

Introducción

Óxidos de Cu

- ✓ Actividad catalítica en reacciones de oxidación
- ✓ Menor costo respecto a formulaciones con metales nobles

Óxidos Mixtos Cu/Zn

- Actividad en la oxidación catalítica de CO
- ✓ Eliminación de CO: Interés tecnológico y medioambiental

Propiedades Catalíticas

- Vinculadas con el tamaño y forma de los óxidos
- Control mediante el método de síntesis

Desempeño Catalítico

- Maximizado con el uso de micro-reactores (MR)
- ✓ MR: Sistemas catalíticos estructurados eficientes

Objetivos

Obtener crecimientos in-situ, aplicando un método de oxidación en fase gaseosa, de películas nano-estructuradas de óxidos mixtos de cobre y cinc en sustratos de latón. Estudiar variables de síntesis y caracterizar fisicoquímicamente las películas obtenidas. Posteriormente, analizar sus propiedades catalíticas mediante un micro-reactor en la oxidación catalítica de CO.

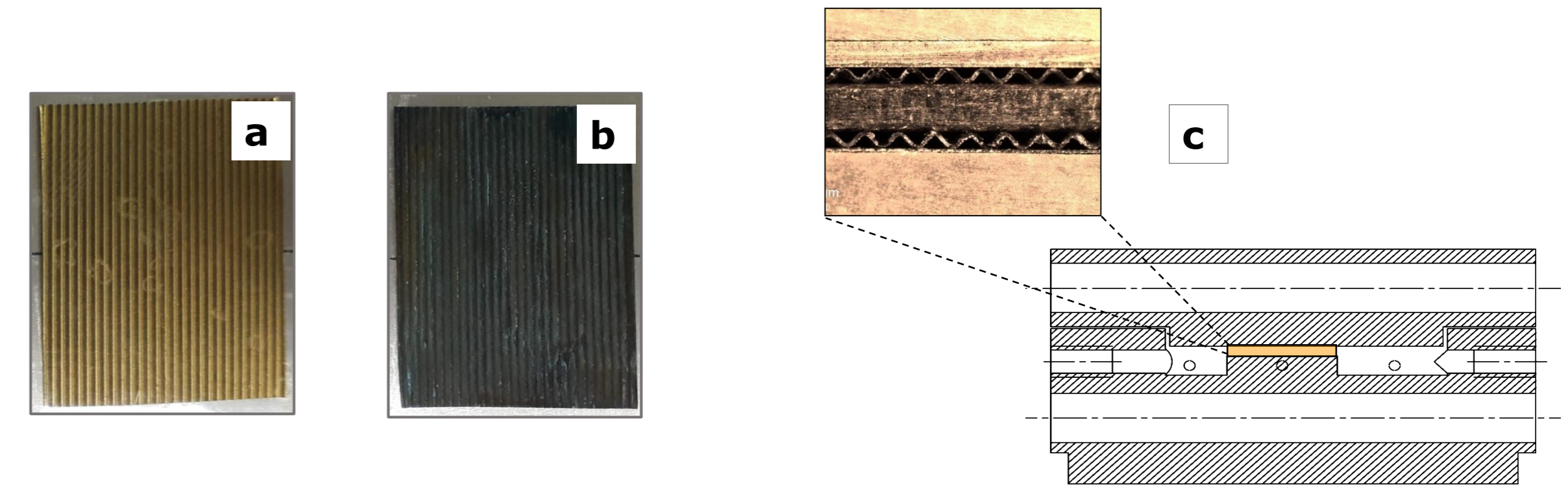


Figura 1: a) Sustrato de latón microplegado b) Sustrato post oxidación c) Esquema del micro-reactor y su ubicación dentro del módulo termostatzado

Metodología

Limpieza y acondicionamiento (plegado) del sustrato (Fig. 1 a)

Oxidación del sustrato con vapores de NH_4OH y H_2O_2 (80 °C) (Fig. 1 b)

Enjuague y secado en estufa (80 °C, 10 min)

✓ Caracterización fisicoquímica
✓ Evaluación catalítica en MR (Fig. 1 c)

