

ΜΕΘΑΝΟΠΟΙΗΣΗ ΤΟΥ CO₂ ΜΕ ΧΡΗΣΗ ΚΑΤΑΛΥΤΩΝ Ni/Pr-CeO₂: ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΗΣ ΜΕΘΟΔΟΥ ΠΑΡΑΣΚΕΥΗΣ ΤΟΥ ΥΠΟΣΤΡΩΜΑΤΟΣ ΚΑΙ ΤΡΟΠΟΠΟΙΗΣΗΣ ΜΕ ΕΥΓΕΝΕΣ ΜΕΤΑΛΛΟ

A.I. Τσιότσιας¹, N.Δ. Χαρισίου¹, A. Μπέτσκα¹, V. Sebastian², K. Πολυχροπούλου³, M.A. Γούλα^{1,*}

¹ Εργαστήριο Εναλλακτικών Καυσίμων και Περιβαλλοντικής Κατάλυσης (LAFEC), Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Δυτικής Μακεδονίας, 50100, Κοίλα, Κοζάνης

² Department of Chemical Engineering and Environmental Technology, Universidad de Zaragoza, Campus Río Ebro-Edificio I+D, 50018 Zaragoza, Spain

³ Department of Mechanical Engineering, Khalifa University of Science and Technology, Abu Dhabi, P.O. Box 127788, UAE

* mgoula@uowm.gr

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Η αξιοποίηση του CO₂ μέσω της υδρογόνωσης του για την παραγωγή συνθετικού φυσικού αερίου βρίσκει εφαρμογή στην αποθήκευση της ανανεώσιμης ενέργειας, αλλά και σε διαστημικές αποστολές [1]. Οι καταλύτες με βάση το νικέλιο (Ni) προτιμώνται για την αντίδραση αυτή λόγω του χαμηλού τους κόστους, ενώ η χρήση CeO₂ και τροποποιημένου CeO₂ ως υπόστρωμα οδηγεί σε ιδιαίτερα ενεργούς και εκλεκτικούς καταλύτες Ni, λόγω της ικανότητας της CeO₂ να δεσμεύει και να ενεργοποιεί το CO₂, αλλά και της μεγάλης κινητικότητας των πλεγματικών ατομών οξυγόνου [2,3]. Η τροποποίηση της μεθόδου σύνθεσης του υποστρώματος και η εισαγωγή δευτέρου μετάλλου (διμεταλλικοί καταλύτες) μπορεί επίσης να ευνοήσει την καταλυτική ενεργότητα [1-3]. Στην παρούσα εργασία, η μεθανοποίηση του CO₂ πραγματοποιήθηκε με τη χρήση καταλυτών Ni (10% Ni) και Ni-Ru (10% Ni, 1% Ru) υποστηριγμένων σε CeO₂ τροποποιημένο με Pr (10% κατά mol). Το υπόστρωμα Ce_{0.9}Pr_{0.1}O_{2-δ} παρασκευάστηκε με διάφορες μεθόδους τύπου sol-gel, όπως citrate sol-gel, Pechini και modified Pechini. Οι μέθοδοι citrate sol-gel και Pechini οδήγησαν σε μικρούς πόρους στο υπόστρωμα, οι οποίοι μπλοκάρωνταν εύκολα μετά τον εμποτισμό του Ni, οδηγώντας σε μεγάλη πτώση του πορώδους και δημιουργία μεγάλων νανοσωματιδίων Ni. Αντίθετα, η μέθοδος modified Pechini οδήγησε σε μέσο-/μακροπορώδη δομή με μεγάλο όγκο πόρων, κάτι που ευνόησε τη δημιουργία μικρών νανοσωματιδίων Ni (≈ 12 nm). Σαν αποτέλεσμα της διατήρησης του πορώδους, της καλύτερης διασποράς του Ni, αλλά και της πληθώρας επιφανειακών βασικών θέσεων χαμηλής ισχύος, ο καταλύτης Ni υποστηριγμένος σε Ce_{0.9}Pr_{0.1}O_{2-δ} παρασκευασμένο με μέθοδο modified Pechini εμφάνισε αρκετά μεγαλύτερη καταλυτική ενεργότητα. Η περαιτέρω τροποποίηση του καταλύτη με εισαγωγή 1% Ru οδήγησε σε περαιτέρω αύξηση της καταλυτικής ενεργότητας, ιδιαίτερα σε χαμηλές θερμοκρασίες, ενώ ο διμεταλλικός καταλύτης Ni-Ru ήταν ιδιαίτερα σταθερός για 50 h στους 325 °C με τιμές μετατροπής > 80%. Σε αντίθεση με το Ni, το Ru βρέθηκε ατομικά διεσπαρμένο, ή με τη μορφή πολύ μικρών νανοσωματιδίων, στο διμεταλλικό καταλύτη, σχηματίζοντας με ετεροδομή απουσία σχηματισμού κράματος Ni-Ru.

ΛΕΞΕΙΣ ΚΛΕΙΔΙΑ: Μεθανοποίηση του CO₂, Καταλύτες Ni, Μέθοδος Σύνθεσης, Πορώδες, Διμεταλλικοί Καταλύτες.

ΑΝΑΦΟΡΕΣ

[1] Vogt, C., Monai, M., Kramer, G.J., & Weckhuysen, B.M. (2019). *Nat. Catal.* 2 (3): 188-197.

[2] Siakavelas, G.I., Charisiou, N.D., Alkhoori, S., Alkhoori, A.A., Sebastian, V., Hinder, S.J., Baker, M.A., Yentekakis, I.V., Polychronopoulou, K., & Goula, M.A. (2021). *Appl. Catal. B: Environ.* 282: 119562.

[3] Tsiotsias, A.I., Charisiou, N.D., Yentekakis, I.V., & Goula, M.A. (2021). *Nanomaterials* 11 (1): 28