

**ΜΕΛΕΤΗ ΤΗΣ ΑΝΤΙΔΡΑΣΗΣ ΑΝΑΜΟΡΦΩΣΗΣ ΤΗΣ ΑΚΕΤΑΛΔΕΪΔΗΣ ΜΕ ΑΤΜΟ ΣΕ ΣΤΗΡΙΓΜΕΝΟΥΣ ΚΑΤΑΛΥΤΕΣ Co.****Μ. Κουρτελέσης\*, Α. Πουλάκη, Ξ. Βερύκιος**

Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Πατρών, Πάτρα, Ελλάδα

[\(\\*mkourtelesis@chemeng.upatras.gr\)](mailto:*mkourtelesis@chemeng.upatras.gr)**ΠΕΡΙΛΗΨΗ**

Στην παρούσα εργασία πραγματοποιήθηκε μελέτη της αντίδρασης αναμόρφωσης ακεταλδεΐδης με ατμό σε στηριγμένους καταλύτες Co. Αρχικά μελετήθηκε η επίδραση της μεταλλικής φόρτισης στην καταλυτική συμπεριφορά καταλυτών X% Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Η ενεργότητα βρέθηκε αυξάνεται με την αύξηση της μεταλλικής φόρτισης με τους καταλύτες 10 και 15 % Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> να εμφανίζουν την αποτελεσματικότερη συμπεριφορά ως προς την παραγωγή H<sub>2</sub>, με παραπλήσιες γενικά τιμές εκλεκτικότητας, μεγαλύτερες του 90% σε θερμοκρασίες πάνω από τους 430 °C. Οι εκλεκτικότητες προς το ανεπιθύμητο μεθάνιο κυμάνθηκαν κάτω από 10% ενώ ο σχηματισμός της ακετόνης βρέθηκε να λαμβάνει χώρα σε θέσεις του φορέα Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Στη συνέχεια, η καταλυτική συμπεριφορά των δειγμάτων Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> συγκρίθηκε με την αντίστοιχη ενός καταλύτη 20%Co/SiO<sub>2</sub>. Τα αποτελέσματα έδειξαν ότι ο καταλύτης με φορέα SiO<sub>2</sub> δεν οδηγεί στην παραγωγή ανεπιθύμητων παραπροϊόντων, ωστόσο είναι λιγότερο ενεργός καθώς απαιτούνται υψηλότερες θερμοκρασίες για να επιτευχθεί πλήρης μετατροπή της ακεταλδεΐδης. Τέλος, με στόχο την μελέτη της απενεργοποίησης των καταλυτών, πραγματοποιήθηκαν πειράματα σταθερότητας διάρκειας 8 h στους 430 και 480 °C. Τα χρησιμοποιημένα δείγματα χαρακτηρίστηκαν με πειράματα θερμοπρογραμματιζόμενης οξείδωσης τα οποία επιβεβαίωσαν ότι η ποσότητα του σχηματιζόμενου άνθρακα αυξάνεται με αύξηση της μεταλλικής φόρτισης. Από εικόνες TEM των χρησιμοποιημένων καταλυτών προέκυψε ο σχηματισμός γραφιτικού, νηματοειδούς καθώς και νανοσωλήνων άνθρακα. Ωστόσο, το μεγαλύτερο ποσοστό του σχηματιζόμενου άνθρακα είναι άμορφος άνθρακας.

