



**UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO NORTE**  
**CENTRO DE TECNOLOGIA-CT**  
**DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA QUÍMICA**  
**PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA-PPGEQ**



**DISSERTAÇÃO DE MESTRADO**

**SÍNTESE E CARACTERIZAÇÃO DO CARBETO DE MOLIBDÊNIO  
NANOESTRUTURADO PARA FINS CATALÍTICOS NA REAÇÃO DE  
OXIDAÇÃO PARCIAL DO METANO**

**Kalyanne Keyly Pereira Gomes**

**Natal/RN**

**Agosto de 2006**

Divisão de Serviços Técnicos

Catálogo da Publicação na Fonte. UFRN / Biblioteca Central Zila Mamede

Gomes, Kalyanne Keyly Pereira.

Síntese e caracterização do carbeto de molibdênio nanoestruturado para fins catalíticos na reação de oxidação parcial do metano / Kalyanne Keyly Pereira Gomes. – Natal, RN, 2006.

93 f. : il.

Orientador: Carlson Pereira de Souza.

Co-Orientador: João Fernandes de Sousa.

Dissertação (Mestrado) – Universidade Federal do Rio Grande do Norte. Centro de Tecnologia. Programa de Pós-Graduação em Engenharia Química.

1. Carbeto de molibdênio – Dissertação. 2. Nanoestruturado – Dissertação. 3. Reforma catalítica – Dissertação. 4. Oxidação parcial – Dissertação. I. Souza, Carlson Pereira de. II. Souza, João Fernandes de. III. Título.

RN/UF/BCZM

CDU 669 28(043 3)



## DISSERTAÇÃO DE MESTRADO

# **SÍNTESE E CARACTERIZAÇÃO DO CARBETO DE MOLIBDÊNIO NANOESTRUTURADO PARA FINS CATALÍTICOS NA REAÇÃO DE OXIDAÇÃO PARCIAL DO METANO**

*Dissertação apresentada ao Corpo Docente do  
Programa de Pós-graduação em Engenharia Química  
da Universidade Federal do Rio Grande do Norte  
como parte dos requisitos necessários à conclusão  
do curso de Mestrado.*

Orientador: Carlson Pereira de Sousa, Prof.. Dr.

Co-orientador: João Fernandes de Sousa, Prof. Dr.

## RESUMO

---

**Gomes, Kalyanne Keyly Pereira** – Síntese e Caracterização do Carbeto de Molibdênio Nanoestruturado Para Fins Catalíticos na Reação de Oxidação Parcial do Metano. Dissertação de Mestrado, UFRN, Programa de Pós-graduação em Engenharia Química, Área de concentração: Engenharia de Processos, Natal/RN, Brasil.

**Orientador:** Prof. Dr. Carlson Pereira de Souza

**Co-orientador:** Prof. Dr. João Fernandes de Sousa

---

**RESUMO:** Os materiais nanoestruturados são caracterizados por terem um tamanho de cristalito inferior a 100 nm podendo atingir 1 nm. Devido às dimensões extremamente reduzidas dos cristalitos, as propriedades destes materiais são significativamente modificadas relativamente às dos materiais convencionais. No presente trabalho foi realizado um estudo de síntese e caracterização do carbeto de molibdênio, visando obtê-lo com tamanho de partículas na ordem de nanômetros e avaliar seu potencial como catalisador na reação de oxidação parcial do metano. O método utilizado para obtenção do carbeto de molibdênio foi a partir do precursor heptamolibdato de amônio que foi desenvolvida em forno bipartido, em reator de leito fixo, com uma taxa de aquecimento de 5°C/min, em um fluxo de metano e hidrogênio cuja vazão foi de 15L/h com 5% de metano para todos os ensaios. As temperaturas estudadas foram 350, 500, 600, 650, 660, 675 e 700°C e nos tempos de isoterma de 0, 60, 120 e 180 minutos, sendo que a determinação das fases presentes, estrutura cristalina e tamanho de cristalitos foram obtidos por refinamento de estrutura pelo método de Rietveld. O carbeto obtido a 660°C e 3 horas de reação foi o que apresentou menor tamanho de cristalito 24 nm. Determinada a melhor condição de síntese foi realizado um estudo de passivação, nestas condições, para verificar a estabilidade do carbeto ao ser exposto ao ar. O carbeto de molibdênio foi caracterizado por MEV, MET, análise elementar, ICP-AES, TG em atmosfera de hidrogênio e RTP. Através da análise elementar e ICP-AES foi verificada a presença de carbono livre. A TG em atmosfera de hidrogênio comprovou que é necessária a passivação do carbeto de molibdênio, pois ele é oxidado em temperatura ambiente. O teste catalítico foi realizado na planta semipiloto de Fischer-Tropsch do CTGAS, que é composta de um reator de leito fixo. O teste catalítico mostrou que o carbeto apresenta atividade para oxidação parcial, mas as condições operacionais devem ser ajustadas para melhorar a conversão.

