ΥΔΡΟΓΟΝΩΣΗ ΤΟΥ CO_2 ΠΡΟΣ ΜΕΘΑΝΟΛΗ ΜΕ ΚΑΤΑΛΥΤΕΣ ΜΙΚΤΩΝ ΟΞΕΙΔΙΩΝ ΧΑΛΚΟΥ

Τοσουνίδης Ε.[1], Μαργέλλου Α.[1], Τριανταφυλλίδης Κ.[2,3]

[1]*Τμήμα Χημείας, Αριστοτέλειο Πανεπιστήμιο Θεσσαλονίκης, 54124 Θεσσαλονίκη, E-mail: etosoun@chem.auth.gr*
[2]*Department of Chemistry, King Fahd University of Petroleum and Minerals, Dhahran, Saudi Arabia*
[3]*Interdisciplinary Research Center for Refining and Advanced Chemicals, King Fahd University of Petroleum & Minerals, Dhahran 31261, Saudi Arabia*

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Η αύξηση των επιπέδων συγκέντρωσης του διοξειδίου του άνθρακα (CO_2) στην ατμόσφαιρα έχει οδηγήσει στην αναζήτηση καινοτόμων προσεγγίσεων με στόχο τον περιορισμό του. Η δέσμευση και αξιοποίησή του (Carbon Capture and Utilization) αποτελεί έναν αναδυόμενο ερευνητικό τομέα, αφού αποφέρει διττό όφελος, καθώς επιτυγχάνει τόσο την ελάττωση των επιπέδων του αερίου στην ατμόσφαιρα όσο και την παραγωγή χρήσιμων προϊόντων όπως είναι η μεθανόλη και οι ολεφίνες. Πιο συγκεκριμένα, η μεθανόλη αποτελεί έναν ευρέως χρησιμοποιούμενο διαλύτη, ενώ δύναται να χρησιμοποιηθεί είτε απευθείας σαν καύσιμο, είτε ως πρώτη ύλη για τη σύνθεση διάφορων χημικών και καυσίμων. Στην παρούσα εργασία, μελετήθηκε η σύνθεση μικτών υδροξειδίων του τύπου M^{2+}/M^{3+} με βάση τον χαλκό ως δισθενές μέταλλο, με τη μέθοδο της συγκαταβύθισης σε βασικές συνθήκες και η παραγωγή των αντίστοιχων μικτών οξειδίων μέσω έψησης των πρόδρομων υλικών. Στόχος ήταν η παραγωγή καταλυτών μικτών οξειδίων με υψηλές ειδικές επιφάνειες, θερμική σταθερότητα και ομοιογένεια σύστασης και δομής. Ως δισθενή μέταλλα προς μερική υποκατάσταση του Cu χρησιμοποιηθήκαν ο ψευδάργυρος (Zn) και το μαγνήσιο (Mg), ενώ ως τρισθενή χρησιμοποιήθηκαν το αργίλιο (Al) ως βάση και αντικατάστασή του από Ce, In και Zr. Τα υλικά χαρακτηρίστηκαν ως προς τη δομή, σύσταση, μορφολογία, πορώδες και τις επιφανειακές τους ιδιότητες με σειρά τεχνικών, όπως XRD, ICP, SEM, ποροσιμετρία N_2 και XPS. Η καταλυτική δραστικότητα προσδιορίστηκε πειραματικά σε αντιδραστήρα υψηλής πίεσης συνεχούς ροής σταθερής κλίνης. Εν κατακλείδι, η πλειοψηφία των συντιθέμενων πρόδρομων υλικών διαθέτει τη δομή φυλλόμορφων διπλών υδροξειδίων, ενώ τα ψημένα υλικά εμφανίζουν δομές μικτών οξειδίων ή/και σπινελίων με σχετικά υψηλή ειδική επιφάνεια. Η υδρογόνωση του CO_2 παρουσιάζει ικανοποιητική απόδοση προς μεθανόλη με κύριο παραπροϊόν αυτό του μονοξειδίου του άνθρακα (CO), ενώ η βελτιστοποίηση του καταλύτη δύναται να ενισχύσει περαιτέρω την απόδοση.

HYDROGENATION OF CO_2 TOWARDS METHANOL WITH COPPER MIXED OXIDES CATALYSTS

Tosounidis E.[1], Margellou A.[1], Triantafyllidis K.[2,3,1]

[1] *Department of Chemistry, Aristotle University of Thessaloniki, 54124 Thessaloniki, E-mail: etosoun@chem.auth.gr*
[2]*Department of Chemistry, King Fahd University of Petroleum and Minerals, Dhahran, Saudi Arabia*
[3]*Interdisciplinary Research Center for Refining and Advanced Chemicals, King Fahd University of Petroleum & Minerals, Dhahran 31261, Saudi Arabia*

ABSTRACT

Carbon dioxide (CO_2) concentration levels rise in the atmosphere has led to a search for innovative approaches aiming to its abatement. Carbon Capture and Utilization comprises an emerging research field since it yields a twofold benefit, namely the reduction of the gas levels in the atmosphere and the production of useful products such as methanol and olefins. In particular, methanol is a widely used solvent while it can also be used directly as fuel or as feedstock for chemical and fuel synthesis. In the present study, the synthesis of M^{2+}/M^{3+} type mixed hydroxides with copper as the divalent metal, following the coprecipitation method in alkaline conditions and the production of the corresponding mixed oxides via calcination of precursors was studied. The target was to obtain mixed oxide catalysts with high specific surface areas, thermal stability and compositional and structural homogeneity. The divalent metals used for Cu partial substitution were zinc (Zn) and magnesium (Mg), while trivalent aluminum (Al) was used a base and was replaced by Ce, In and Zr. The materials' structural-compositional, morphological, porous and surface properties were characterized by a series of techniques such as XRD, ICP, SEM, N_2 porosimetry and XPS. The catalytic activity was determined experimentally in a high-pressure continuous flow fixed bed reactor. In conclusion, most of the synthesized precursors possess the layered double hydroxide structure while the calcined materials present mixed oxide or/and spinel structure with relatively high specific surface area. CO_2 hydrogenation shows satisfying yield towards methanol with carbon monoxide (CO) being the main byproduct while catalyst's optimization is poised to enhance the yield even further.

Acknowledgements

Funded by the European Union's Horizon Europe Research and Innovation Actions programme under grant agreement No. 101192964.