**ΕΙΣΑΓΩΓΗ**

Το υδρογόνο έχει χαρακτηριστεί ιδανικό ως φορέας ενέργειας στην κατεύθυνση της ανάπτυξης εναλλακτικών πηγών ενέργειας με στόχο την απεξάρτηση από τα ορυκτά καύσιμα. Ιδιαίτερα ελκυστική είναι η παραγωγή υδρογόνου με ανανεώσιμο τρόπο, όπως από την αντίδραση αναμόρφωσης της βιοαιθανόλης, η οποία μπορεί να παραχθεί επίσης ανανεώσιμα από ποικίλες πηγές βιομάζας, δεν είναι τοξική ενώ η μεταφορά και αποθήκευση της θεωρείται εύκολη<sup>[1]</sup>. Από πρόσφατες μελέτες<sup>[2]</sup>, η αφυδρογόνωση της αιθανόλης προς παραγωγή ακεταλδεΐδης και υδρογόνου έχει βρεθεί να αποτελεί το πρώτο και σημαντικότερο βήμα του μηχανισμού της παραπάνω αντίδρασης. Η παραγόμενη ακεταλδεΐδη στη συνέχεια είτε διασπάται προς μεθάνιο και μονοξείδιο του άνθρακα, ή αναμορφώνεται. Έτσι, με στόχο τη μεγιστοποίηση του παραγόμενου υδρογόνου, η αντίδραση μπορεί να χωριστεί σε δύο στάδια με το πρώτο να αφορά την αφυδρογόνωση της αιθανόλης και το δεύτερο την αναμόρφωση της ακεταλδεΐδης. Οι καταλύτες που βασίζονται στο κοβάλτιο παρουσιάζουν ιδιαίτερο ενδιαφέρον για τη δεύτερη αντίδραση καθώς έχει αναφερθεί ότι οδηγούν σε μειωμένη παραγωγή μεθανίου<sup>[3]</sup>. Στην παρούσα εργασία μελετάται η ενεργότητα, εκλεκτικότητα και σταθερότητα στηριγμένων καταλυτών Co υπό συνθήκες αναμόρφωσης της ακεταλδεΐδης με ατμό.

**ΠΕΙΡΑΜΑΤΙΚΟ ΜΕΡΟΣ**

Οι στηριγμένοι καταλύτες Co παρασκευάστηκαν με τη μέθοδο του υγρού εμποτισμού με χρήση του Co(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O ως πρόδρομο άλας μετάλλου και των εμπορικών φορέων γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> και SiO<sub>2</sub>. Μετά τη σύνθεση, οι καταλύτες πυρώθηκαν στους 550 °C για 3h και στη συνέχεια ακολούθησε αναγωγή με H<sub>2</sub> στους 550 °C επίσης για 3h. Οι καταλύτες χαρακτηρίστηκαν ως προς

την ειδική τους επιφάνεια με την τεχνική της φυσικής ρόφησης αζώτου σε θερμοκρασία υγρού N<sub>2</sub> (B.E.T.) και ως προς την κρυσταλλική τους δομή με την τεχνική της περίθλασης ακτίνων X (XRD).

Η καταλυτική συμπεριφορά των στηριγμένων καταλυτών Co υπό συνθήκες αναμόρφωσης της ακεταλδεΐδης με ατμό μελετήθηκε στο θερμοκρασιακό εύρος 300-550 °C. Η σύσταση της τροφοδοσίας αποτελούνταν από 3.8 % CH<sub>3</sub>CHO και 11.2 % H<sub>2</sub>O, σε ισορροπία με He.

Για τη μελέτη της απενεργοποίησης των καταλυτών, πραγματοποιήθηκαν πειράματα σταθερότητας διάρκειας 8h στους 430 και 480 °C. Η σύσταση τροφοδοσίας παρέμεινε η ίδια ενώ ο χρόνος επαφής μεταβλήθηκε όπου αυτό απαιτούνταν ώστε η αρχική μετατροπή να κυμαίνεται μεταξύ 90 και 100%.

Μετά τα πειράματα σταθερότητας οι χρησιμοποιημένοι καταλύτες χαρακτηρίστηκαν με τις τεχνικές BET, XRD, ηλεκτρονικής μικροσκοπίας διέλευσης (TEM) καθώς και με πειράματα θερμοπρογραμματιζόμενης οξειδωσης (TPO) για τον υπολογισμό των εναποθέσεων άνθρακα.

## ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ ΚΑΙ ΣΥΖΗΤΗΣΗ

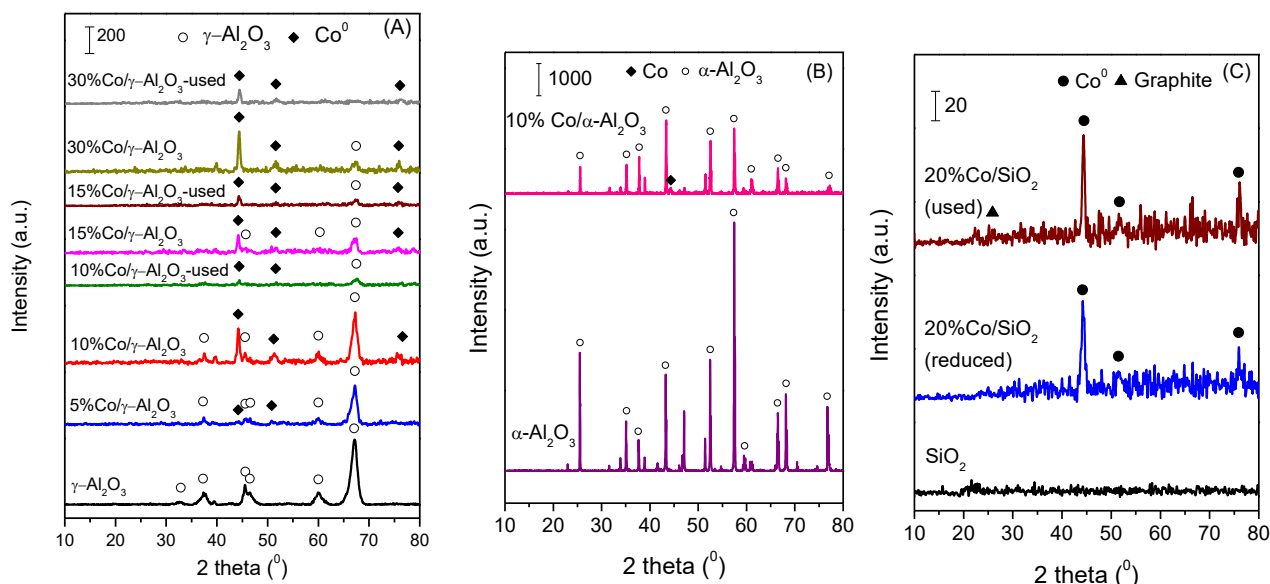
Στον Πίνακα 1 συνοψίζονται οι τιμές των ειδικών επιφανειών όλων των παραπάνω καταλυτών, τόσο μετά την αναγωγή όσο και μετά από πειράματα καταλυτικής σταθερότητας διάρκειας 8 h στους 480 °C, όπως υπολογίστηκε από μετρήσεις φυσικής ρόφησης N<sub>2</sub> (BET). Σε ό,τι αφορά τους φρέσκους καταλύτες, γίνεται αντιληπτό ότι στην περίπτωση των καταλυτών Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, η ειδική επιφάνεια μειώνεται από 67.9 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup> έως 50.2 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup> με αύξηση της μεταλλικής φόρτισης σε Co από 5 έως 30%. Επιπλέον, ο καταλύτης 10%Co/α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> παρασκευάστηκε με στόχο να μελετηθεί ο ρόλος του Co στην αντίδραση αναμόρφωσης της ακεταλδεΐδης με ατμό καθώς η ειδική του επιφάνεια είναι <1m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup>.

**Πίνακας 1.** Ειδική επιφάνεια των στηριγμένων καταλυτών Co

Καταλύτης	Μεταλλική Φόρτιση (% w.t.)	Ειδική Επιφάνεια Φρέσκου Καταλύτη (m <sup>2</sup> /g <sub>cat</sub> )	Ειδική Επιφάνεια Χρησιμοποιημένου Καταλύτη (m <sup>2</sup> /g <sub>cat</sub> )
Co/α-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10	0.9	-
Co/γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5	67.9	-
	10	66.0	61.6
	15	58.6	70.7
	30	50.2	76.9
Co/SiO <sub>2</sub>	20	132.6	138.3

