

## Μελέτη της Αντίδρασης Μετατόπισης του CO με Ατμό σε Τροποποιημένους Καταλύτες Pt/TiO<sub>2</sub>

Ανδρέας Κουρουμλίδης<sup>1,2</sup>, Γεώργιος Μπάμπος<sup>1</sup>, Παρασκευή Παναγιωτοπούλου<sup>3</sup> και Δημήτρης Ι. Κονταρίδης<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Πατρών, 26504, Πάτρα

<sup>2</sup> ΕΛΒΙΟ Α.Ε. Συστημάτων Παραγωγής Υδρογόνου & Ενέργειας, Παλαιά Ε.Ο Πατρών - Αθηνών 10, 26500, Ρίο

<sup>3</sup> Σχολή Χημικών Μηχανικών και Μηχανικών Περιβάλλοντος, Πολυτεχνείο Κρήτης, 73100, Χανιά

\*dimi@chemeng.upatras.gr

Η αντίδραση μετατόπισης του CO με ατμό  $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$  (water-gas shift, WGS) έχει μελετηθεί εκτενώς εξαιτίας της εφαρμογής της σε διάφορες βιομηχανικές διεργασίες, όπως η παραγωγή υδρογόνου από την αναμόρφωση υδρογονανθράκων, η σύνθεση αμμωνίας και η επεξεργασία του αργού πετρελαίου [1]. Στις βιομηχανικές εφαρμογές χρησιμοποιούνται τυπικά δύο αντιδραστήρες WGS σε σειρά, με τον πρώτο να λειτουργεί σε θερμοκρασιακό εύρος 350 – 450 °C (high-temperature shift, HTS) και τον δεύτερο σε θερμοκρασίες 180 – 250 °C (low-temperature shift, LTS) [3]. Στόχος της αντίδρασης-HTS είναι η ποσοτική μετατροπή του CO, η οποία ευνοείται σε υψηλές θερμοκρασίες, ενώ η LTS επιτυγχάνει μείωση του ποσοστού του CO στο αέριο ρεύμα στα επιθυμητά επίπεδα [3]. Παλαιότερες ερευνητικές προσπάθειες που πραγματοποιήθηκαν στα συμμετέχοντα εργαστήρια έδειξαν ότι οι καταλύτες Pt επιδεικνύουν υψηλότερη ενεργότητα για την αντίδραση WGS σε σχέση με άλλα ευγενή μέταλλα (Pd, Rh, Ru) ενώ η ενεργότητα μεγιστοποιείται όταν ο Pt εναποτίθεται σε «αναγώγιμους» φορείς, όπως το TiO<sub>2</sub> [4]. Επίσης, βρέθηκε ότι η ενίσχυση του TiO<sub>2</sub> με αλκάλια ή αλκαλικές γαίες [5] καθώς και ο συνδυασμός του TiO<sub>2</sub> με ένα δεύτερο οξείδιο [6] μπορεί να βελτιώσει την ενεργότητα των διεσπαρμένων κρυσταλλινών Pt.

Σκοπός της παρούσας εργασίας είναι η αξιοποίηση των αποτελεσμάτων των παραπάνω ερευνητικών προσπαθειών για τη μελέτη της δυνατότητας περαιτέρω βελτίωσης της καταλυτικής ενεργότητας του Pt για την αντίδραση WGS [1-6]. Συγκεκριμένα, μελετήθηκε η επίδραση στην καταλυτική συμπεριφορά της ενίσχυσης του φορέα TiO<sub>2</sub> με αλκάλια (Na, Cs) ή αλκαλικές γαίες (Ca, Sr), της προσθήκης CeO<sub>2</sub> στον φορέα και της χρήσης ενός δεύτερου μετάλλου σε συνδυασμό με τον Pt. Οι καταλυτικές δοκιμές πραγματοποιήθηκαν σε πειραματική διάταξη που αποτελούνταν από έναν αντιδραστήρα σταθερής κλίνης, ρυθμιστές ροής μάζας για τον έλεγχο της ροής των αερίων της τροφοδοσίας (He, CO, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>), και μία αντλία HPLC και έναν εξατμιστή για τον έλεγχο της συγκέντρωσης του H<sub>2</sub>O στην τροφοδοσία. Μεταξύ των δειγμάτων που μελετήθηκαν, ο καταλύτης 0.5wt.%Pt/(2wt.%CaO/TiO<sub>2</sub>) επέδειξε την υψηλότερη ενεργότητα τόσο για την αντίδραση HTS όσο και για την αντίδραση LTS. Η απόδοση των πλέον υποσχόμενων δειγμάτων μελετήθηκε περαιτέρω υπό ρεαλιστικές συνθήκες αντίδρασης με χρήση καταλυτών σε μορφή πελλετών ή επιστρώσεων σε μονόλιθους και συγκρίθηκε με εκείνη δύο εμπορικών καταλυτών (SUDCHEMIE and Johnson-Matthey). Βρέθηκε ότι ο αριστοποιημένος καταλύτης επέδειξε ενεργότητα παρόμοια με τον εμπορικό καταλύτη της SUDCHEMIE και τον εμπορικό καταλύτη της Johnson-Matthey σε συνθήκες HTS και LTS αντίδρασης, αντίστοιχα.

### Αναφορές

- [1] C.M. Kalamaras, P. Panagiotopoulou, D.I. Kondarides, A.M. Efstathiou, *J. Catal.* **2009**, 264, 117.
- [2] P. Panagiotopoulou, D.I. Kondarides, *J. Catal.* **2009**, 267, 57.
- [3] P. Panagiotopoulou, D.I. Kondarides, *J. Catal.* **2004**, 225, 327.
- [4] P. Panagiotopoulou, D.I. Kondarides, *Catal.* **2006**, 112, 49.
- [5] P. Panagiotopoulou, D.I. Kondarides, *Appl. Catal.* **2011**, 101, 738.
- [6] P. Panagiotopoulou, D.I. Kondarides, *J. Catal.* **2007**, 127, 319.

**Ευχαριστίες:** Η εργασία υλοποιήθηκε στο πλαίσιο της Δράσης ΕΡΕΥΝΩ - ΔΗΜΙΟΥΡΓΩ - ΚΑΙΝΟΤΟΜΩ και συγχρηματοδοτήθηκε από την Ευρωπαϊκή Ένωση και εθνικούς πόρους μέσω του Ε.Π. Ανταγωνιστικότητα, Επιχειρηματικότητα & Καινοτομία (ΕΠΑνΕΚ) (MIS 5074538/ T1ΕΔΚ 00955).