

ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΗΣ ΦΥΣΗΣ ΤΟΥ ΥΠΟΣΤΡΩΜΑΤΟΣ ΚΑΙ ΤΩΝ ΛΕΙΤΟΥΡΓΙΚΩΝ ΣΥΝΘΗΚΩΝ ΣΤΗ ΣΥΜΠΕΡΙΦΟΡΑ ΥΠΟΣΤΗΡΙΓΜΕΝΩΝ ΚΑΤΑΛΥΤΩΝ Ga_2O_3 ΓΙΑ ΤΗΝ ΑΝΤΙΔΡΑΣΗ ΟΞΕΙΔΩΤΙΚΗΣ ΑΦΥΔΡΟΓΟΝΩΣΗΣ ΤΟΥ C_3H_8 ΜΕ CO_2

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

(*ppanagioutopoulou@tuc.gr)

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Στην παρούσα εργασία μελετάται η επίδραση της φύσης του υποστρώματος (Al_2O_3 , TiO_2 , SiO_2) και των λειτουργικών συνθηκών στη συμπεριφορά υποστηριγμένων καταλυτών Ga_2O_3 (10 wt.%) για την αντίδραση οξειδωτικής αφυδρογόνωσης του προπανίου (C_3H_8) με CO_2 (Oxidative Dehydrogenation of propane- CO_2 , ODP- CO_2). Βρέθηκε ότι η μετατροπή του C_3H_8 ($X_{\text{C}_3\text{H}_8}$) αυξάνεται με αύξηση της θερμοκρασίας, με τον καταλύτη Ga_2O_3 - Al_2O_3 ο οποίος χαρακτηρίζεται από μέτρια βασικότητα να παρουσιάζει βέλτιστη συμπεριφορά. Η απόδοση ως προς προπυλένιο ($Y_{\text{C}_3\text{H}_6}$) αυξάνεται ακολουθώντας τη σειρά $\text{TiO}_2 < \text{SiO}_2 < \text{Al}_2\text{O}_3$ για $T < 660$ °C, ενώ σε υψηλότερες θερμοκρασίες η σειρά τροποποιείται ως εξής $\text{Al}_2\text{O}_3 < \text{TiO}_2 < \text{SiO}_2$. Η αύξηση του λόγου $\text{CO}_2:\text{C}_3\text{H}_8$ από 1 σε 10 δεν επηρεάζει σημαντικά την καταλυτική συμπεριφορά. Αντιθέτως, οι $X_{\text{C}_3\text{H}_8}$ και $Y_{\text{C}_3\text{H}_6}$ βελτιώνονται σημαντικά μειώνοντας τη ταχύτητα χώρου από 51600 σε 5160 h^{-1} . Οι καταλύτες Ga_2O_3 - TiO_2 και Ga_2O_3 - SiO_2 παρουσιάζουν ικανοποιητική σταθερότητα για ~30h αντίδρασης στους 660 και 710 °C. Αν και ο καταλύτης Ga_2O_3 - Al_2O_3 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 Ga_2O_3 διασπείρεται στο SiO_2 . Τα αποτελέσματα υποδεικνύουν ότι η κατάλληλη επιλογή καταλύτη και λειτουργικών συνθηκών μπορεί να οδηγήσει σε υψηλές και σταθερές αποδόσεις C_3H_6 μέσω της αντίδρασης ODP- CO_2 .

ΛΕΞΕΙΣ ΚΛΕΙΔΙΑ: Οξειδωτική αφυδρογόνωση C_3H_8 με CO_2 , C_3H_6 , Ga_2O_3 - M_xO_y , $\text{CO}_2:\text{C}_3\text{H}_8$, ταχύτητα χώρου

ΕΙΣΑΓΩΓΗ

Το προπυλένιο (C_3H_6) αποτελεί βασικό δομικό συστατικό για τη βιομηχανική παραγωγή πολυάριθμων χημικών ενώσεων, με την παγκόσμια ζήτησή του να αυξάνεται συνεχώς ^[1]. Η οξειδωτική αφυδρογόνωση του προπανίου (C_3H_8) με CO_2 παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον ως εναλλακτική μέθοδος για την παραγωγή C_3H_6 . Η χρήση του CO_2 στη διεργασία, εκτός από αυτή του ήπιου οξειδωτικού, συμβάλλει και στην άμεση αξιοποίησή του με στόχο τη μείωση των αερίων του θερμοκηπίου και κατ' επέκταση τον μετριασμό της κλιματικής αλλαγής ^[2,3]. Βασικό πλεονέκτημα της αντίδρασης ODP- CO_2 είναι η συμμετοχή του CO_2 τόσο στη μετατροπή του C_3H_8 σε C_3H_6 όσο και στην κατανάλωση του H_2 μέσω της αντίστροφης αντίδρασης μετατόπισης του CO με ατμό (RWGS) οδηγώντας σε υψηλές αποδόσεις C_3H_6 ^[2,3]. Επιπλέον, το CO_2 μπορεί να απομακρύνει τον πιθανό εναποτιθέμενο άνθρακα από την καταλυτική επιφάνεια μέσω της αντίστροφης αντίδρασης Boudouard, εμποδίζοντας έτσι την απενεργοποίηση του καταλύτη.