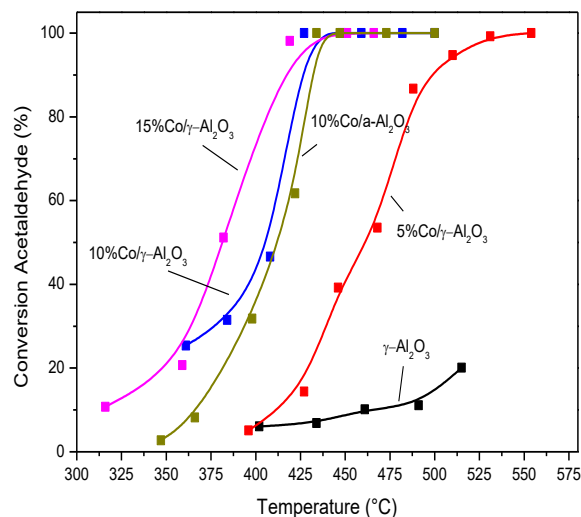
Στο Σχήμα 1, εμφανίζονται τα φάσματα XRD των καταλυτών Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> και Co/SiO<sub>2</sub> (φορείς, φρέσκοι και χρησιμοποιημένοι καταλύτες). Σε ό,τι αφορά τους φορείς, η σίλικα εμφανίζεται άμορφη, ενώ οι κορυφές των φορέων γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (JCPDS No:1-1307) και α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (JCPDS No:1-1296) μειώνονται ξεκάθαρα με την προσθήκη του Co και την αύξηση της φόρτισης σε μέταλλο. Επιπλέον, αναφορικά με το κοβάλτιο, τόσο μετά τη αναγωγή των καταλυτών όσο και για τους χρησιμοποιημένους καταλύτες, παρατηρείται η απουσία οξειδίων (CoO ή Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) καθώς οι κορυφές σε γωνίες 2θ=44.2 °, 2θ=51.6 ° και 2θ=75.7 ° (JCPDS No:1-1255) αντιστοιχούν σε Co που βρίσκεται στη μεταλλική του μορφή.

Στη συνέχεια, στο Σχήμα 2 παρουσιάζεται η διακύμανση της μετατροπής της ακεταλδεΐδης συναρτήσει της θερμοκρασίας για τους καταλύτες Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> και τον φορέα γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> κατά τα πειράματα ενεργότητας. Ο φορέας γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> εμφανίζεται πρακτικά ανενεργός για την αντίδραση αναμόρφωσης της ακεταλδεΐδης με ατμό στο μελετώμενο θερμοκρασιακό εύρος με τη μετατροπή να φτάνει το 20% στους 515 °C. Παρατηρείται ότι το προφίλ της μετατροπής της ακεταλδεΐδης σε όλους τους στηριγμένους καταλύτες Co παρουσιάζει μια απότομη αύξηση και φτάνει το 100% σε παρόμοιες θερμοκρασίες στο εύρος 420 – 435 °C για τους καταλύτες 15%Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 10%Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> και 10%Co/α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Ωστόσο, για τον καταλύτη 5%Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> απαιτούνται αρκετά υψηλότερες θερμοκρασίες (525 °C) για να γίνει πλήρης η μετατροπή της ακεταλδεΐδης.



**Σχήμα 1.** Τυπικά Φάσματα XRD των φορέων και των καταλυτών: (A) X% Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (B) X% Co/α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> και (C) X% Co/SiO<sub>2</sub>.

