Resumen

Antes de iniciar, es el momento de compartir que como suele ocurrir en la investigación científica, usualmente se inicia con una idea puntual y definida y durante la marcha está cambia un poco de rumbo. Así, a pesar de que el título y los objetivos del presente documento se centran en la oxidación catalítica de metano para obtener metanol, durante la lectura se encontrará información relacionada con la oxidación catalítica de metanol a los diferentes productos que se pueden obtener, como dimetil éter, formaldehído, dimetoximetano y óxidos de carbono. La razón de los anterior surgió durante el desarrollo del trabajo con base en la pregunta, ¿Qué pasará con el metanol que se forme a partir de la oxidación de metano? De esta manera, se decidió evaluar la inicialmente la oxidación catalítica de metanol con el fin de reconocer los productos a los cuales podría llegar la oxidación de metano si no se lograba "parar" la reacción en el producto intermedio buscado, el metanol.

Dicho lo anterior, también es prudente hacer la salvedad de que a pesar de que inicialmente, con base en la experiencia de los trabajos adelantados al interior del grupo se definió usar materiales catalíticos con hierro y molibdeno sintetizados por el método sol-gel, durante el desarrollo del estudio se decidió buscar otras alternativas lo cual condujo a sintetizar materiales por el mismo método, pero incluyendo vanadio y un caso excepcional cambiando el método de síntesis, por impregnación. Así, además de lo propuesto en el título y objetivos el documento, este se extiende un poco más con el fin de querer comprender que ocurre en los procesos de oxidación catalítica empleando diferentes catalizadores.

La oxidación catalítica de hidrocarburos es un proceso que se evalúa desde los inicios de la catálisis debido a la importancia de obtener productos de interés comercial que contribuyan con el desarrollo industrial y económico del mundo. En el presente documento se presentan los resultados de la síntesis y caracterización de materiales catalíticos de hierro, molibdeno y vanadio, así como, los resultados de actividad catalítica en la oxidación de metano y metanol.

Inicialmente se presenta una breve historia de la catálisis, así como de los procesos de oxidación selectiva de hidrocarburos. Se aborda los conceptos básicos involucrados en la catálisis heterogénea haciendo hincapié en el papel de los materiales catalíticos en procesos químicos de oxidación. De la misma manera, se muestra los métodos de preparación denominados en la literatura como sol-gel e impregnación, identificando la influencia de cada etapa de preparación con las propiedades físicas y químicas de los materiales. Adicionalmente, se presenta los conceptos relevantes de algunas de las técnicas instrumentales empleadas para reconocer las propiedades físicas y químicas de los catalizadores, lo cual brinda información y permite el entendimiento de la composición y estructura de los materiales.

Por otra parte, se presentan aspectos relacionados con la obtención de metanol a partir de gas de síntesis y se abordan algunas de las características más importantes de la oxidación catalítica de metanol, tales como condiciones de reacción, propiedades requeridas en los catalizadores y los productos de interés. Así mismo, se estudian las necesidades específicas requeridas para la oxidación selectiva de metano a metanol, partiendo de la premisa de la dificultad del proceso debido a la estabilidad de la molécula de metano. Adicionalmente se ilustran los tipos de materiales catalíticos empleados y los resultados de conversión y selectividad; de la misma manera, se abordan las reacciones que pueden ocurrir y los productos que se pueden formar durante el proceso de oxidación catalítica de metano a metanol o formaldehído con el fin de comprender las implicaciones experimentales que trae tal proceso.

Posteriormente, se presentan los resultados obtenidos en la síntesis de materiales catalíticos de hierro, molibdeno, vanadio y la mezcla de los tres, soportados en sílice por el método sol-gel. Tales materiales son empleados en las reacciones de oxidación selectiva de metanol y metano. Dentro de los resultados, se evidencia que la sílice empleada como soporte presenta dos formas de cuarzo dependiendo de la temperatura de calcinación a la cual se someta, α-cuarzo y β-cuarzo. Por otra parte, se identifica que los materiales preparados con diferentes cargas de hierro (0,5, 1,5 y 5,0 % en masa) y calcinados a 450 y 750°C presentan, además de una banda característica de la sílice, una serie de picos asignados a especies de hierro tipo hematita α-Fe_2O_3 lo cual permite concluir que la transformación térmica del precursor de

hierro (acetato de hierro heptahidratado) permitió la obtención de óxidos de hierro con estado de oxidación Fe^{3+}.

Una vez discutidos los resultados de la caracterización, se presenta los resultados de actividad catalítica en los procesos de oxidación de metanol y metano. Inicialmente se describe el sistema catalítico empleado, luego, se discuten los resultados catalíticos obtenidos empleando catalizadores de hierro, molibdeno y vanadio soportados en óxido de silicio en función de la carga de metales, temperaturas de calcinación y condiciones de síntesis. Para la oxidación de metanol se observan valores de conversión alrededor del 90 % en mol con selectividades a diferentes productos de reacción como formaldehído, dimetil éter, formiato de metilo. En cuanto a la oxidación catalítica de metano, se observan valores de conversión alrededor de 3,0 % en mol con selectividades principalmente a formaldehído y óxidos de carbono.

Por otra parte, se presenta una comparación de los resultados de actividad catalítica en los procesos de oxidación de metano y metanol. La comparación se hace empleando catalizadores de hierro, molibdeno y hierro-molibdeno, sintetizados por el mismo método sol-gel (modificando el pH). De esta manera, se presentan los resultados de caracterización de los catalizadores por diferentes métodos físicos y químicos, así como, los resultados de actividad catalítica en la oxidación de metano y metanol. Se observa que el control del pH durante la síntesis por el método sol-gel mejora la dispersión de los metales en la matriz de sílice.

Finalmente, se presentan las conclusiones generales de acuerdo con los resultados obtenidos, así como, recomendaciones que permitan orientar las siguientes actividades a realizar, direccionadas hacia la síntesis de materiales catalíticos y la evaluación en procesos de oxidación de metano y metanol.