Ανάμεσα στους καταλύτες που έχουν αναπτυχθεί για την αντίδραση ODP- CO_2 , οι υποστηριγμένοι καταλύτες Ga_2O_3 παρουσιάζουν υψηλή ενεργότητα και απόδοση ως προς C_3H_6 , οι οποίες επηρεάζονται σημαντικά από τη φύση του υποστρώματος ^[4]. Ανάλογα με τις φυσικοχημικές ιδιότητες του καταλύτη και τις λειτουργικές συνθήκες αντίδρασης, οι παράπλευρες αντιδράσεις υδρογονόλυσης του C_3H_8 και διάσπασης των C_3H_8 και C_3H_6 είναι πιθανό να λαμβάνουν χώρα ταυτόχρονα οδηγώντας σε χαμηλές αποδόσεις και εναπόθεση άνθρακα. Επομένως, η ανάπτυξη ενεργών, εκλεκτικών και σταθερών καταλυτικών υλικών καθώς και η βελτιστοποίηση των λειτουργικών παραμέτρων

κρίνονται απαραίτητες για την επίτευξη υψηλών αποδόσεων C_3H_6 μέσω της αντίδρασης ODP- CO_2 ^[4].

Στην παρούσα μελέτη, διερευνάται η επίδραση της φύσης του υποστρώματος (Al_2O_3 , TiO_2 , SiO_2) και των συνθηκών αντίδρασης (θερμοκρασία, ταχύτητα χώρου, λόγου $CO_2:C_3H_8$) στην ενεργότητα, εκλεκτικότητα και τη σταθερότητα υποστηριγμένων καταλυτών Ga_2O_3 (10 wt.%) για την αντίδραση ODP- CO_2 . Με σκοπό να προσδιοριστούν οι φυσικοχημικές ιδιότητες που επηρεάζουν την καταλυτική συμπεριφορά, οι καταλύτες χαρακτηρίστηκαν με τις τεχνικές B.E.T, XRD και CO_2 -TPD. Οι χρησιμοποιημένοι καταλύτες μετά από τα πειράματα σταθερότητας χαρακτηρίστηκαν με τις τεχνικές TEM και SEM, προκειμένου να διερευνηθεί ο πιθανός σχηματισμός άνθρακα στην επιφάνεια τους ή/και πιθανές αλλαγές στα μορφολογικά τους χαρακτηριστικά που λαμβάνουν χώρα υπό συνθήκες αντίδρασης.

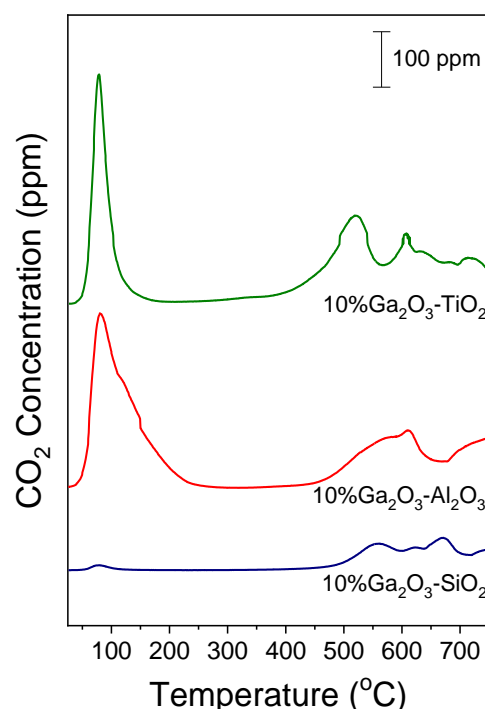
ΜΕΘΟΔΟΛΟΓΙΑ

Οι καταλύτες $10\%Ga_2O_3-M_xO_y$ παρασκευάστηκαν με τη μέθοδο του υγρού εμποτισμού χρησιμοποιώντας σαν πρόδρομη ένωση άλας μετάλλου ($Ga(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$) και εμπορικούς φορείς Al_2O_3 , TiO_2 και SiO_2 . Μετά τον εμποτισμό ακολούθησε ξήρανση των στερεών στους $120^\circ C$ για 12 h και πύρωση στους $600^\circ C$ για 3 h. Ο χαρακτηρισμός των καταλυτών πραγματοποιήθηκε με τις τεχνικές φυσικής ρόφησης αζώτου σε θερμοκρασία υγρού αζώτου (BET), περιθλασης ακτίνων X (XRD), θερμοπρογραμματιζόμενης εκρόφησης του CO_2 (CO_2 -TPD), ηλεκτρονικής μικροσκοπίας διέλευσης (TEM) και ηλεκτρονικής μικροσκοπίας σάρωσης (SEM). Η καταλυτική συμπεριφορά μελετήθηκε στο θερμοκρασιακό εύρος $500-750^\circ C$, χρησιμοποιώντας σύσταση τροφοδοσίας αποτελούμενη από $5\%C_3H_8 + 25\%CO_2/He$ και συνολική ροή $50\text{ cm}^3/\text{min}$. Πριν από κάθε πείραμα ο καταλύτης υφίσταται προκατεργασία με θέρμανση στους $450^\circ C$ για 1 h υπό ροή He.