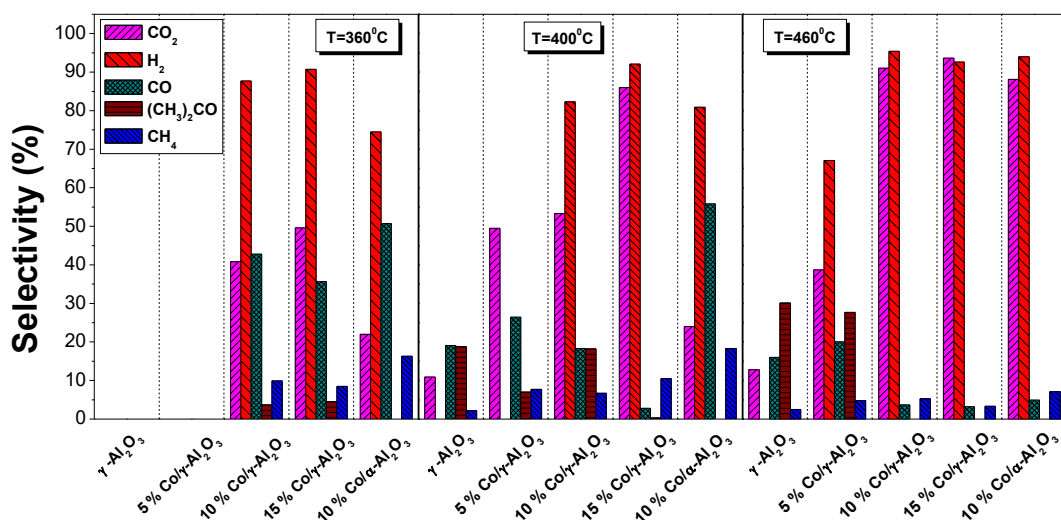
Όσον αφορά τη διακύμανση των εκλεκτικότητων των προϊόντων της αντίδρασης κατά τα πειράματα ενεργότητας, στο Σχήμα 3 παρουσιάζονται οι εκλεκτικότητες των κύριων προϊόντων της αντίδρασης (CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, CO, (CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>CO και CH<sub>4</sub>) για 3 θερμοκρασίες (360, 400 και 460 °C) στους καταλύτες με φορέα γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> και α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Αξίζει να σημειωθεί ότι στα παραπάνω πειράματα ανιχνεύτηκαν και παραπροϊόντα (κυρίως C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, κροτοναλδεΐδη κ.α.), οι εκλεκτικότητες των οποίων ήταν κατά κύριο λόγο, εκτός από την περίπτωση του φορέα γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, αμελητέες σε μετατροπές και θερμοκρασίες ενδιαφέροντος.



**Σχήμα 2.** Διάγραμμα της μετατροπής της ακεταλδεΐδης συναρτήσει της θερμοκρασίας κατά τα πειράματα ενεργότητας των καταλυτών Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Μάζα καταλύτη: 750mg, Συνολική Ροή: 236 cm<sup>3</sup> min<sup>-1</sup>, Σύσταση τροφοδοσίας: 3.8% CH<sub>3</sub>CHO, 12% H<sub>2</sub>O, ισορροπία με He).

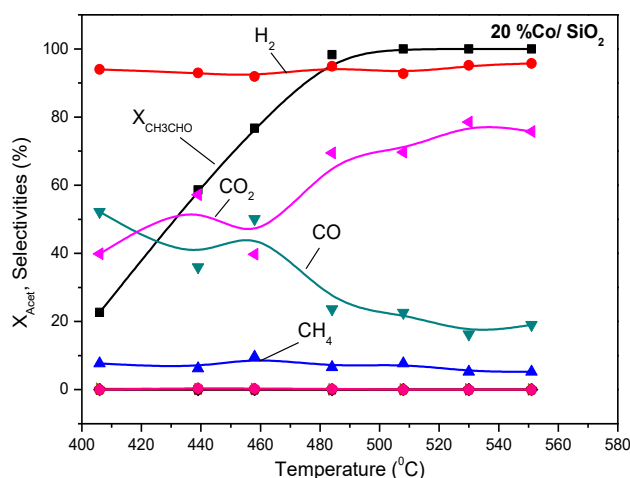
Παρατηρείται ότι οι καταλύτες 10 και 15% Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> εμφανίζουν την καλύτερη συμπεριφορά ως προς την παραγωγή H<sub>2</sub>, και μάλιστα με παραπλήσιες τιμές εκλεκτικότητας και στις τρεις θερμοκρασίες. Ο καταλύτης 10% Co/α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, εμφανίζει ελαφρώς μειωμένες τιμές εκλεκτικότητας για το υδρογόνο και ταυτόχρονα αυξημένη εκλεκτικότητα προς CO σε σχέση με τους καταλύτες 10 και 15%Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Επιπλέον, ενδιαφέρον παρουσιάζει η εκλεκτικότητα προς ακετόνη η οποία αν και αποτελεί βασικό προϊόν για την περίπτωση του φορέα γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, μειώνεται με αύξηση της περιεκτικότητας σε μέταλλο, ενώ απουσιάζει από τα προϊόντα του καταλύτη 10% Co/α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,

