

ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΗΣ ΠΡΟΣΘΗΚΗΣ Mg²⁺ ΚΑΙ La³⁺ ΣΤΙΣ ΦΥΣΙΚΟΧΗΜΙΚΕΣ ΙΔΙΟΤΗΤΕΣ ΚΑΙ ΣΤΗΝ ΑΠΟΔΟΣΗ ΤΟΥ ΚΑΤΑΛΥΤΗ Li/CEO₂ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΝΤΙΔΡΑΣΗ ΤΗΣ ΟΞΕΙΔΩΤΙΚΗΣ ΣΥΖΕΥΞΗΣ CH₄**Γιώργος Σιακαβέλας¹, Νικόλαος Δ. Χαρισίου¹, Αγγελική Λάτσιου¹, Μαρία Πατακούρα¹, Βασίλης Λάτσιος¹, Ιωάννης Γεντεκάκης², Μαρία Α. Γούλα^{1,*}**¹Εργαστήριο Εναλλακτικών Καυσίμων και Περιβαλλοντικής Κατάλυσης, Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Δυτικής Μακεδονίας, Κοίλα, Κοζάνη 50100, Ελλάδα²Εργαστήριο Φυσικοχημείας & Χημικών Διεργασιών, Σχολής Χημικών Μηχανικών και Μηχανικών Περιβάλλοντος, Χανιά 73100, Ελλάδα[*mgoula@uowm.gr](mailto:mgoula@uowm.gr)**ΠΕΡΙΛΗΨΗ**

Το βιο-CH₄ μπορεί να χρησιμοποιηθεί σε διάφορες εφαρμογές (π.χ., θέρμανση, παραγωγή ενέργειας, χρήσιμα χημικά προϊόντα) παρόμοιες με αυτές του φυσικού αερίου. Μια διεργασία που αξίζει να διερευνηθεί περαιτέρω, είναι η αντίδραση της οξειδωτικής σύζευξης του CH₄ (ΟΣΜ), καθώς μετατρέπει άμεσα το βιο-CH₄ σε χρήσιμους υδρογονάνθρακες αυξημένης προστιθέμενης αξίας, όπως το C₂H₄ [1]. Η αντίδραση της ΟΣΜ είναι μια εξώθερμη αντίδραση που συνήθως πραγματοποιείται καταλυτικά σε θερμοκρασιακό εύρος μεταξύ 700 και 900°C μέσω ενός ετερογενούς - ομογενούς μηχανισμού σχηματίζοντας C₂H₆ ή/και C₂H₄, νερό και θερμότητα [2]. Στην παρούσα εργασία παρουσιάζεται η πειραματική μελέτη της καταλυτικής απόδοσης μια σειράς υποστρωμάτων CeO₂ (Ce, Mg-Ce και La-Mg-Ce) και καταλυτών Li/CeO₂ τροποποιημένοι με ιόντα Mg²⁺ ή/και La³⁺. Τα υποστρώματα των καταλυτών παρασκευάστηκαν με τη μέθοδο sol-gel παρουσία μικροκυμάτων [2], ενώ η προσθήκη των ιόντων Li⁺ μέσω της τεχνικής του υγρού εμποτισμού. Για τη μελέτη της μορφολογίας και των φυσικοχημικών ιδιοτήτων χρησιμοποιήθηκε πληθώρα τεχνικών χαρακτηρισμού, ήτοι: Φασματοσκοπία Raman, XRD, BET, CO₂-TPD, H₂-TPR, XPS και SEM. Όσον αφορά τη μελέτη της καταλυτικής απόδοσης, τα πειράματα πραγματοποιήθηκαν μεταξύ 600 και 870°C, σε ατμοσφαιρική πίεση και χρησιμοποιώντας διαφορετικές αναλογίες τροφοδοσίας CH₄:O₂ και διαφορετική ταχύτητα χώρου (WGHSV). Από τα πειράματα της καταλυτικής δραστηριότητας των φορέων και των ενισχυμένων καταλυτών με Li⁺, εξάγονται τα παρακάτω συμπεράσματα. Αρχικά, οι χαμηλές τιμές ειδικής επιφάνειας, η ύπαρξη μέτριας ισχύος βασικές θέσεις, η αυξημένη συγκέντρωση κενών θέσεων οξυγόνου και η παρουσία ηλεκτρόφιλων ειδών οξυγόνου στην επιφάνεια του καταλύτη είχαν κρίσιμο ρόλο στη βελτίωση της καταλυτικής απόδοσης. Σημειώνεται ότι η προσθήκη Li⁺ άλλαξε την κατανομή των προϊόντων, με τις τιμές εκλεκτικότητας σε υδρογονάνθρακες C₂ να βρίσκονται ή/και να ξεπερνούν το 85%. Συγκεκριμένα, ο καταλύτης Li/Mg-Ce παρουσίασε τον υψηλότερο πληθυσμό ενδιάμεσων βασικών θέσεων και επιφανειακών ειδών οξυγόνου, βελτιωμένη απόδοση όσον αφορά τις τιμές X_{CH₄} και Y_{C₂H₄}. Τέλος, οι μικρότερες τιμές αναλογίας CH₄:O₂ κατέστειλαν την παραγωγή υδρογονανθράκων, ενώ οι αυξημένοι χρόνοι παραμονής ευνόησαν την αντίδραση της αφυδρογόνωσης του C₂H₆ σε C₂H₄.

ΛΕΞΕΙΣ ΚΛΕΙΔΙΑ: Ενισχυμένοι καταλύτες σε φορέα CeO₂, κενές θέσεις οξυγόνου, ηλεκτρόφιλα είδη οξυγόνου, παραγωγή C₂H₄.

ΑΝΑΦΟΡΕΣ

- [1]. Siakavelas G.I., Charisiou N.D., Alkhoori A., Sebastian V., Hinder S.J., Baker M.A., Yentekakis I.V., Polychronopoulou K., Goula M.A. (2022). *J. Environ. Chem. Eng.* 10 (2): 107259.
- [2]. Keller G.E., Bhasin M.M. (1982). Synthesis of ethylene via oxidative coupling of methane. I. Determination of active catalyts. *J. Catal.* 73 (1982) 9-19.