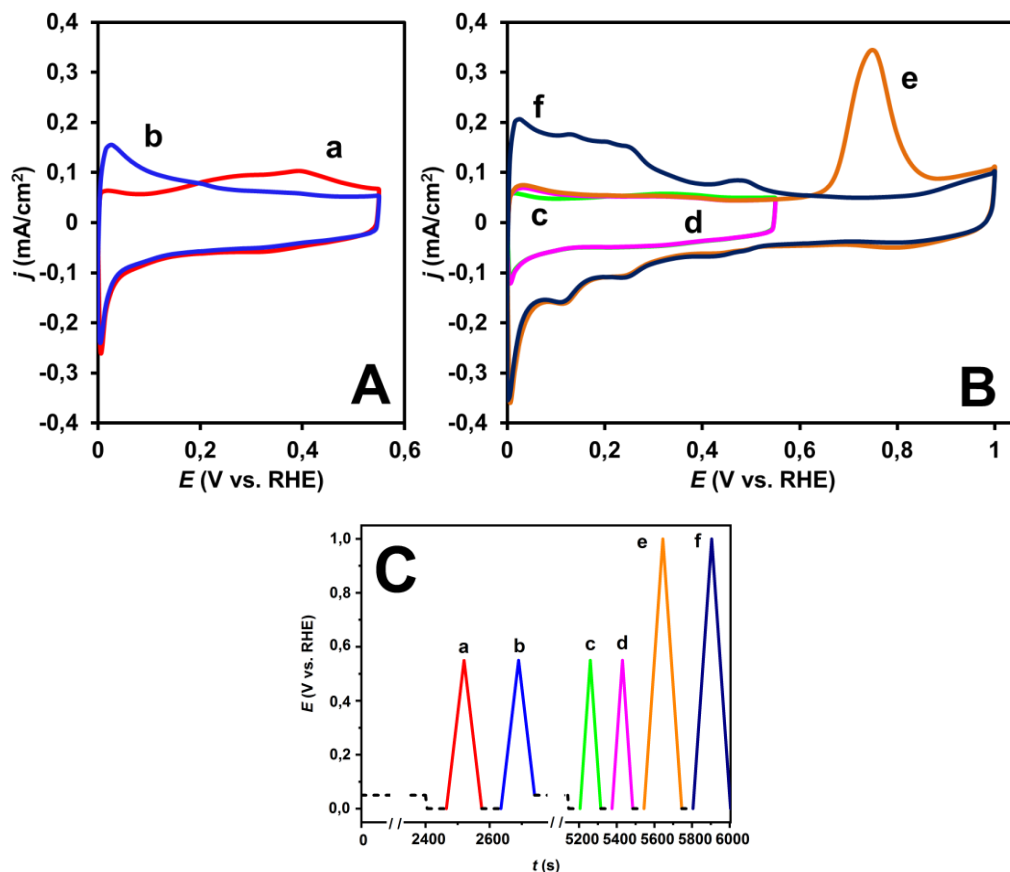
A 8. ábrán látható H_2 -öblítéses CO_{ads} -stripping mérés esetén a $20 \text{ m/m\% Pt/Ti}_{0,8}\text{Mo}_{0,2}\text{O}_2\text{-C}$ katalizátoron az anódos áram kb. 200 mV -nál kezdődő növekedése azt jelenti, hogy a hidrogén oxidáció kezdetének potenciálja kevésbé pozitív potenciálok felé tolódott a Pt/C és PtRu/C -hez képest (kb. 400 és 300 mV) ami szintén a kompozit hordozós katalizátor jó szén-monoxid-tűrő képességét bizonyítja.



9. ábra: A $20 \text{ m/m\% Pt/Ti}_{0,8}\text{Mo}_{0,2}\text{O}_2\text{-C}$ (A) és a $20 \text{ m/m\% Pt-10 m/m\% Ru/C}$ (B) katalizátorok ciklikus voltammogramjai. 10 kondicionálási ciklust követő 500 ciklusos stabilitási vizsgálat minden 50. ciklusának megjelenítése (a nyilak a ciklusok számának növekedése során megfigyelt változások irányát jelzik). $0,5 \text{ M H}_2\text{SO}_4$, 100 mV/s , $T=25^\circ\text{C}$.