υποδηλώνοντας ότι ο σχηματισμός της ακετόνης λαμβάνει χώρα στην επιφάνεια του φορέα. Τέλος, σε ότι αφορά τον ανεπιθύμητο σχηματισμό  $\text{CH}_4$ , παρατηρείται ότι η εκλεκτικότητα προς μεθάνιο των καταλυτών  $\text{Co}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  είναι σταθερά μικρότερη από 10%, κάτι που δεν ισχύει για την περίπτωση του υποστηριγμένου σε  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  καταλύτη  $\text{Co}$  στον οποίο λαμβάνει γενικά υψηλότερες τιμές.



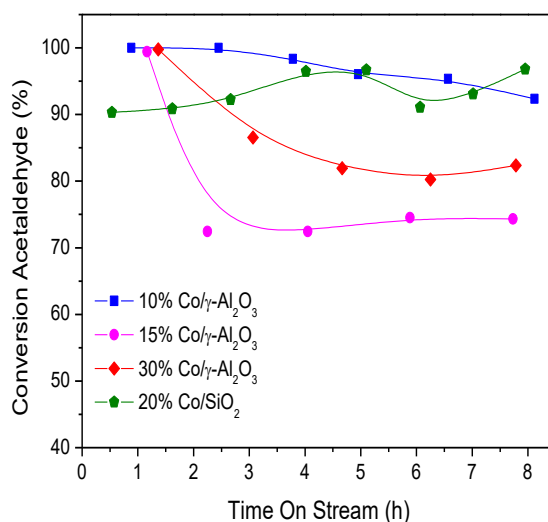
**Σχήμα 3.** Διάγραμμα της μεταβολής των εκλεκτικότητων των κύριων προϊόντων της αντίδρασης στους 360, 400 και 460 °C, κατά τα πειράματα ενεργότητας των καταλυτών  $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Εν συνεχεία, ένας καταλύτης 20 κ.β.%  $\text{Co}$  στηριγμένος στο γενικά αδρανές φορέα  $\text{SiO}_2$  παρασκευάστηκε και μελετήθηκε για την αντίδραση αναμόρφωσης της ακεταλδεΐδης με ατμό. Στο Σχήμα 4 παρουσιάζονται τα αποτελέσματα ως προς τη μετατροπή της ακεταλδεΐδης και οι εκλεκτικότητες των προϊόντων συναρτήσει της θερμοκρασίας αντίδρασης. Θερμοκρασίες πάνω από τους 480 °C απαιτούνται για την επίτευξη πλήρους μετατροπής της ακεταλδεΐδης, ελαφρώς υψηλότερες από τις αντίστοιχες για τους καταλύτες  $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$ . Από το Σχήμα προκύπτει ότι με αύξηση της μετατροπής ευνοείται η αντίδραση μετατόπισης, όπως προκύπτει από τη συμμετρική διακύμανση των εκλεκτικότητων του  $\text{CO}$  και του  $\text{CO}_2$ . Επίσης, αξίζει να σημειωθεί ότι η εκλεκτικότητα προς μεθάνιο παραμένει σταθερά κάτω από 10% σε όλο το εξεταζόμενο θερμοκρασιακό εύρος ενώ απουσιάζουν από τα προϊόντα της αντίδρασης το  $\text{C}_2\text{H}_4$ , η κροτοναλδεΐδη καθώς και η ακετόνη η οποία όπως αναφέρθηκε παραπάνω σχηματίζεται στην επιφάνεια του φορέα  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .



**Σχήμα 4.** Διάγραμμα της μεταβολής των εκλεκτικότητων των κύριων προϊόντων της αντίδρασης, κατά τα πειράματα ενεργότητας του καταλύτη 20%  $\text{Co}/\text{SiO}_2$ .