ΑΠΟΤΕΛΕΣΜΑΤΑ ΚΑΙ ΣΥΖΗΤΗΣΗ

Τα αποτελέσματα από τις μετρήσεις BET έδειξαν ότι η ειδική επιφάνεια (Specific Surface Area, SSA) των καταλυτών $Ga_2O_3-TiO_2$, $Ga_2O_3-Al_2O_3$ και $Ga_2O_3-SiO_2$ είναι ίση με 47.9, 73.1 και $183.3\text{ m}^2\text{ g}^{-1}$, αντίστοιχα. Στα περιθλασιογράμματα XRD που ελήφθησαν για τους ίδιους καταλύτες εντοπίστηκαν μόνο οι κορυφές που αποδίδονται σε TiO_2 , Al_2O_3 ή SiO_2 , υποδεικνύοντας ότι σε όλες τις περιπτώσεις τα σωματίδια του Ga_2O_3 είναι καλά διασκορπισμένα στην επιφάνεια του υποστρώματος.

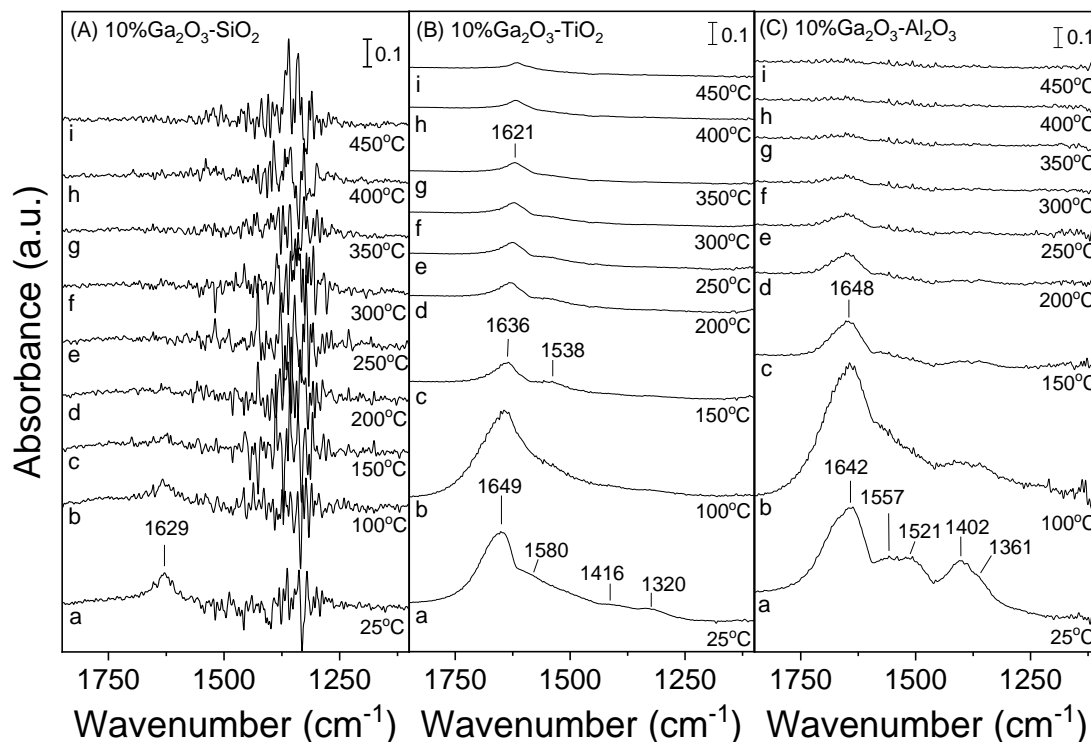
Τα αποτελέσματα των πειραμάτων CO_2 -TPD που ελήφθησαν για τους καταλύτες $Ga_2O_3-SiO_2$, $Ga_2O_3-Al_2O_3$ και $Ga_2O_3-TiO_2$ παρουσιάζονται στο Σχήμα 1. Παρατηρείται ότι οι καταλύτες παρουσιάζουν μια κορυφή εκρόφησης του CO_2 σε χαμηλές θερμοκρασίες (LT) ($<250^\circ C$), η οποία αποδίδεται σε ασθενείς βασικές θέσεις, καθώς και δύο ή περισσότερες κορυφές σε υψηλές θερμοκρασίες (HT) ($450-750^\circ C$), οι οποίες αποδίδονται σε μέτριες ή ισχυρές βασικές θέσεις. Τα αποτελέσματα έδειξαν ότι ο αριθμός και η ισχύς των ασθενών βασικών θέσεων αυξάνεται ακολουθώντας την σειρά $SiO_2 < TiO_2 < Al_2O_3$, ενώ ο αριθμός και η ισχύς των μέτριων ή/και ισχυρών βασικών θέσεων αυξάνεται ακολουθώντας την σειρά $SiO_2 < Al_2O_3 < TiO_2$. Η συνολική ποσότητα CO_2 που εκροφάται από τους καταλύτες $Ga_2O_3-SiO_2$, $Ga_2O_3-Al_2O_3$ και $Ga_2O_3-TiO_2$ βρέθηκε να είναι ίση με 0.024, 0.546 και