A 9. A és B ábrán látható, hogy a saját katalizátor esetében csak viszonylag kis változás figyelhető meg a voltammogram alakjában az 500 ciklusos stabilitási vizsgálat hatására; ezzel szemben a PtRu/C elektrokatalizátor ciklikus voltammogramjában a ciklizálás előrehaladtával jelentős változás történik: egyre inkább hasonlít a szénhordozós platina katalizátor voltammogramjára a ruténium kioldódásának következtében, ami CO -tűrő képessége elvesztését eredményezi.

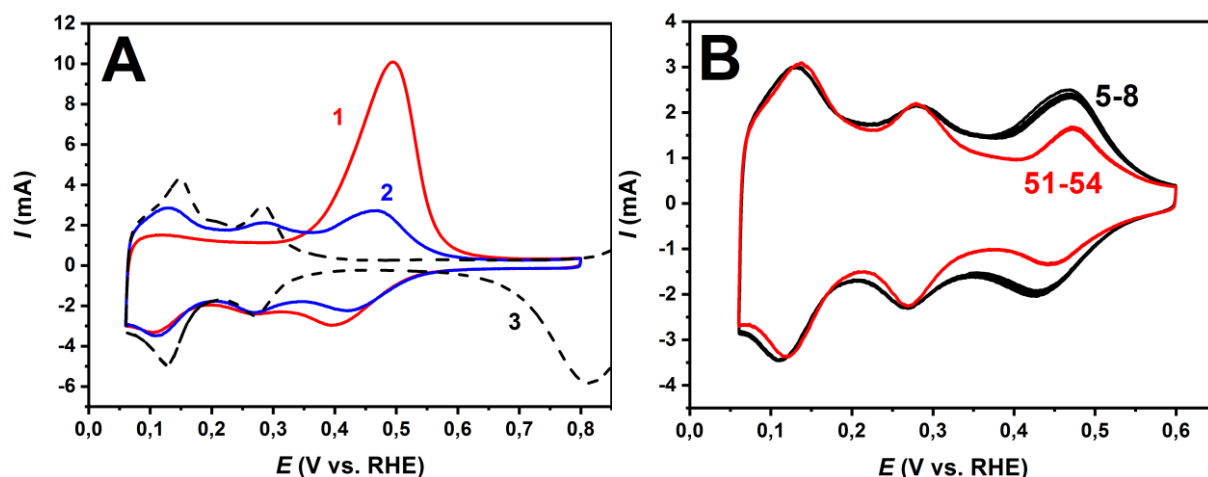
T5. Kimutattam, hogy a $\text{Pt/Ti}_{(1-x)}\text{Mo}_x\text{O}_2\text{-C}$ katalizátorokon megjelenő úgynevezett CO-oxidációs előcsúcs legalább két oxidációs folyamathoz köthető: a felületi molibdén képződményekkel atomi közelségben lévő platinán gyengén kötött szén-monoxid oxidációjához, és a felületi molibdén oxidációjához. A molibdén oxidációja következtében (400 mV -nál pozitívabb potenciálra történő polarizáció) megszűnik a katalizátor alacsony potenciálon történő szén-monoxid oxidációs képessége, ami csak a teljes platina felületet borító szén-monoxid réteg eltávolítása után áll vissza. [3]



10. ábra: A 20 m/m% $\text{Pt/Ti}_{0.6}\text{Mo}_{0.4}\text{O}_2\text{-C}$ katalizátor különböző potenciálhatárokkal rögzített Ar-öblítéses CO_{ads} -stripping voltammogramjai (A, B), és az alkalmazott potenciál program 0,5 M H_2SO_4 , 10 mV/s, $T=25^\circ\text{C}$.