Αξίζει να σημειωθεί ότι κατά τη διάρκεια των πειραμάτων ενεργότητας παρατηρήθηκε αύξηση της πίεσης του συστήματος, η οποία ήταν εντονότερη όσο αυξανόταν η φόρτιση του Co, και η οποία πιθανότατα υποδηλώνει το σχηματισμό άνθρακα στην επιφάνεια του καταλύτη. Για το λόγο αυτό πραγματοποιήθηκαν στη συνέχεια πειράματα σταθερότητας για τον υπολογισμό των ανθρακικών επικαθίσεων στην επιφάνεια των καταλυτών. Οι θερμοκρασίες που επιλέχθηκαν ήταν 430 και 480 °C, στις οποίες πραγματοποιήθηκαν πειράματα διάρκειας 8 h. Η σύσταση τροφοδοσίας παρέμεινε η ίδια και η αρχική μετατροπή ήταν μεταξύ 90% και 100%. Προκειμένου η μετατροπή της ακεταλδεΐδης να παραμείνει στα επιθυμητά επίπεδα, ο λόγος W/F κυμάνθηκε μεταξύ 0.05 και 0.25 g s cm<sup>-3</sup>. Στο Σχήμα 5 παρουσιάζεται η διακύμανση της μετατροπής της ακεταλδεΐδης συναρτήσει του χρόνου αντίδρασης για τα πειράματα στους 480 °C. Παρατηρείται μια μικρή μείωση της δραστηριότητας του καταλύτη 10% Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> κατά τη διάρκεια της αντίδρασης η οποία γίνεται εντονότερη με αύξηση της φόρτισης των στηριγμένων σε Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> καταλυτών σε Co οι οποίοι φτάνουν σε ένα πλάτω σε τιμές μετατροπής 74.5 και 82% για τους καταλύτες φόρτισης 15 και 30% σε Co αντίστοιχα. Από την άλλη μεριά, ο καταλύτης Co/SiO<sub>2</sub> δεν φαίνεται να απενεργοποιείται κατά το διάστημα των 8 h καθώς η μετατροπή της ακεταλδεΐδης κυμαίνεται σταθερά μεταξύ 90 και 97%.



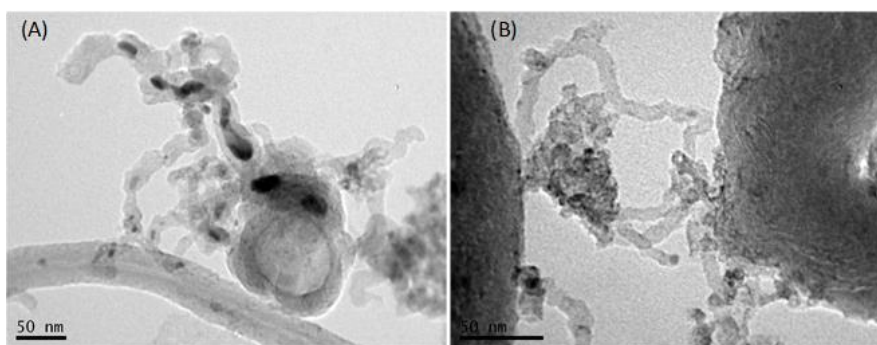
**Σχήμα 5.** Μετατροπή της ακεταλδεΐδης συναρτήσει του χρόνου αντίδρασης κατά τα πειράματα σταθερότητας διάρκειας 8 h στους 480 °C, των καταλυτών 10% Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 15% Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 30% Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> και 20% Co/SiO<sub>2</sub>.

Αμέσως μετά τα πειράματα σταθερότητας, πραγματοποιήθηκαν πειράματα θερμοπρογραμματιζόμενης οξείδωσης των καταλυτών με στόχο τον υπολογισμό του άνθρακα που σχηματίζεται στην επιφάνειά τους. Οι ποσότητες που υπολογίστηκαν παρατίθενται στον Πίνακα 2. Είναι εμφανές ότι, σε συνθήκες αναμόρφωσης της ακεταλδεΐδης με ατμό, ο άνθρακας εναποτίθεται στην επιφάνεια του μετάλλου καθώς η ποσότητά του αυξάνεται με αύξηση της φόρτισης σε Co.