Σχήμα 1: Προφίλ CO_2 -TPD των υποστηριγμένων καταλυτών Ga_2O_3 .

0.582 $\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}$, αντίστοιχα, υποδεικνύοντας ότι η συνολική επιφανειακή βασικότητα των καταλυτών αυξάνεται ακολουθώντας τη σειρά $\text{SiO}_2 < \text{Al}_2\text{O}_3 < \text{TiO}_2$.

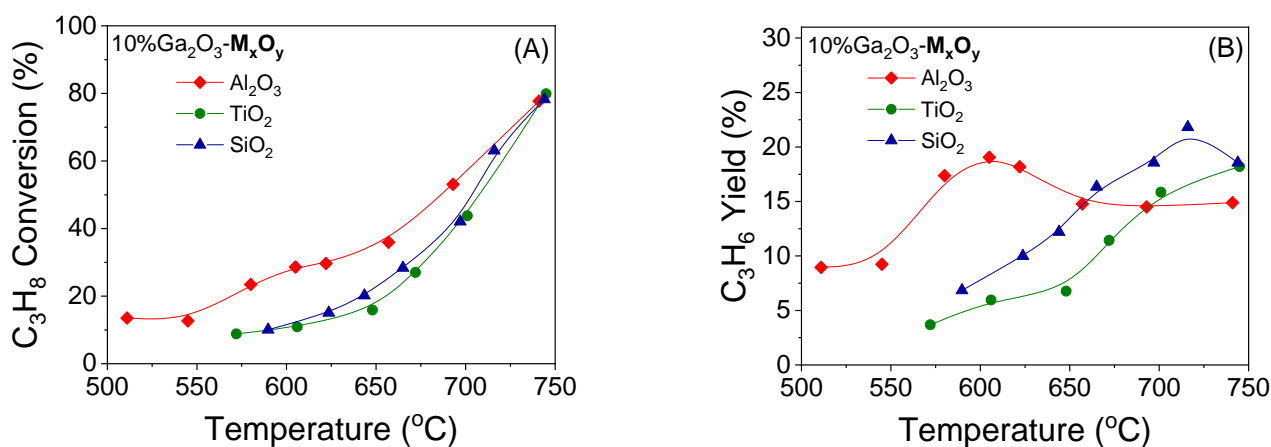
Τα χαρακτηριστικά ρόφησης/εκρόφησης του CO_2 από την επιφάνεια των καταλυτών μελετήθηκαν με την τεχνική της υπέρυθρης φασματοσκοπίας (FTIR) και τα αποτελέσματα παρουσιάζονται στο Σχήμα 2. Το φάσμα που καταγράφηκε στους 25 °C για τον καταλύτη $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ (Σχ. 2A) χαρακτηρίζεται από μόνο μία ασθενή κορυφή στα 1629 cm^{-1} , η οποία αποδίδεται σε διττανθρακικά είδη ροφημένα στην επιφάνεια του Ga_2O_3 . Αντίθετα, τα φάσματα που ελήφθησαν στους 25 °C για τους καταλύτες $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ (Σχ. 1B) και $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Σχ. 1C) χαρακτηρίζονται από αρκετές κορυφές στην περιοχή 1700-1100 cm^{-1} . Συνοπτικά, τα ροφημένα είδη που ανιχνευθήκαν αποδίδονται σε διττανθρακικά (1649-1642 και 1416-1402 cm^{-1}), μονοδοντικά και διδοντικά (1580-1557, 1538-1521, 1361 και 1320 cm^{-1}) ανθρακικά είδη ροφημένα στην επιφάνεια του Ga_2O_3 ή/και του M_xO_y . Σε όλες τις περιπτώσεις, αύξηση της θερμοκρασίας οδηγεί σε σταδιακή εκρόφηση των ροφημένων ειδών από την καταλυτική επιφάνεια. Η εκρόφηση πραγματοποιείται σε σημαντικά χαμηλότερες θερμοκρασίες για τον καταλύτη $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ($T > 150$ °C) από ότι για τον $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ ($T > 450$ °C), ενώ για τον $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ τα ροφημένα είδη απομακρύνονται σε ενδιάμεσες θερμοκρασίες ($T > 300$ °C). Τα αποτελέσματα υποδεικνύουν ότι η ισχύς ρόφησης του CO_2 αυξάνεται ακολουθώντας τη σειρά $\text{SiO}_2 < \text{Al}_2\text{O}_3 < \text{TiO}_2$ σε πλήρη συμφωνία με τα πειράματα $\text{CO}_2\text{-TPD}$.



