

ΚΑΤΑΛΥΤΙΚΗ ΟΞΕΙΔΩΣΗ CH₄ ΥΠΟ ΣΥΝΘΗΚΕΣ ΠΕΡΙΣΣΕΙΑΣ O₂ ΣΕ ΚΑΤΑΛΥΤΕΣ Ir/La_xSr_{1-x}MnO₃

Κ. Δρόσου¹, Θ. Γεωργακοπούλου¹, Σ. Φανουργιάκης¹, Ε. Νικολαράκη¹, Γ. Αρτεμακίς¹, Α. Στρατάκης², Χ. Ματσούκα^{3,4}, Λ. Ναλμπαντιάν⁴, Β. Ζάσπαλης^{3,4}, Ν. Χαρισίου⁵, Μ. Γούλα^{5,*}, Ι. Γεντεκάκης^{1,6,*}

¹ Σχολή Χημικών Μηχανικών και Μηχανικών Περιβάλλοντος, Πολυτεχνείο Κρήτης, Χανιά, Ελλάδα

² Σχολή Μηχανικών Ορυκτών Πόρων, Πολυτεχνείο Κρήτης, Χανιά, Ελλάδα

³ Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Αριστοτέλειο Πανεπιστήμιο Θεσσαλονίκης, 54124, Θεσσαλονίκη

⁴ Ινστιτούτο Χημικών Διεργασιών και Ενεργειακών Πόρων, ΙΔΕΠ/ΕΚΕΤΑ

⁵ Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Δυτικής Μακεδονίας, Κοζάνη, Ελλάδα

⁶ Ίδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας/Ινστιτούτο Γεωενέργειας (ΙΤΕ/ΙΓ), Χανιά, Κρήτη, Ελλάδα

* *Corresponding Authors:* yventek@isc.tuc.gr (Ι.Γ), και mgoula@uowm.gr (Μ.Γ)

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Τα τελευταία χρόνια παρατηρείται συνεχώς αυξανόμενη χρήση του φυσικού αερίου (CH₄), ως μία αποδοτική, αξιόπιστη, προσιτή και καθαρότερη σε σχέση με άλλα ορυκτά καύσιμα, πηγή ενέργειας [1,2]. Το CH₄ είναι επίσης ο προτιμητέος HC για παραγωγή H₂, ή/και ως μέσον για την ανακύκλωση εκπομπών CO₂ [3]. Το βασικότερο μειονέκτημα που συνοδεύει τις αναφερόμενες εφαρμογές είναι οι διαφεύγουσες ποσότητες αμετάτρεπτου CH₄ κατά τις διεργασίες χρήσεις του. CH₄ εκπέμπεται επίσης ως παραπροϊόν διεργασιών καύσης βαρύτερων υδρογονανθράκων. Οι εκπομπές του συμβάλλουν στην ενίσχυση του «φαινομένου του θερμοκηπίου» (25 φορές δραστηκότερο του CO₂ στο φαινόμενο) [1, 2]. Ο ισχυρός δεσμός C-H (450 kJ/mol) στο μόριό του το καθιστά σχετικά δύσκολη την καταλυτική του ενεργοποίηση και άρα την οξείδωσή του σε σύγκριση με άλλους HCs. Ως εκ τούτου η ανάπτυξη καταλυτών υψηλής δραστηκότητας στην οξείδωση του CH₄, και έτσι στον έλεγχο των εκπομπών του, είναι υψηλής περιβαλλοντικής σημασίας. Στην παρούσα εργασία, μελετήθηκε η βαθιά οξείδωση του CH₄ σε καταλύτες Ir/La_{1-x}Sr_xMnO₃ στο θερμοκρασιακό εύρος 400-900°C και σε συνθήκες περίσσειας οξυγόνου (1% CH₄/5% O₂/He, σε πίεση 1 bar και WGHSV=90000 mL·g⁻¹·h⁻¹). Η εργασία προσβλέπει στην αποσαφήνιση του ρόλου της σταδιακής αντικατάστασης της Α-θέσης του περοβσκίτη (A=La) από Sr στις ιδιότητές του, και κατά συνέπεια στην καταλυτική του συμπεριφορά στην υπό εξέταση αντίδραση. Προς τούτο συντέθηκαν και μελετήθηκαν οι περοβσκίτες LSM: La_{1-x}Sr_xMnO₃ (x=0, 0,3, 0,5 και 0,7) και οι ομόλογοι καταλύτες Ir/LSM. Οι φυσικοχημικές και δομικές ιδιότητες των υλικών αξιολογήθηκαν με διάφορες τεχνικές (πχ. XRD, BET-BJH, H₂-TPR, H₂-Chem), προς χάριν ευχερούς συσχέτισης δομής-ενεργότητας. Τα καταλυτικά πειράματα (δραστηκότητας, σταθερότητας) έγιναν με βάση διάφορα πρωτόκολλα για να αποκτηθεί πλήρης εικόνα της καταλυτικής συμπεριφοράς.

ΛΕΞΕΙΣ ΚΛΕΙΔΙΑ: Μεθάνιο, LSM περοβσκίτες, Καταλύτες Ιριδίου, Φυσικό Αέριο, Πλήρης οξείδωση

ΑΝΑΦΟΡΕΣ

[1] Jiang, D, Khivantsev, K., Wang, Y. (2020). ACS Catal. 10, 14304-14314

[2] Stoian, M., Roge, V., Lazar, L./ Maurer, T., Vedrine, J.C., Marcu, I-C, Fechet, I. (2021). Catalysts 11, 427.

[3] Yentekakis, I.V., Panagiotopoulou, P., Artemakis, G. (2021). Appl. Catal. B. 296, 3.

ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ

Η εργασία υλοποιήθηκε στα πλαίσια της Δράσης Εθνικής Εμβέλειας «Διμερής & Πολυμερής Ε&Τ Συνεργασία Ελλάδας-Κίνας» και συγχρηματοδοτήθηκε από την Ευρωπαϊκή Ένωση και από εθνικούς πόρους, ειδικότερα από το Ευρωπαϊκό Ταμείο Περιφερειακής Ανάπτυξης (ΕΤΠΑ), στο πλαίσιο του Επιχειρησιακού Προγράμματος ΕΠΑΝΕΚ 2014-2020 (Κωδικός Έργου: Τ7ΔΚΙ-00356).