A gyengén kötött CO eltávolítása (10. A ábra *a* görbe) után a felszabadult platina felületen hidrogén adszorpció és oxidáció játszódott le (10. A ábra *b* görbe). A potenciál programnak (10. C ábra) megfelelő egymást követő ciklusok során, amikor a felületet újra telítettem CO-val, a következő ciklusokban (10. B ábra *c* és *d* görbe) nem kaptam vissza az első voltammogramot (10. A ábra), ami azzal magyarázható, hogy a CO oxidációja mellett egy másik folyamat is lejátszódik, mégpedig az eredmények szerint a molibdén oxidációja.

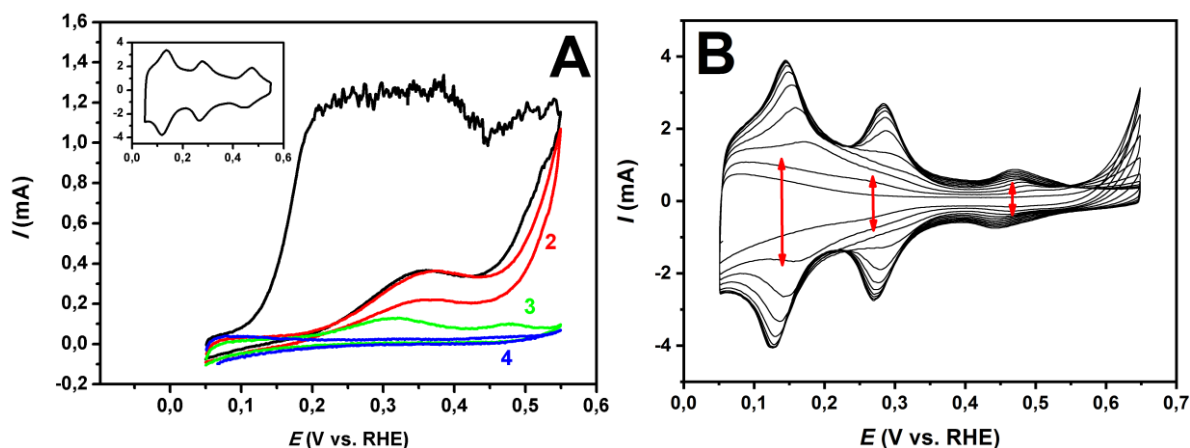
T6. Pt-Mo modell felületek vizsgálata során kimutattuk, hogy a platina elektródra leválasztott molibdén monoréteg kb. 20-25%-a irreverzibilisen kötődik a felületen még a (VI) állapotba történő (550 mV-nál pozitívabb potenciálra történő polarizáció) oxidációt követően is. Ez a borítottság elegendő a Pt felület szén-monoxid-tűrő képességének jelentős növeléséhez. [4]



11. ábra: (A) Mo-Pt/Pt elektród ciklikus voltammogramjai az 50 mV-on, 5 percig történő molibdén leválasztás után; tiszta, molibdén mentes 0,5 M H_2SO_4 oldatban rögzítve. 1. görbe: 1. ciklus, 2. görbe: 3. ciklus, 3. görbe (szaggatott vonal): a módosítatlan Pt/Pt elektród ciklikus voltammogramja 0,5 M H_2SO_4 -ben. (B) A Mo-Pt/Pt elektród ciklikus polarizációjának folytatása 0,5 M H_2SO_4 -ben. A feltüntetett számok a ciklusok számát jelölik.

A 11. A ábrán bemutatott ciklikus voltammogramokon látható, hogy a Pt/Pt elektródra 50 mV-on irreverzibilisen leválasztott kezdeti molibdén monoréteg bizonyos része (20-25 %) +6 állapotba történő oxidáció után, hosszabb ciklikus polarizáció ellenére is (11. B ábra) meglehetősen stabilnak bizonyult. Ez a felületi molibdén akár nagyobb pozitív potenciálokig (1000 mV) történő polarizáció után is visszaredukálható a +4 állapotba.