Σχήμα 2: Φάσματα FTIR που ελήφθησαν έπειτα από αλληλεπίδραση των καταλυτών (A) $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$, (B) $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ και (C) $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ με 5% CO_2/He στους 25 °C για 30 min και σταδιακή αύξηση της θερμοκρασίας στους 450 °C υπό ροή He.

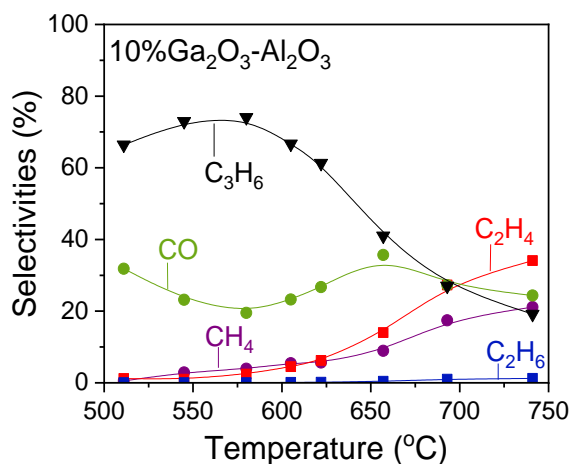
Τα αποτελέσματα από την επίδραση της φύσης του υποστρώματος στη συμπεριφορά υποστηριγμένων καταλυτών Ga_2O_3 συνοψίζονται στο Σχήμα 3A, στο οποίο παρουσιάζεται η μετατροπή του προπανίου (C_3H_8) συναρτήσει της θερμοκρασίας αντίδρασης. Βρέθηκε ότι ο καταλύτης $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ είναι ο πιο ενεργός, εμφανίζοντας μετρήσιμες μετατροπές προπανίου σε θερμοκρασίες υψηλότερες από τους 510 °C και επιτυγχάνοντας $\text{X}_{\text{C}_3\text{H}_8}=80\%$ στους 745 °C. Αν και οι καταλύτες $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ και $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ παρουσιάζουν σημαντικά μικρότερη ενεργότητα κάτω από τους 700 °C, η $\text{X}_{\text{C}_3\text{H}_8}$ στους 745 °C είναι όμοια με αυτή του καταλύτη $\text{Ga}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$. Η απόδοση ως προς τη παραγωγή προπυλενίου (C_3H_6) επηρεάζεται σημαντικά από τη φύση του υποστρώματος

και εξαρτάται έντονα από τη θερμοκρασία αντίδρασης (Σχ. 3B). Συγκεκριμένα, σε θερμοκρασίες χαμηλότερες των 650 °C το $Y_{C_3H_6}$ βρέθηκε να αυξάνεται ακολουθώντας τη σειρά $TiO_2 < SiO_2 < Al_2O_3$, ενώ υψηλότερες θερμοκρασίες είχαν αρνητική επίδραση στο $Y_{C_3H_6}$ για τον καταλύτη $Ga_2O_3-Al_2O_3$.