Resultados

- ✓ El **tratamiento** generó una película de óxidos nanoestructurada:
- ✓ El **desarrollo de la película** mostró un engrosamiento de la capa hasta las 8 h y luego una disminución debido a la redisolución de los óxidos (Fig. 2)
- ✓ A bajos tiempos de síntesis (**2 h**) se observó un crecimiento abierto de nanoestructuras mientras que a las **6 h** dicho crecimiento se presentó densamente empaquetado (Fig. 4)

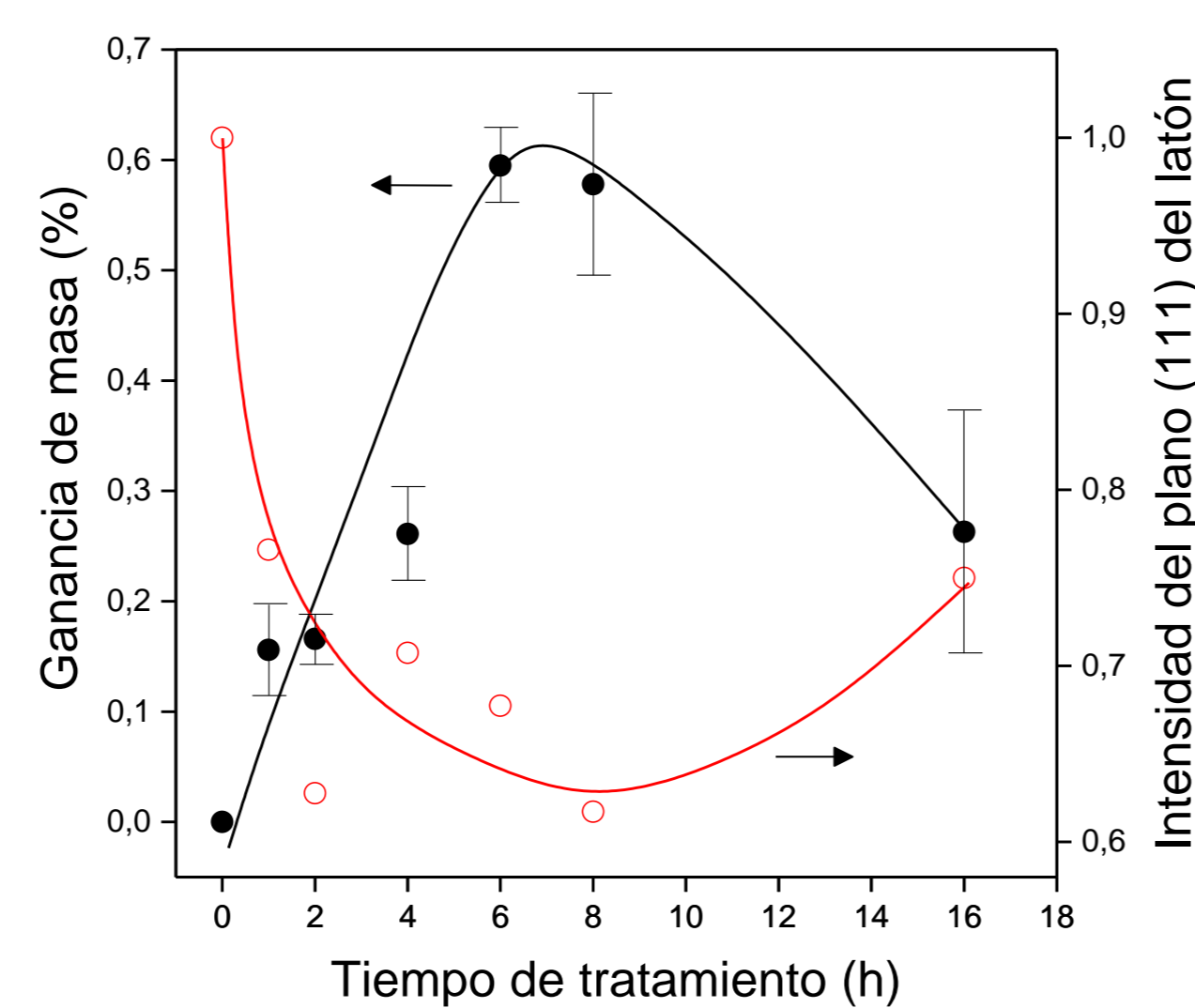


Figura 2: Ganancia de masa porcentual de los sustratos oxidados e intensidad (DRX) del plano (111) del latón a diferentes tiempos de síntesis