T7. A Pt-Mo modell felületek vizsgálata során kimutattuk, hogy csak a Mo(IV) ionokat tartalmazó Pt felület aktív az alacsony potenciálon végbemenő CO oxidációban. Az irreverzibilisen kötött, 550 mV-nál pozitívabb potenciálon (VI) állapotban lévő molibdén visszaredukálható, és így a katalizátor aktivitása helyreállítható. A redukcióhoz azonban CO mentes Pt felület szükséges.[4]



12. ábra: (A) A Mo-Pt/Pt elektród (a molibdén borítottság kb. 25 %) ciklikus polarizációja 0,5 mV/s polarizációs sebességgel, CO-val telített és buborékolgatott 0,5 M H_2SO_4 oldatban. A számok a ciklusok számát jelzik. A beszűrt ábrán: ugyanazon elektród ciklikus voltammogramja Ar-nal öblített 0,5 M H_2SO_4 -ben, 10 mV/s polarizációs sebességgel. (B) Szén-monoxiddal borított Mo-Pt/Pt elektród ciklikus voltammogramjai tiszta, Ar-nal öblített 0,5 M-os H_2SO_4 -ban. A nyilak a változások irányát jelzik.

A felületen irreverzibilisen kötött részleges (20-25 %) molibdén monoréteg elég ahhoz, hogy jelentősen megváltoztassa a platina felület CO mérgeződési tulajdonságait (12. A ábra). Azonban a Mo-Pt/Pt elektród teljesen elvesztette a CO-tűrő képességét a 50 mV-tól 550 mV-ig terjedő ciklikus polarizációk hatására (12. A ábra 4. görbe). Az 550 mV-os felső potenciál határ magasabb, mint a Mo (IV)→Mo (VI) átalakuláshoz szükséges potenciál, ez arra utal, hogy csak a Mo (IV) által módosított platina aktív az alacsony potenciálú CO oxidációban. Ez a viselkedés analóg a 20 m/m% Pt/Ti_{0,6}Mo_{0,4}O₂-C katalizátoron tapasztaltakkal. A (VI) állapotban lévő molibdén visszaredukálható a +4 oxidációs állapotba, és így a katalizátor aktivitása helyreállítható, azonban a redukció feltétele CO mentes Pt felület (12. B ábra).

Közlemények

MTMT azonosító: 10040794

AZ ÉRTEKEZÉS ANYAGÁT KÉPEZŐ KÖZLEMÉNYEK

1. D. Gubán, A. Tompos, I. Bakos, Á. Vass, Z. Pászti, E. Gy. Szabó, I. E. Sajó, I. Borbáth: Preparation of CO-tolerant anode electrocatalysts for polymer electrolyte membrane fuel cells. *INTERNATIONAL JOURNAL OF HYDROGEN ENERGY* 42:(19) pp. 13741-13753. (2017) **IF.: 4,229**
2. Á. Vass, I. Borbáth, Z. Pászti, I. Bakos, I. E. Sajó, P. Németh, A. Tompos: Effect of Mo incorporation on the electrocatalytic performance of Ti–Mo mixed oxide–carbon composite supported Pt electrocatalysts. *REACTION KINETICS MECHANISMS AND CATALYSIS* 121:(1) pp. 141-160. (2017) **IF.: 1,515**
3. Á. Vass, I. Borbáth, I. Bakos, Z. Pászti, I. E. Sajó, A. Tompos: Novel Pt Electrocatalysts: Multifunctional Composite Supports for Enhanced Corrosion Resistance and Improved CO Tolerance. *TOPICS IN CATALYSIS* 61: (12-13) pp. 1300-1312. (2018) **IF.: 2,439**
4. I. Bakos, I. Borbáth, Á. Vass, Z. Pászti, A. Tompos: Design and investigation of molybdenum modified platinum surfaces for modeling of CO tolerant electrocatalysts. *TOPICS IN CATALYSIS* 61: (14) pp. 1385–1395p. (2018) **IF.: 2,439**
5. Á. Vass, I. Borbáth, I. Bakos, Z. Pászti, Gy. Sáfrán, A. Tompos: Stability issues of CO tolerant Pt-based electrocatalysts for polymer electrolyte membrane fuel cells: comparison of Pt/Ti_{0.8}Mo_{0.2}O₂-C with PtRu/C. *REACTION KINETICS MECHANISMS AND CATALYSIS* 126: (2) pp. 679–699. (2019). **IF(2017/2018): 1.515**

