

Título: COMBUSTÃO CATALÍTICA DO METANO UTILIZANDO ÓXIDOS MISTOS DE TITÂNIO, LANTÂNIO E SÓDIO

Autores: Soraia Teixeira Brandão e Lílian Tosta Simplicio

Instituições .: Universidade Federal da Bahia, Instituto de Química
Rua Barão de Geremoabo, Salvador (BA).

Existe um grande interesse no desenvolvimento de catalisadores que promovam a combustão catalítica do metano, pois isso permitiria a geração de energia utilizando turbinas a gás com uma maior eficiência, e minimizaria as emissões ambientais de poluentes como o CO e NOx. Os maiores desafios a serem superados para permitir uma ampla aplicação da combustão catalítica são o desenvolvimento de catalisadores que sejam estáveis sob temperaturas relativamente elevadas (1000-1400°C), típicas dos combustores, e secundariamente, um melhor entendimento sobre o complexo mecanismo de combustão, o que permitiria uma otimização no projeto do combustor.

Neste trabalho catalisadores mássicos, constituídos por óxidos mistos de titânio, lantânio e sódio foram avaliados na combustão catalítica do metano. Os catalisadores foram preparados a partir da adição de TiO₂ anatásio numa solução aquosa de nitratos de lantânio e sódio. A suspensão foi mantida sob agitação e temperatura de 80°C por 1h. Em seguida os precursores foram ativados com ar a 600°C por 10h e a 800°C por 4h.

As medidas de atividade foram realizados numa unidade constituída de microreator de quartzo acoplado a um cromatógrafo a gás. O produtos foram analisados utilizando uma coluna porapak QS e uma coluna de peneira molecular 5Å em paralelo, e um detetor TCD. Os ensaios acompanhando a reação em tempo real, foram realizados numa unidade de quimissorção TPSR acoplada a um detetor quadrupolar UTI 100 da Balzers.

Todos os catalisadores foram caracterizados por difração de raio X, após a preparação e após o teste catalítico, utilizando um equipamento XRD-6000 Shimadzu.

Os catalisadores preparados nas razões molar Ti/La/Na 1/1/2, 1/2/1 e 2/1/1 foram testados na reação de combustão do metano e os resultados são indicados na tabela abaixo:

Catalisador Ti/La/Na	Conversão do metano (%)	Seletividade a CO ₂ (%)	Seletividade a CO (%)
1/1/2	20,0	41,8	-
1/2/1	17,5	48,4	-
2/1/1	17,4	53,0	13,8

Tabela 1- Condições operacionais: P= 1 atm, T= 750°C, CH₄/O₂ = 5, GHSV= 2500 h⁻¹, P_{CH₄}= 0,61 (N₂ como diluente), m_{cat}= 1 g.

Para minimizar os efeitos difusionais operou-se em condições de moderada conversão. Ao comparar-se os resultados da tabela 1, observou-se que o catalisador 1/1/2 com o maior teor em óxido de sódio apresentou a menor seletividade a CO₂ (41,8%) e não foi detectado CO. Com o catalisador 1/2/1, aumentando-se o teor de óxido de lantânio, observou-se uma considerável elevação na seletividade a CO₂ (48,4%). O melhor resultado foi obtido para o catalisador 2/1/1, ou seja o mais rico em óxido de titânio, resultando numa seletividade de 53% em CO₂ e 13,8% em CO.

Os ensaios utilizando a unidade TPSR, foram realizados alimentando pulsos de metano sob fluxo de oxigênio e hélio. A análise do perfil correspondente à concentração do CO₂ indicou o seguinte comportamento para cada um dos catalisadores Ti/La/Na acima mencionados:

Catalisador 1/1/2 – O perfil do CO₂ indica a formação imediata de carbonatos superficiais. Na ausência de metano, o perfil do CO₂ apresenta um decaimento da concentração muito lento o que seria justificado pela decomposição térmica dos carbonatos o que eleva a concentração de CO₂ e O₂ na fase gás.

Catalisador 1/2/1 – O perfil do CO₂ também indica a formação de carbonatos, mas nesse caso a presença de CO₂ na fase gás ocorre com um maior atraso em relação aos outros catalisadores, o que representa uma decomposição mais lenta dos carbonatos superficiais.

Catalisador 2/1/1- Nesse caso o perfil do CO₂ e totalmente diverso dos casos anteriores, indicando menor carbonatação do catalisador.

Os resultados obtidos indicam que a presença de uma elevada concentração sódio (catalisador 1/1/2), ou seja sítios fortemente básicos, desfavorecem a reação de combustão. Tais sítios sofrem extensa carbonatação. Elevadas concentrações de lantânio (1/2/1) favorecem reação de combustão, e nesse caso, ocorre a formação de carbonatos que decompõem mais lentamente. O catalisador 2/1/1, com maior teor de titânio, apresenta as melhores características para reação de combustão, sendo aquele com menor incidência de carbonatação.