



RESUMEN

El tema central de esta Tesis de Doctorado en Ciencia y Tecnología es el estudio de materiales cerámicos capaces de capturar dióxido de carbono (CO_2) en condiciones de alta temperatura, y la posterior, reutilización del gas como materia prima para la producción de hidrocarburos.

En particular, se llevó a cabo la síntesis de silicatos de litio (metasilicato de litio (Li_2SiO_3) y ortosilicato de litio (Li_4SiO_4)) utilizando carbonato de litio (Li_2CO_3) y óxido de silicio (SiO_2) como materiales de partida. El método de síntesis utilizado implica dos etapas consecutivas: molienda mecánica de bolas y tratamiento térmico.

Posteriormente, los materiales obtenidos fueron caracterizados antes y después de la interacción con el CO_2 , utilizando técnicas estructurales (DRX *ex situ e in situ* y espectroscopia de infrarrojo) y microestructurales (MEB). La capacidad de captura experimental de cada silicato fue evaluada por termogravimetría (TG), observando un comportamiento superior frente a CO_2 por parte de Li_4SiO_4 en comparación con Li_2SiO_3 .

También se estudiaron aspectos relevantes para la aplicación del Li_4SiO_4 como material capturador de CO_2 : la regeneración tras ciclos de sorción/desorción del gas, y la estabilidad fisicoquímica durante la exposición prolongada al aire a temperatura ambiente. El Li_4SiO_4 presenta una adecuada ciclabilidad, perdiendo un 5% de la capacidad de captura inicial después de 30 ciclos operando a 700°C y en un flujo de CO_2 puro. Por otra parte, el material evidencia ser susceptible a la exposición a la humedad del aire después de largos tiempos, siendo más notorio mientras mayor es el área superficial del material. Si bien, lo anterior disminuye la capacidad de captura del Li_4SiO_4 , puede ser revertido mediante un calentamiento inicial del Li_4SiO_4 a 700°C en gas inerte.

Adicionalmente, para contribuir a la sustentabilidad en la producción del material capturador se estudió un método extractivo de Li_2CO_3 a partir del mineral espodumeno disponible en Argentina. Se determinaron condiciones óptimas para extraer la sal de litio sin la utilización de solventes y a menores temperaturas respecto a lo reportado en la bibliografía.

Respecto a la reutilización del CO_2 , se llevaron a cabo ensayos de conversión del gas mediante hidrogenación empleando hidruros metálicos como fuente de hidrógeno y de especies con actividad catalítica. Primeramente, se estudió la interacción entre CO_2 e hidruros complejos (Mg_2FeH_6 y Mg_2NiH_4) en condiciones termoquímicas dinámicas y estáticas, obteniendo metano (CH_4) como principal producto. Por otra parte, se evaluó la interacción mecanoquímica entre CO_2 e H_2 , utilizando sólidos como portadores de cada gas: carbonato de litio (Li_2CO_3) e hidruro de magnesio (MgH_2), respectivamente.

Los resultados obtenidos muestran la formación de mezclas combustibles de H_2/CH_4 . Resultados similares, pero con menores rendimientos se obtuvieron al estudiar el sistema $\text{MgH}_2\text{-Li}_2\text{CO}_3$ bajo condiciones termoquímicas. En este caso, resulta de particular interés el estudio de la conversión del CO_2 portado en un sólido como Li_2CO_3 , el cual podría provenir de un residuo de la captura de CO_2 utilizando cerámicos de litio, Li_4SiO_4 , por ejemplo. La presente Tesis proporciona información que contribuye al entendimiento de la aplicación de Li_4SiO_4 como material capturador y sobre el potencial uso del CO_2 capturado para la obtención de productos de valor.