

**ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΗΣ ΦΥΣΗΣ ΤΟΥ ΥΠΟΣΤΡΩΜΑΤΟΣ ΚΑΙ ΤΩΝ ΛΕΙΤΟΥΡΓΙΚΩΝ ΣΥΝΘΗΚΩΝ ΣΤΗ
ΣΥΜΠΕΡΙΦΟΡΑ ΥΠΟΣΤΗΡΙΓΜΕΝΩΝ ΚΑΤΑΛΥΤΩΝ Ga₂O₃ ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΝΤΙΔΡΑΣΗ ΟΞΕΙΔΩΤΙΚΗΣ
ΑΦΥΔΡΟΓΟΝΩΣΗΣ ΤΟΥ C₃H₈ με CO₂**

Α. Φλώρου¹, Γ. Μπάμπος², Α. Κόκκα¹, Π. Παναγιωτοπούλου^{1,*}

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

²Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Πατρών, Πάτρα, Ελλάδα

(*ppanagiotopoulou@tuc.gr)

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Η οξειδωτική αφυδρογόνωση του προπανίου (C₃H₈) με διοξείδιο του άνθρακα (ODP-CO₂) έχει προκαλέσει πρόσφατα το ενδιαφέρον ως μια εναλλακτική μέθοδος παραγωγής προπυλενίου (C₃H₆), το οποίο αποτελεί βασική πρώτη ύλη στη χημική βιομηχανία, με την παγκόσμια ζήτησή του να αυξάνεται συνεχώς^[1]. Ανάμεσα στους καταλύτες που έχουν αναπτυχθεί για την αντίδραση ODP-CO₂, οι υποστηριγμένοι καταλύτες Ga₂O₃ παρουσιάζουν υψηλή ενεργότητα και απόδοση ως προς C₃H₆ (Y_{C₃H₆}) οι οποίες επηρεάζονται σημαντικά από τη φύση του υποστρώματος^[1,2]. Ανάλογα με τις φυσικοχημικές ιδιότητες του καταλύτη και τις λειτουργικές συνθήκες αντίδρασης, οι παράπλευρες αντιδράσεις υδρογονόλυσης του C₃H₈ και διάσπασης των C₃H₈ και C₃H₆ πιθανό να λαμβάνουν χώρα ταυτόχρονα οδηγώντας σε χαμηλές αποδόσεις και εναπόθεση άνθρακα. Επομένως, η ανάπτυξη ενεργών και εκλεκτικών καταλυτών καθώς και η βελτιστοποίηση των λειτουργικών παραμέτρων κρίνονται απαραίτητες για την επίτευξη υψηλών αποδόσεων C₃H₆.

Στην παρούσα εργασία μελετάται η επίδραση της φύσης του υποστρώματος (Al₂O₃, TiO₂, SiO₂) και των λειτουργικών συνθηκών στη συμπεριφορά υποστηριγμένων καταλυτών Ga₂O₃ (10 wt.%) για την αντίδραση ODP-CO₂. Οι καταλύτες παρασκευάστηκαν με τη μέθοδο του υγρού εμποτισμού και χαρακτηρίστηκαν με τις τεχνικές BET, XRD, CO₂-TPD, TEM και SEM. Η καταλυτική συμπεριφορά μελετήθηκε χρησιμοποιώντας τροφοδοσία αποτελούμενη από 5% C₃H₈+25% CO₂/He. Βρέθηκε ότι η μετατροπή του C₃H₈ (X_{C₃H₈}) αυξάνεται με αύξηση της θερμοκρασίας, με τον καταλύτη Ga₂O₃-Al₂O₃ ο οποίος χαρακτηρίζεται από υψηλότερη βασικότητα να παρουσιάζει βέλτιστη συμπεριφορά. Το Y_{C₃H₆} αυξάνεται ακολουθώντας τη σειρά TiO₂<SiO₂<Al₂O₃ για T<660 °C, ενώ σε υψηλότερες θερμοκρασίες η σειρά τροποποιείται ως εξής Al₂O₃<TiO₂<SiO₂. Η αύξηση του λόγου CO₂:C₃H₈ από 1 σε 10 δεν επηρεάζει σημαντικά την καταλυτική συμπεριφορά. Αντιθέτως, οι X_{C₃H₈} και Y_{C₃H₆} βελτιώνονται σημαντικά μειώνοντας τη ταχύτητα χώρου από 51600 σε 5160 h⁻¹. Οι καταλύτες Ga₂O₃-TiO₂ και Ga₂O₃-SiO₂ παρουσιάζουν εξαιρετική σταθερότητα για ~30h αντίδρασης στους 660 και 710 °C. Αν και ο καταλύτης Ga₂O₃-Al₂O₃ παρουσίασε ικανοποιητική σταθερότητα στους 710 °C, βρέθηκε ότι απενεργοποιείται σταδιακά με το χρόνο στους 600 °C. Εικόνες SEM που ελήφθησαν σε χρησιμοποιημένους καταλύτες έδειξαν υψηλότερη εναπόθεση άνθρακα όταν το Ga₂O₃ διασπείρετε σε φορέα SiO₂. Τα αποτελέσματα υποδεικνύουν ότι η κατάλληλη επιλογή καταλύτη και λειτουργικών συνθηκών μπορεί να οδηγήσει σε υψηλές και σταθερές αποδόσεις C₃H₆ μέσω της αντίδρασης ODP-CO₂.

ΛΕΞΕΙΣ ΚΛΕΙΔΙΑ: Οξειδωτική αφυδρογόνωση C₃H₈ με CO₂, C₃H₆, Ga₂O₃-M_xO_y, CO₂:C₃H₈, ταχύτητα χώρου

ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ

[1] Wang Z., He Z., Li L., Yang S., He M., Sun Y., Wang K., Chen J., Liu Z. (2022). *Rare Met.*, 41(7), 2129-2152.

ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ



Το ερευνητικό έργο υποστηρίχτηκε από το Ελληνικό Ίδρυμα Έρευνας και Καινοτομίας (ΕΛ.ΙΔ.Ε.Κ.) στο πλαίσιο της Δράσης «2^η Προκήρυξη ερευνητικών έργων ΕΛ.ΙΔ.Ε.Κ. για την ενίσχυση των μελών ΔΕΠ και Ερευνητών/τριών» (Αριθμός Έργου: 3367).