

Preparação e caracterização de catalisadores de Ni/Al₂O₃ para a reação de reforma a seco do metano visando a obtenção do gás de síntese.

Daniela Zambelli Mezalira¹ (PG), Joyce Amaral Silveira¹ (IC), Luiz Fernando Dias Probst¹ (PQ)*

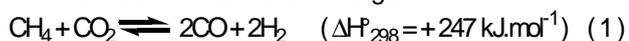
¹ Laboratório de Catálise Heterogênea – Universidade Federal de Santa Catarina, 88040-900, Florianópolis-SC, Brasil.

* probst@qmc.ufsc.br

Palavras Chave: Catálise, reforma a seco, metano, gás de síntese.

Introdução

A reforma a seco do metano (reação 1) está se tornando um assunto atraente e desafiador para a utilização química do gás natural e gás carbônico, que são substâncias relacionadas intimamente com o efeito estufa e recursos de energia.



Ela se justifica em relação à reforma a vapor, pela substituição de H₂O por CO₂, produzindo o gás de síntese (CO + H₂) com baixa razão H₂/CO, a qual é adequada para vários processos químicos.¹

Este trabalho objetivou preparar catalisadores metal-óxido suportados e determinar seu comportamento catalítico frente à reação de reforma a seco do CH₄, para obtenção do gás de síntese.

Resultados e Discussão

Catalisadores com 20% de Ni foram preparados pelo método de impregnação úmida (alumina comercial e alumina esférica²) e pelo método de precursor polimérico (Pechini³). Depois de prontos, os catalisadores foram calcinados a 700°C por 5h.

A atividade catalítica dos catalisadores foi avaliada através da reação de reforma a seco do metano. A reação ocorreu à 625°C, fluxo de 35cm³/min e composição molar N₂:CH₄:CO₂ (4:1:1). Os produtos reacionais foram analisados em CG utilizando duas colunas empacotadas (peneira molecular 5A e Porapak-Q) e detector de condutividade térmica (TCD). A atividade catalítica foi avaliada em termos da conversão do metano: $C_{\text{CH}_4} = (Q_{\text{conv}}/Q_{\text{CH}_4}) \times 100\%$, onde Q_{conv} = quantidade de CH₄ convertido e Q_{CH_4} = quantidade total de entrada de CH₄ no reator.

A amostra do método de Pechini apresentou a maior área específica, 170m²/g. Não houve mudanças significativas nos valores de área superficial e volume de poros após o teste catalítico, indicando que não ocorreram efeitos de sinterização e nem de deposição apreciável de material carbonáceo nos poros do suporte.

Como mostrado na Figura 1(a) os catalisadores apresentaram um pico de consumo máximo de H₂ próximo a 800°C indicando a presença de NiAl₂O₄. Os resultados de difração de raios-X indicam a presença

31ª Reunião Anual da Sociedade Brasileira de Química

da fase γ -Al₂O₃, porém pode haver ainda NiO e NiAl₂O₄ devido os picos principais desses compostos apresentarem-se em posições angulares muito próximas. O comportamento catalítico dos catalisadores na reforma do metano está ilustrado na Figura 1(b). Para a amostra ? foi observada uma elevada atividade catalítica, apresentando por volta de 70 % de conversão de CH₄, mantendo-se relativamente estável durante as 4h de reação. A amostra ! apresentou uma conversão de CH₄ muito parecida com a anterior, porém ocorreu uma diminuição da conversão do CO₂ devido a a formação de coque que se depositou sobre a superfície do catalisador. Já a amostra ? apresentou um comportamento bastante inesperado. A grande quantidade de coque observada para este catalisador indica a presença da reação de decomposição do CH₄. Podemos inferir que esse catalisador sofre modificação de seus sítios ou estes estão bloqueados para a reação de reforma do metano, ou de alguma forma o reagente CO₂ deixou de passar no sistema reacional.

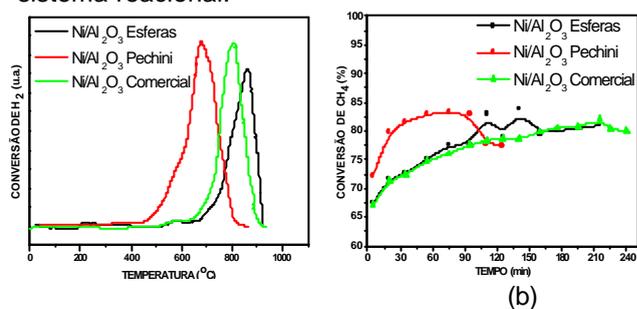


Figura 1. (a) Perfil da Redução a Temperatura Programada; (b) Gráfico de Conversão do Metano.

Conclusões

O método de impregnação úmida apresentou resultados semelhantes para os catalisadores estudados, convertendo em torno de 70% de CH₄. Para o catalisador preparado pelo método de Pechini ocorreu a reação de decomposição do CH₄ obtendo apreciável quantidade de H₂ acompanhado de uma grande deposição de carbono na superfície do catalisador.

Agradecimentos

Os autores agradecem à UFSC e ao CNPq.

¹ Jun-Juan, J.; Roman-Martinez, M.C.; Illan-Gomez, M.J. *Appl. Catal. A: Gen.* **2006**, 301, 9.

² Fajardo, H.V.; Martins, A.O.; Almeida, R.M.; Noda, L.K.; Probst, L.F. D.; Carreño, N.L.V.; Valentini, A. *Mater. Lett.* **2005**, 59, 3963.

³ Pechini, M. P. *US Patent* 3, 330, 697, July, **1967**.