

Resumen

Esta tesis está centrada en la combinación de diferentes tecnologías para mejorar las tecnologías emergentes de captura y almacenamiento de carbono (CSS) y la revalorización del CO₂ capturado. La principal tecnología estudiada en esta tesis fueron las membranas de transporte de oxígeno (OTMs), las cuales pueden producir oxígeno puro de forma más flexible que las actuales tecnologías de producción de oxígeno, como la destilación criogénica de aire. La producción de oxígeno puro es crucial para desarrollar reactores de oxidación que podrían ser más eficientes para la captura de CO₂ que los reactores actuales de combustión con aire. Los estudios sobre OTMs se dividieron en dos temas principales: membranas de bifásicas estables en CO₂ y membranas basadas en BSCF (Ba_{1-x}Sr_xCo_{1-y}Fe_yO_{3-δ}). Por otro lado, para la revalorización del CO₂ capturado, se estudió la tecnología de looping químico basada en catalizador de óxido de cerio, que aprovecha las propiedades redox del catalizador a diferentes pO₂ y altas temperaturas (entre 700-1400 °C).

En general, las principales etapas limitantes en OTMs son la transferencia de oxígeno a través de la membrana y las reacciones superficiales. Por eso, una mejora en las propiedades de la capa catalítica podría mejorar la permeación total de oxígeno. El primer estudio sobre membranas bifásicas se centró en el estudio de capas catalíticas con distintas proporciones de ambas fases. Para este estudio, se seleccionó el NFO-CTO (NiFe₂O₄/Ce_{0.8}Tb_{0.2}O_{2-δ}) como composite. Este material ya ha sido estudiado en nuestro laboratorio, y mostró una gran estabilidad en atmósferas de CO₂, pero con baja permeación de O₂ en comparación con otros composites. Este estudio mostró resultados interesantes, y se combinó con medidas de espectroscopia de impedancia electroquímica (EIS), utilizadas habitualmente para estudiar electrodos para pilas de combustible de óxido sólido (SOFC) y pilas de electrólisis de óxido sólido (SOEC). El segundo estudio sobre composites para OTMs se centró en el aumento de la permeación de oxígeno con composites basados en espinela-fluorita. En este caso, el transporte de oxígeno está controlado, además de por la temperatura y el gradiente de pO₂, por la conductividad ambipolar, en la que intervienen las conductividades eléctrica e iónica. Así, se cambió la fase de NFO por la fase de CMO (Co₂MnO₄) que tiene mayor conductividad total que el NFO. El composite resultante (CMO-CTO) ha mostrado un mayor rendimiento que el material predecesor NFO-CTO.

Como se ha mencionado anteriormente, el otro estudio sobre OTM se realizó con membranas basadas en BSCF. En este estudio, la membrana capilar BSCF fue electrificada para aumentar la temperatura de la membrana por efecto Joule y como consecuencia un aumento en la permeación de oxígeno. Además, se estudió este efecto bajo deshidrogenación oxidativa de etano, obteniéndose una mejora importante para las membranas BSCF electrificadas en comparación

con las membranas BSCF no electrificadas. Estos estudios abren las puertas al uso de ellas con reactores a más baja temperatura.

El último estudio se centra en la revalorización del CO₂ mediante el reformado de metano por ciclos químicos. Los ciclos químicos están basados en las propiedades redox del catalizador y las dos etapas de reducción y oxidación del catalizador. La reducción del catalizador es realizada mediante temperatura y en condiciones inertes o con corrientes reductoras como por ejemplo en metano. Los estudios se centran en la reducción a través de metano que trabaja a temperaturas más bajas que para corrientes inertes y, además, proporciona corrientes de *syngas* (mezcla de CO y H₂) en la etapa de reducción del catalizador, que mejora la eficiencia global del proceso. La revalorización del CO₂ se realizaba en la etapa de oxidación del catalizador. La oxidación de estos catalizadores podría formarse con flujos de H₂O y/o CO₂ a altas temperaturas 700-1000 °C. Nuestro estudio se centra en óxidos de cerio dopados al 10% con elementos trivalentes, generalmente lantánidos. En este estudio se correlacionó la velocidad de *splitting* del CO₂ en la etapa de oxidación con el volumen de celda de la estructura cristalina y la conductividad total de estos materiales.