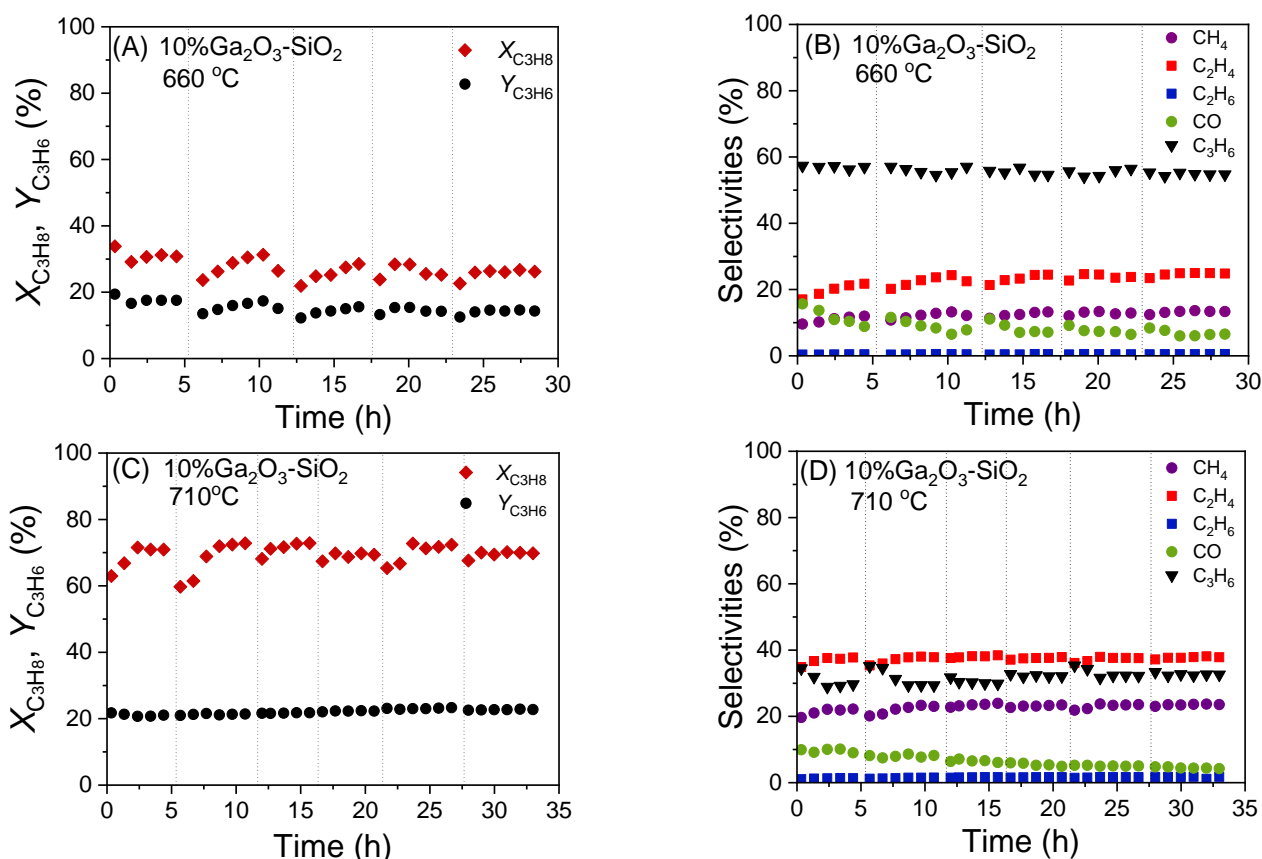
Σχήμα 3: (A) Μετατροπή C_3H_8 και (B) απόδοση ως προς C_3H_6 συναρτήσει της θερμοκρασίας αντίδρασης για υποστηριγμένους καταλύτες Ga_2O_3 .

Εκτός από το C_3H_6 , τα προϊόντα που ανιχνεύθηκαν υπό συνθήκες αντίδρασης σε όλους τους καταλύτες ήταν τα CO, CH₄, C₂H₄ και ίχνη C₂H₆. Τυπικά αποτελέσματα από την κατανομή των προϊόντων με τη θερμοκρασία παρουσιάζονται στο Σχήμα 4 για τον καταλύτη $Ga_2O_3-Al_2O_3$. Η αύξηση της θερμοκρασίας στους 745 °C οδηγεί σε μείωση της εκλεκτικότητας ως προς C_3H_6 ($S_{C_3H_6}$), ενώ η εκλεκτικότητα ως προς CO (S_{CO}) παραμένει πρακτικά σταθερή σε όλο το εξεταζόμενο θερμοκρασιακό εύρος. Η παραγωγή CO και C_3H_6 υποδεικνύει ότι λαμβάνει χώρα η επιθυμητή αντίδραση ODP-CO₂, ενώ μέρος του παραγόμενου CO πιθανόν να οφείλεται στην αντίδραση RWGS ή/και στην αντίστροφη αντίδραση Boudouard. Η μείωση του $S_{C_3H_6}$ και η ταυτόχρονη αύξηση των εκλεκτικοτήτων ως προς CH₄ (S_{CH_4}) και C₂H₄ ($S_{C_2H_4}$) με αύξηση της θερμοκρασίας αντίδρασης υποδεικνύει ότι σε υψηλές θερμοκρασίες λαμβάνουν χώρα οι ανεπιθύμητες αντιδράσεις υδρογονόλυσης του C_3H_8 και διάσπασης του C_3H_8 ή/και του C_3H_6 .



Σχήμα 4: Εκλεκτικότητες ως προς τα προϊόντα της αντίδρασης συναρτήσει της θερμοκρασίας για τον καταλύτη 10% $Ga_2O_3-Al_2O_3$.

Η επίδραση του χρόνου αντίδρασης στη συμπεριφορά του καταλύτη $Ga_2O_3-SiO_2$ μελετήθηκε στους 660 και 710 °C (Σχ. 5). Οι διακεκομμένες γραμμές αντιστοιχούν σε διακοπή του πειράματος κατά τη διάρκεια της νύχτας, όπου ο καταλύτης παραμένει υπό ροή He. Βρέθηκε ότι η $X_{C_3H_8}$ και το $Y_{C_3H_6}$ στους 660 °C κυμαίνονται μεταξύ 29-34% και 17-19%, αντίστοιχα, κατά τη διάρκεια των πρώτων 5h αντίδρασης (Σχ. 5A). Αν και τα $X_{C_3H_8}$ και $Y_{C_3H_6}$ μειώνονται ελαφρώς έπειτα από τη διακοπή του πειράματος, βρέθηκε ότι ανακτούν τις αρχικές τους τιμές με την πάροδο του χρόνου. Η ίδια τάση παρατηρείται με περαιτέρω αύξηση του χρόνου αντίδρασης, η οποία, ωστόσο εξομαλύνεται μετά τις 17h, οδηγώντας σε σταθεροποίηση των $X_{C_3H_8}$ και $Y_{C_3H_6}$ στο 26 και 14.5%, αντίστοιχα, μετά από ~30h αντίδρασης. Όσον αφορά τις εκλεκτικότητες ως προς τα προϊόντα της αντίδρασης βρέθηκε ότι η $S_{C_3H_6}$ είναι πρακτικά σταθερή, ενώ η S_{CO} μειώνεται ελαφρώς με το χρόνο (Σχ. 5B). Από την άλλη πλευρά, τα $S_{C_2H_4}$ και S_{CH_4} αυξάνονται σταδιακά με το χρόνο αντίδρασης.