**Πίνακας 2** Επικαθίσεις άνθρακα στους καταλύτες.

Καταλύτης	Ποσότητα ανθρακικών επικαθίσεων (mg C/g <sub>cat</sub> )	
	T=430 °C	T=480 °C
10% Co/γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	192.5	108.3
10% Co/α-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	609.4	-
15% Co/γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	241.9
30% Co/γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	454.9
20% Co/SiO <sub>2</sub>	-	202.4

Τα αποτελέσματα επιβεβαίωσαν το σχηματισμό άνθρακα στην επιφάνεια του Co, ο οποίος ευθύνεται για τη μείωση της δραστηριότητας των καταλυτών Co καθώς και την παρατηρούμενη αύξηση της πίεσης του συστήματος κατά τη διάρκεια των πειραμάτων. Επιπλέον, κατά τα πειράματα TPO (δεν παρουσιάζονται) οι κύριες κορυφές του CO<sub>2</sub> εμφανίστηκαν για όλους τους καταλύτες σε θερμοκρασίες μικρότερες από 550 °C, υποδεικνύοντας ότι ο σχηματιζόμενος άνθρακας είναι κατά κύριο λόγο άμορφος. Ωστόσο, οι φωτογραφίες TEM των χρησιμοποιημένων δειγμάτων (Σχήμα 6) φανέρωσαν τη δημιουργία νηματοειδούς άνθρακα, συχνά με τη μορφή νανοσωλήνων άνθρακα, ο οποίος όπως έχει αναφερθεί στη βιβλιογραφία, δεν οδηγεί σε απενεργοποίηση του καταλύτη<sup>5</sup>.



**Σχήμα 6** Εικόνες ηλεκτρονικού μικροσκοπίου TEM για τους καταλύτες (A) 30%Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – used, (B) 20%Co/SiO<sub>2</sub> – used

## ΣΥΜΠΕΡΑΣΜΑΤΑ

Στην παρούσα εργασία μελετήθηκε μια σειρά από καταλύτες Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> διαφορετικών φορτίσεων για την αντίδραση αναμόρφωσης της ακεταλδεΐδης με ατμό. Η ενεργότητα των καταλυτών βρέθηκε να αυξάνεται με αύξηση της μεταλλικής φόρτισης. Οι καταλύτες 10 και 15% Co/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> εμφανίζουν την καλύτερη συμπεριφορά ως προς την παραγωγή H<sub>2</sub>, με εκλεκτικότητες άνω από 90% σε θερμοκρασίες πάνω από 400 °C. Ο καταλύτης 20%Co/SiO<sub>2</sub> παρουσιάζει παρόμοιες τιμές εκλεκτικότητας υδρογόνου αν και εμφανίζεται λιγότερο ενεργός από τους καταλύτες Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Επιπλέον, το μόνο παραπροϊόν που σχηματίζεται στον καταλύτη Co/SiO<sub>2</sub> είναι το μεθάνιο οι εκλεκτικότητες του οποίου κυμαίνονται κάτω από 10%. Παρατηρήθηκε σημαντικός σχηματισμός άνθρακα στην επιφάνεια των καταλυτών. Οι ποσότητες του υπολογίστηκαν μετά από πειράματα σταθερότητας διάρκειας 8 h στους 430 και 480 °C και αυξάνονται με αύξηση της φόρτισης σε Co. Τέλος, από το χαρακτηρισμό των χρησιμοποιημένων δειγμάτων προέκυψε ότι ο άνθρακας που σχηματίζεται είναι κυρίως άμορφος ενώ σχηματίζεται και νηματοειδής άνθρακας όπως και νανοσωλήνες άνθρακα.

## ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ

- [1] Mattos LV, Jacobs G, Davis B H, Noronha F B. (2012). Chem. Rev., 112(7):4094-4123.
- [2] Kourteles M, Panagiotopoulou P, Verykios X E. (2015). Catal. Today, 258:247-255.
- [3] Ando Y, Matsuoka K. (2016). Int. J. Hydrogen Energy, 41:12862-12868.
- [4] Kourteles M, Panagiotopoulou P, Verykios XE (2015). Top. Catal., 58:1202-1217.
- [5] Xu W., Liu Z., Johnston-Peck A., Senanayake S.D., Zhou G., Stacchiola D., Stach E., Rodriguez J.A. (2013.) ACS Catal., 3(5):975-984.