

**ΜΕΛΕΤΗ ΝΕΩΝ ΚΑΤΑΛΥΤΩΝ Co-Ce ΓΙΑ ΤΗΝ ΚΑΤΑΛΥΤΙΚΗ ΟΞΕΙΔΩΣΗ ΜΕΘΑΝΙΟΥ**

**Σ. Δάρδα<sup>1</sup>, Ε. Παχατουρίδου<sup>1</sup>, Α. Λάππας<sup>1</sup>, Σ. Μπογοσιάν<sup>2</sup>, Κ. Μουλάρας<sup>3</sup>, Ι. Δεληγιαννάκης<sup>3</sup>,  
Ε.Φ. Ηλιοπούλου<sup>1,\*</sup>**

<sup>1</sup>Ινστιτούτο Χημικών Διεργασιών και Ενεργειακών Πόρων,

Εθνικό Κέντρο Έρευνας και Τεχνολογικής Ανάπτυξης, Θεσσαλονίκη, Ελλάδα

<sup>2</sup>Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Πατρών & ΙΤΕ/ΙΕΧΜΗ, Πάτρα, Ελλάδα

<sup>3</sup>Τμήμα Φυσικής, Πανεπιστήμιο Ιωαννίνων, Ιωάννινα, Ελλάδα

(\*[eh@cperi.certh.gr](mailto:eh@cperi.certh.gr))

**ΠΕΡΙΛΗΨΗ**

Οι εκπομπές CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O και CO<sub>2</sub> αποτελούν σήμερα το 98% των συνολικών αερίων του θερμοκηπίου παγκοσμίως, ενώ αναμένεται και περαιτέρω αύξηση τους. Το CH<sub>4</sub>, κύριο συστατικό του φυσικού αερίου, χρησιμοποιείται σε πολλές βιομηχανικές διεργασίες, καθώς και ως πηγή ενέργειας σε αεριοστροβίλους ή ως καύσιμο σε οχήματα τροφοδοτούμενα με φυσικό αέριο, η χρήση των οποίων αναμένεται να αυξηθεί ραγδαία στο άμεσο μέλλον. Ταυτόχρονα, το CH<sub>4</sub> αποτελεί ένα πολύ ισχυρότερο αέριο του θερμοκηπίου από το CO<sub>2</sub>, και έτσι ακόμη και μικρές διαρροές μεθανίου από την εφοδιαστική αλυσίδα του φυσικού αερίου μπορεί να μεταβάλλει δυσμενώς τα κλιματικά οφέλη της χρήσης φυσικού αερίου. Επίσης σε όλες τις παραπάνω εφαρμογές το μεθάνιο εμφανίζεται ως δευτερεύον προϊόν ή άκαυστη ένωση, ενώ μαζί με το CO, (επίσης πιθανό προϊόν διεργασιών ατελούς καύσης) αποτελούν σημαντικούς περιβαλλοντικούς ρύπους και απαιτούν τη χρήση/ανάπτυξη καταλυτών για την οξειδωτική τους μετατροπή <sup>[1, 2]</sup>. Οι συνηθέστεροι καταλύτες που έχουν μελετηθεί βασίζονται κυρίως σε ευγενή μέταλλα και μέταλλα μετάπτωσης, μεταξύ των οποίων ξεχωρίζουν τα Pt, Pd και μείγματά τους, στηριζόμενα σε υπόστρωμα μεταλλοξειδίων. Ωστόσο, οι καταλύτες αυτοί χαρακτηρίζονται από χαμηλή θερμική σταθερότητα και υψηλό κόστος. Έτσι, εναλλακτικά οξειδία μετάλλων μετάπτωσης αρχίζουν και κεντρίζουν το ενδιαφέρον, μεταξύ των οποίων και το οξείδιο του κοβαλτίου, το οποίο και θεωρείται ως το πιο αποτελεσματικό για την καύση του μεθανίου. Ταυτόχρονα πολλές ερευνητικές προσπάθειες έχουν επίσης εστιάσει σε καταλύτες με βάση το δημήτριο λόγω του χαμηλού τους κόστους και της ικανοποιητικής τους απόδοσης στην οξείδωση του CO αλλά και άλλων ελαφρύτερων υδρογονανθράκων. Πολύ πρόσφατα έχει αναφερθεί η ανάπτυξη νανοδομημένου καταλύτη Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/CeO<sub>2</sub>, με υψηλή δραστηριότητα στην πλήρη οξείδωση CH<sub>4</sub>, η οποία και αποδίδεται σε συνεργιστική δράση νανοράβδων CeO<sub>2</sub> (καταλυτικό υπόστρωμα) και των στηριζόμενων νανοσωματιδίων Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> <sup>[3]</sup>.

Η παρούσα μελέτη στοχεύει στην παρασκευή καινοτόμων καταλυτικών υλικών Co-Ce (εμποτισμός Co σε υπόστρωμα CeO<sub>2</sub> ή χρήση της τεχνικής flame spray pyrolysis), με στόχο την ενισχυμένη καταλυτική δραστηριότητα στην οξείδωση του CH<sub>4</sub>, μέσω βελτίωσης της οξειδο-αναγωγικής τους συμπεριφοράς και της υψηλής τους ικανότητας στην αποθήκευση οξυγόνου. Έτσι είτε γίνεται σύνθεση του υποστρώματος (χρήση μεθόδου καταβύθισης: CeO<sub>2</sub>-P ή υδροθερμικής μεθόδου: CeO<sub>2</sub>-H) και ακόλουθος ξηρός εμποτισμός του ενεργού μετάλλου (0, 2, 5 και 15% κ.β. Co) είτε χρήση της τεχνολογίας flame spray pyrolysis για την παρασκευή του καταλύτη σε ένα στάδιο και διερευνάται επίδραση της εκάστοτε μεθόδου παρασκευής στην καταλυτική απόδοση και σταθερότητα. Όλα τα καταλυτικά δείγματα χαρακτηρίστηκαν εκτενώς με συμβατικές (XRD, φυσιορόφηση N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>-TPR, O<sub>2</sub>-TPD) και προηγμένες (HR-TEM, *in situ* φασματοσκοπία Raman) τεχνικές χαρακτηρισμού. Απουσία Co παρατηρήθηκε περιορισμένη καταλυτική δραστηριότητα, η οποία ενισχύθηκε με την προσθήκη Co και βελτιώθηκε περαιτέρω με αύξηση του % ποσοστού του, ενώ η βέλτιστη καταλυτική συμπεριφορά φαίνεται να σχετίζεται με μικρό μέγεθος των κρυσταλλιτών CeO<sub>2</sub>, αυξημένη ειδική επιφάνεια και ενισχυμένη αναγωγισιμότητα των καταλυτών.

**ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ**

- [1] Clark NN, Johnson DR., McKain DL, Wayne WS, Li H, Rudek J, Mongold RA, Sandoval C, Covington AN, Hailer JT. (2017). *J. Air Wast Manag Ass*, 67(12): 1328–1341.
- [2] Farrauto RJ. (2012). *Science* 337: 659–660.
- [3] Dou J, Tang Y, Nie L, Andolina CM, Zhang X, House S, Li Y, Yang J, Tao F. (2018) *Cat. Today* 311: 48–55.