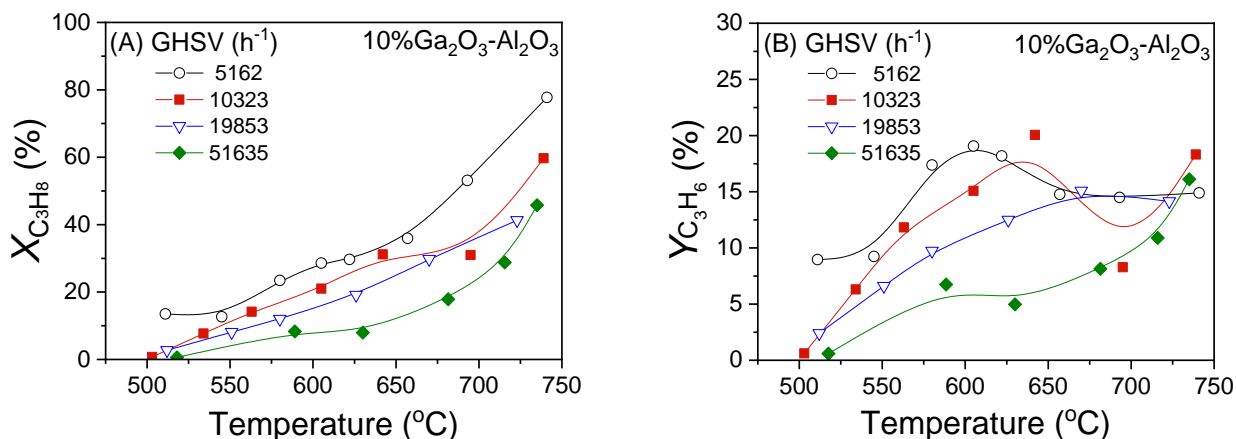


Σχήμα 5: Πειράματα σταθερότητας για τον καταλύτη 10%Ga₂O₃-SiO₂ στους (A, B) 660 °C και (C, D) 710 °C υπό συνθήκες οξειδωτικής αφυδρογόνωσης του C₃H₈ με CO₂. (A, C) Διαγράμματα μετατροπής C₃H₈ και απόδοσης ως προς C₃H₆ και (B, D) εκλεκτικότητες ως προς τα προϊόντα της αντίδρασης.

Από το πείραμα σταθερότητας στους 710 °C (Σχ. 5C), βρέθηκε ότι η X_{C₃H₈} παρουσιάζει την ίδια τάση με αυτή του πειράματος στους 660 °C, ενώ το Y_{C₃H₆} παραμένει σταθερό με το χρόνο. Όπως αναμενόταν, τόσο η X_{C₃H₈} όσο και το Y_{C₃H₆} είναι υψηλότερα στους 710 °C. Το ίδιο συμβαίνει και για τα S_{C₂H₄} και S_{C₂H₆}, ενώ τα S_{C₃H₆} και S_{CO} παρουσιάζουν χαμηλότερες τιμές σε σύγκριση με εκείνες στους 660 °C (Σχ. 5D). Τα αποτελέσματα δείχνουν ότι η παρατεταμένη έκθεση του καταλύτη στο μίγμα αντίδρασης ή/και η αύξηση της θερμοκρασίας της αντίδρασης οδηγούν σε ελαφρά αναστολή της αντίδρασης ODP-CO₂ ευνοώντας τις ανεπιθύμητες αντιδράσεις υδρογονόλυσης του C₃H₈ και διάσπασης του C₃H₈ ή/και του C₃H₆.