---

### PALAVRAS-CHAVES:

|                         |                        |                    |
|-------------------------|------------------------|--------------------|
| - carbeto de molibdênio | - reator de leito fixo | - oxidação parcial |
| - nanoestruturado       | - reforma catalítica   | - metano           |

---

### BANCA EXAMINADORA

|                    |   |          |
|--------------------|---|----------|
| <b>Presidente:</b> | Prof. Dr. Carlson Pereira de Sousa                | DEQ/UFRN |
| <b>Membros:</b>    | Prof. Dr. José Marcos Sasaki                      | DF/UFC   |
|                    | Prof. Dr. Carlos Alberto Paskocimas               | DEM/UFRN |
|                    | Prof. Dr. João Fernandes de Sousa (Co-orientador) | DEQ/UFRN |

## **ABSTRACT**

---

Gomes, K. K. P. – Síntese e Caracterização do Carbeto de Molibdênio Nanoestruturado Para Fins Catalíticos na Reação de Oxidação Parcial do Metano. Dissertação de Mestrado, UFRN, Programa de Pós-graduação em Engenharia Química, Área de concentração: Engenharia de Processos, Natal/RN, Brasil.

---

**ABSTRACT:** The nanostructures materials are characterized to have particle size smaller than 100 nm and could reach 1 nm. Due to the extremely reduced dimensions of the grains, the properties of these materials are significantly modified relatively when compared with the conventional materials. In the present work was accomplished a study and characterization of the molybdenum carbide, seeking obtain it with particles size in the nanometers order and evaluate its potential as catalyst in the reaction of partial methane oxidation. The method used for obtaining the molybdenum carbide was starting from the precursor ammonium heptamolybdate of that was developed in split into two oven, in reactor of fixed bed, with at a heating rate of 5°C/min, in a flow of methane and hydrogen whose flow was of 15L/h with 5% of methane for all of the samples. The studied temperatures were 350, 500, 600, 650, 660, 675 and 700°C and were conducted for 0, 60, 120 and 180 minutes, and the percent amount and the crystallite size of the intermediate phases were determined by the Rietveld refinement method. The carbide obtained at 660°C for 3 hours of reaction showed the best results, 24 nm. Certain the best synthesis condition, a passivating study was accomplished, in these conditions, to verify the stability of the carbide when exposed to the air. The molybdenum carbide was characterized by SEM, TEM, elemental analysis, ICP-AES, TG in atmosphere of hydrogen and TPR. Through the elemental analysis and ICP-AES the presence carbon load was verified. TG in atmosphere of hydrogen proved that is necessary the passivating of the molybdenum carbide, because occur oxidation in room temperature. The catalytic test was accomplished in the plant of Fischer-Tropsch of CTGAS, that is composed of a reactor of fixed bed. Already the catalytic test showed that the carbide presents activity for partial oxidation, but the operational conditions should be adjusted to improve the conversion.

---

### **KEYWORDS:**

- |                      |                            |                     |
|----------------------|----------------------------|---------------------|
| - molybdenum carbide | - reactor of the fixed bed | - partial oxidation |
| - nanostructured     | - catalytic reforming      | - methane           |
-