Összesített IF.: 12,137

EGYÉB KÖZLEMÉNYEK

6. Á. Vass, P. Berki, N. Zoltán, B. Réti, K. Hernádi: Preparation and characterization of multiwalled carbon nanotube/WO₃ composite materials. *PHYSICA STATUS SOLIDI B-BASIC RESEARCH* 250:(12) pp. 2554-2558. (2013) **IF.:1,605**
7. Vass Á., Tálás E., Pászti Z., Szijjártó G., Veres M., Tompos A.: Új típusú Pt-GaN/ZnO fotokatalizátorok előállítása és vizsgálata. XXXVII. Kémiai Előadói Napok: Program és előadás-összefoglalók. 2014. pp. 87-91. (ISBN:978-963-9970-53-3)
8. Vass Á., Pászti Z., Tálás E., Bálint Sz., Németh P., Tompos A.: Ga₂O₃ katalizátorok szerkezeti átalakulása fotokatalitikus metanol reformálás alatt. XXXVIII. Kémiai Előadói Napok: Program és előadás-összefoglalók. 2015. pp. 134-138. (ISBN:978-963-9970-64-9)
9. Borbáth I., Pászti Z., Gubán D., Vass Á., Tompos A.: CO toleráns anódoldali elektrokatalizátorok fejlesztése PEM tüzelőanyag-cellákhoz. *MAGYAR KÉMIAI FOLYÓIRAT - KÉMIAI KÖZLEMÉNYEK (1997-)* 121:(2-3) pp. 80-88. (2015)
10. Vass Á., Korhammer K., Mihály J., Trif L., Tompos A., Tálás E.: Kalcium klorid-, magnézium klorid - alkohol rendszerek alkalmazása hőtárolásra szolgáló reverzibilis szolvát képzési reakciókban. XXXIX. Kémiai Előadói Napok: Program és előadás-összefoglalók. 2016. pp. 141-145. (ISBN:978-963-9970-73-1)
11. Vass Á., Tompos A., Bakos I., Pászti Z., Szabó Gy. E., Sajó E. I., Borbáth I.: CO-toleráns elektrokatalizátorok előállítása és vizsgálata. XXXIX. Kémiai Előadói Napok: Program és előadás-összefoglalók. 2016. pp. 146-150. (ISBN:978-963-9970-73-1)

12. Á. Vass, Z. Pászti, Sz. Bálint, P. Németh, G. Szijjártó, A. Tompos, E. Tálás: Structural evolution in Pt/Ga-Zn-oxynitride catalysts for photocatalytic reforming of methanol. **MATERIALS RESEARCH BULLETIN** **83**: pp. 65-76. (2016) **IF.: 2,446**
13. Gubán D., Tompos A., Bakos I., Pászti Z., Gajdos G., Vass Á., Borbáth I.: Irányított felületi reakciók alkalmazása PEM tüzelőanyag-elem katalizátorok előállítására. XXXIX. Kémiai Előadói Napok: Program és előadás-összefoglalók. 2016. pp. 90-94. (ISBN:978-963-9970-53-3)
14. Á. Vass, Z. Pászti, Sz. Bálint, P. Németh, A. Tompos, E. Tálás: Structural transformation of Ga₂O₃-based catalysts during photoinduced reforming of methanol. **MATERIALS RESEARCH BULLETIN** **95**: pp. 71-78. (2017) **IF.: 2,873**
15. Vass Á., Borbáth I., Bakos I., Pászti Z., Tompos A.: Ti-Mo vegyes-oxid-szén kompozit hordozós Pt elektrokatalizátor CO-toleráns viselkedésének vizsgálata. XL. Kémiai Előadói Napok: Program és előadás-összefoglalók. 2017. pp. 231-235. (ISBN:978-963-9970-83-0)
16. I. Borbáth, D. Gubán, I. Bakos, Z. Pászti, G. Gajdos, I. E. Sajó, Á. Vass, A. Tompos: Exclusive formation of alloy phases via anchoring technique - from bimetallic catalysts to electrocatalysis. **CATALYSIS TODAY** **306**: pp. 58-70. (2018) **IF.: 4,667**
17. Majrik K. , Turcsányi Á., Vass Á., Szabó T., Pászti Z., Bonura G., Tompos A., Tálás E.: AgO_x/TiO₂ katalizátorok viselkedése glicerín fotokatalitikus reformálási reakciójában: A ko-katalizátorok hatása. XLI. Kémiai Előadói Napok: Program és előadás-összefoglalók. 2018. pp. 122-125. (ISBN:978-963-9970-95-3)
18. K. Korhammer, J. Mihály, Sz. Bálint, L. Trif, Á. Vass, A. Tompos, E. Tálás: Reversible formation of alcohol solvates and their potential use for heat storage. **JOURNAL OF THERMAL AND CALORIMETRY** (2019) **IF.: 2,209**
19. Vass Á., Borbáth I., Bakos I., Pászti Z., Tompos A.: A molibdén hatása a platina elektrokatalizátorok szén-monoxid oxidációs tulajdonságaira. XLI. Kémiai Előadói Napok: Program és előadás-összefoglalók. 2018. pp. 129-132. (ISBN:978-963-9970-95-3)