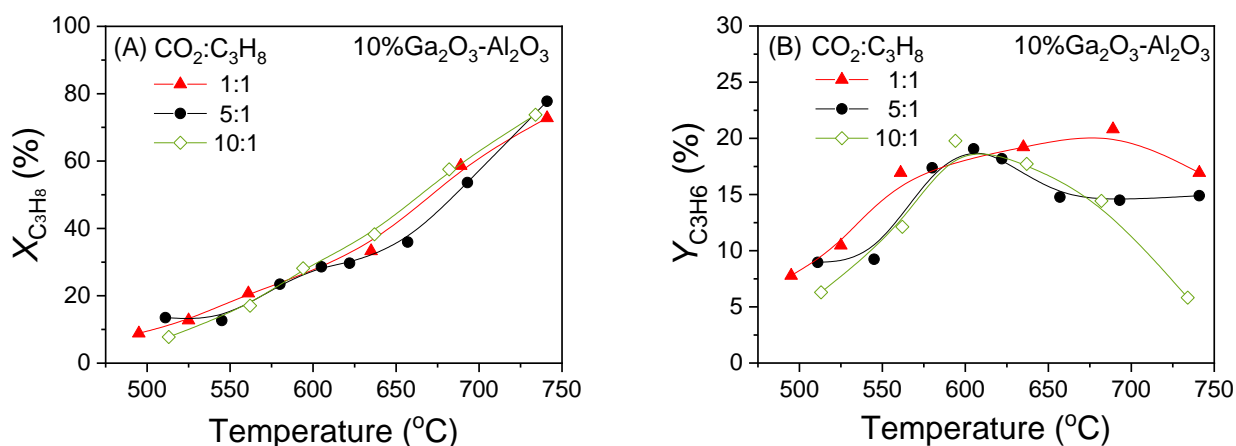
Αντίστοιχη μελέτη πραγματοποιήθηκε για τον καταλύτη Ga₂O₃-TiO₂ και τα αποτελέσματα έδειξαν ότι ο καταλύτης παρουσιάζει επαρκή σταθερότητα με το χρόνο στους 660 και στους 710 °C. Όσον αφορά τον καταλύτη Ga₂O₃-Al₂O₃ βρέθηκε ότι τόσο η X_{C₃H₈} όσο και το Y_{C₃H₆} παραμένουν σταθερά για 30h αντίδρασης στους 710 °C. Αντίθετα, η αλληλεπίδραση του καταλύτη Ga₂O₃-Al₂O₃ με το μίγμα της αντίδρασης στους 600 °C οδηγεί σε σταδιακή απενεργοποίηση του. Η μείωση της καταλυτικής ενεργότητας συνοδεύεται από μείωση του S_{C₃H₆} και αύξηση των S_{C₂H₄} και S_{C₂H₆} με το χρόνο φανερώνοντας ότι η απενεργοποίηση οφείλεται στην εναπόθεση άνθρακα πιθανώς μέσω των αντιδράσεων διάσπασης των C₃H₈ ή/και C₃H₆. Εικόνες TEM και SEM που ελήφθησαν από τους καταλύτες έπειτα από τα πειράματα σταθερότητας έδειξαν ότι τα μορφολογικά τους χαρακτηριστικά παραμένουν ίδια με αυτά των φρέσκων δειγμάτων ενώ μετρήσεις SEM/EDS έδειξαν υψηλότερη εναπόθεση άνθρακα όταν το Ga₂O₃ διασπείρεται στο SiO₂.

Τα αποτελέσματα από την επίδραση της ταχύτητας χώρου (GHSV) στη συμπεριφορά του καταλύτη Ga₂O₃-Al₂O₃ παρουσιάζονται στο Σχήμα 6. Παρατηρείται ότι η μείωση του GHSV οδηγεί σε βελτίωση τόσο της X_{C₃H₈} όσο και του Y_{C₃H₆}, γεγονός που οφείλεται στον υψηλότερο χρόνο παραμονής. Ποιοτικά όμοια αποτελέσματα παρατηρήθηκαν και για τους άλλους δύο καταλύτες.




Σχήμα 6. Επίδραση του GHSV στη (A) μετατροπή του C₃H₈ και (B) απόδοση ως προς C₃H₆ για τον καταλύτη 10%Ga₂O₃-Al₂O₃.

Τέλος, μελετήθηκε η επίδραση του λόγου CO₂:C₃H₈ στη συμπεριφορά των υποστηριγμένων καταλυτών Ga₂O₃. Τυπικά αποτελέσματα παρουσιάζονται στο Σχήμα 7 για τον καταλύτη Ga₂O₃-Al₂O₃. Σύμφωνα με τα αποτελέσματα, και στις τρεις περιπτώσεις, η αύξηση του λόγου από 1 σε 10 βρέθηκε να μην επηρεάζει σημαντικά την καταλυτική συμπεριφορά.



Σχήμα 7: Επίδραση του λόγου CO₂:C₃H₈ στη (A) μετατροπή του C₃H₈ και (B) την απόδοση ως προς C₃H₆ για τον καταλύτη 10%Ga₂O₃-Al₂O₃.

ΕΥΧΑΡΙΣΤΙΕΣ

 Το ερευνητικό έργο υποστηρίχθηκε 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).

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.
- [2] Liu L., Li H., Zhang Y. (2007). *Catal. Commun.* 2007, 8, 565-570.
- [3] Atanga, M.A., Rezaei, M., Jawad, A., Fitch, M., Rownaghi, A.A. (2018). *Appl Catal B.*, 220, 429-445.
- [4] Florou A., Vampos G., Natsi P.D., Kokka A., Panagiotopoulou P. (2024). *Nanomaterials*, 14 (1), 86.