Összesített IF.: 13,800

AZ ÉRTEKEZÉS TÉMÁJÁHOZ KAPCSOLÓDÓ ELŐADÁSOK

1. Á. Vass, I. Borbáth, I. Bakos, E. Gy. Szabó, A. Tompos: Preparation and characterization of Ti_(1-x)Mo_xO₂-C/Pt electrocatalysts for PEM fuel cell. The 13th Pannonian International Symposium on Catalysis, Siófok, 2016. Szeptember 19-23.
2. Vass Á., Tompos A., Bakos I., Pászti Z., Szabó Gy. E., Sajó E. I., Borbáth I.: CO-toleráns elektrokatalizátorok előállítása és vizsgálata. XXXIX. Kémiai Előadói Napok, Szeged, 2016. október 17-19.
3. Á. Vass, E. Tálás, I. Borbáth, Z. Pászti, I. Bakos, I. Sajó, K. Szijjártóné Majrik, G. Szijjártó, A. Tompos: Preparation and characterization of TiO₂ based electro- and photocatalysts. Nano Materials and BioMaterials for the next Decade (MoDeSt Workshop), Pantelleria, Olaszország 2017. július 5-7.
4. Á. Vass, I. Borbáth, I. Bakos, Z. Pászti, P. Németh, I. E. Sajó, A. Tompos: CO tolerant behavior of Ti-Mo mixed oxide-carbon composite supported Pt electrocatalyst. 13th European Congress on Catalysis- A Bridge to the future (EUROPACAT 2017) Firenze, Olaszország, 2017. Augusztus 27-31.-*poszter*

5. Vass Á., Borbáth I., Bakos I., Pászti Z., Tompos A.: Ti-Mo vegyes-oxid-szén kompozit hordozós Pt elektrokatalizátor CO-toleráns viselkedésének vizsgálata. XL. Kémiai Előadói Napok, Szeged, Magyarország, 2017. október 16-18.
6. Vass Á., Borbáth I., Bakos I., Pászti Z., Tompos A.: Ti-Mo vegyes-oxid-aktív szén kompozit hordozós Pt elektrokatalizátor CO toleráns viselkedésének vizsgálata. Anyag- és Környezetkémiai Intézet Szeminárium, Budapest, 2018. február 13.
7. Á. Vass, I. Borbáth, Z. Pászti, I. Bakos, I. E. Sajó, P. Németh, A. Tompos: Investigation of Mo-containing Pt-based electrocatalyst with improved CO tolerance for PEM fuel cells. 1st International Conference on Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis, Budapest, 2018. Június 6-9.
8. Á. Vass, I. Borbáth, I. Bakos, Z. Pászti, A. Tompos.: Design and investigation of molybdenum modified platinum surfaces for modeling of CO tolerant electrocatalysts. 14th Pannonian International Symposium on Catalysis, Starý Smokovec, Szlovákia, 2018. szeptember 3-7.
9. Vass Á., Tompos A.: Szén-monoxid-tűrő katalizátorok tüzelőanyag-elemekhez. Elektrokémiai Munkabizottsági ülés, Budapest, 2018. szeptember 19.
10. Vass Á., Borbáth I., Bakos I., Pászti Z., Tompos A.: A molibdén hatása a platina elektrokatalizátorok szén-monoxid oxidációs tulajdonságaira. XLI. Kémiai Előadói Napok, Szeged, Magyarország, 2018. október 15-17.
11. Vass Á.: Szén-monoxid-tűrő katalizátorok tüzelőanyag-elemekhez. Katalízis Munkabizottsági ülés, Szeged, 2018. december 11.

EGYÉB ELŐADÁSOK

12. Vass Á., Berki P., Hernádi K.: MWCNT/WO₃ kompozit anyagok előállítása és vizsgálata. XXXVI. Kémiai Előadói Napok, Szeged, 2013. október 28-30.
13. Á. Vass, E. Talas, Sz. Bálint, P. Németh, A. Tompos.: New types of Pt-GaN/ZnO photocatalysts for hydrogen production. The 12th Pannonian International Symposium on Catalysis, Trest, Csehország, 2014. szeptember 16-20.
14. Á. Vass, A. Tompos, Z. Pászti, E. Drotár, Sz. Bálint, M. Veres, E. Tálás: Pt-GaN/ZnO catalyst system for methanol photocatalytic reforming. Photocatalysis for energy [PHOTO4E] Lyon, Franciaország, 2014. október 15-17.-*poszter*
15. Vass Á., Tálás E., Pászti Z., Szijjártó G., Veres M., Tompos A.: Új típusú Pt-GaN/ZnO fotokatalizátorok előállítása és vizsgálata. XXXVII. Kémiai Előadói Napok, Szeged, 2014. november 3-5.
16. Vass Á., Tálás E., Pászti Z., Drotár E., Sajó E. I., Tompos A.: Preparation and characterization of GaN-ZnO photocatalysts. I. Innovation in Science - Doctoral Student Conference, Szeged, 2014. május 2-3.
17. Vass Á., Pászti Z., Tálás E., Bálint Sz., Németh P., Tompos A.: Ga₂O₃ katalizátorok szerkezeti átalakulása fotokatalitikus metanol reformálás alatt. XXXVIII. Kémiai Előadói Napok, Szeged, 2015. október 26-28.
18. Vass Á., Tálás E., Gubán D., Tompos A., Korhammer K.: Hőtárolási lehetőségek inorganikus sók és alkoholok reverzibilis reakciói segítségével. PhD Hallgatók 2. Környezettudományi Konferenciája, Budapest, 2016. április 26.-*poszter*

19. Vass Á., Tálas E., Tompos A., Korhammer K.: Hőtárolási lehetőségek inorganikus sók és alkoholok reverzibilis reakciói segítségével. Mini-conference on biomass, waste and renewable energy, Budapest, 2016. június 6.-*poszter*
20. Vass Á., Korhammer K., Mihály J., Trif L., Tompos A., Tálas E.: Kalcium klorid-, magnézium klorid - alkohol rendszerek alkalmazása hőtárolásra szolgáló reverzibilis szolvát képzési reakciókban. XXXIX. Kémiai Előadói Napok, Szeged, 2016. október 17-19.
21. Majrik K., Turcsányi Á., Vass Á., Szabó T., Pásztai Z., Bonura G., Tompos A., Tálas E.: AgO_x/TiO₂ katalizátorok viselkedése glicerinnel fotokatalitikus reformálási reakciójában: A katalizátorok hatása. XLI. Kémiai Előadói Napok, Szeged, Magyarország, 2018. október 15-17.