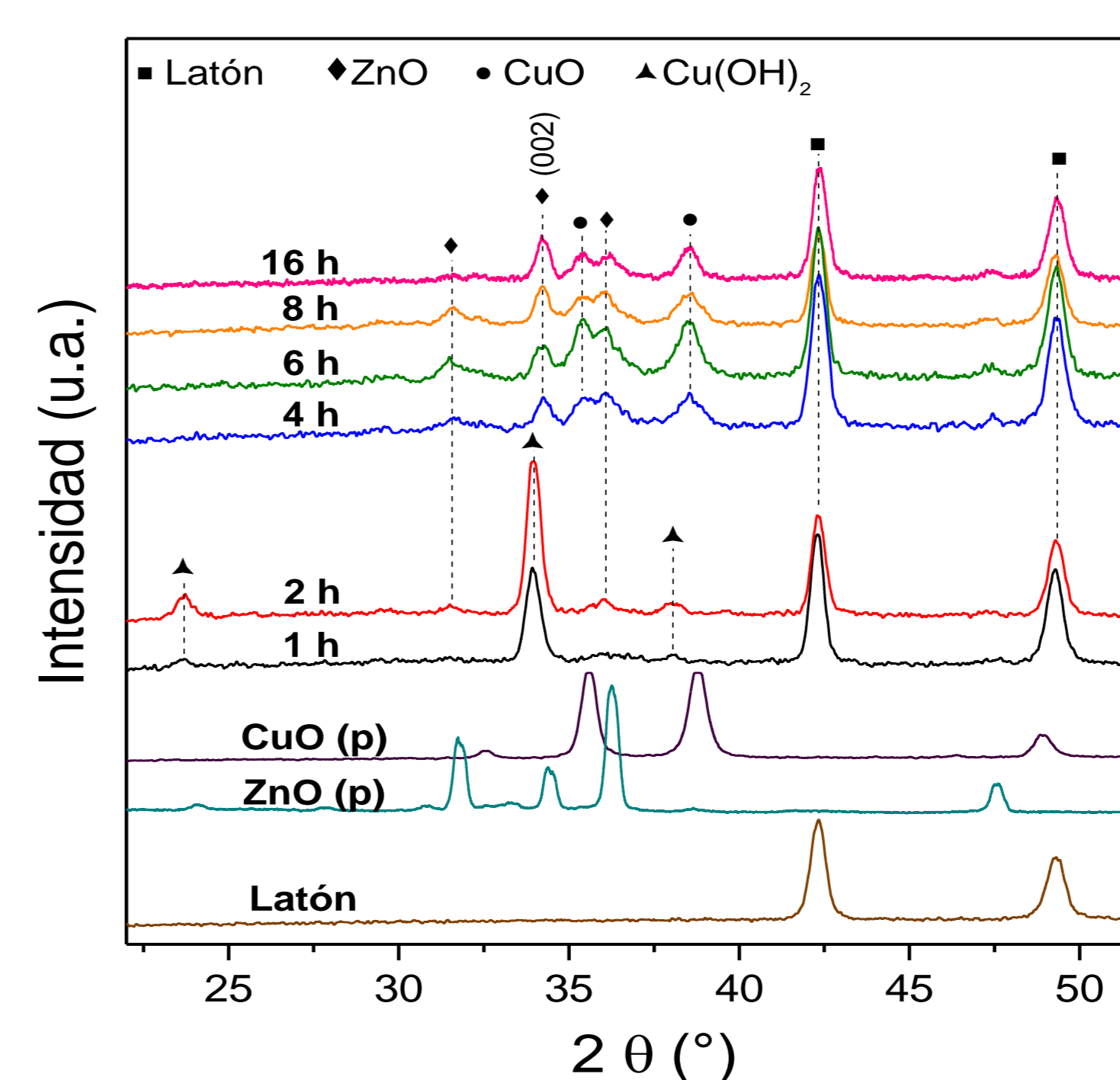


Figura 3: DRX de las muestras obtenidas a distintos tiempos

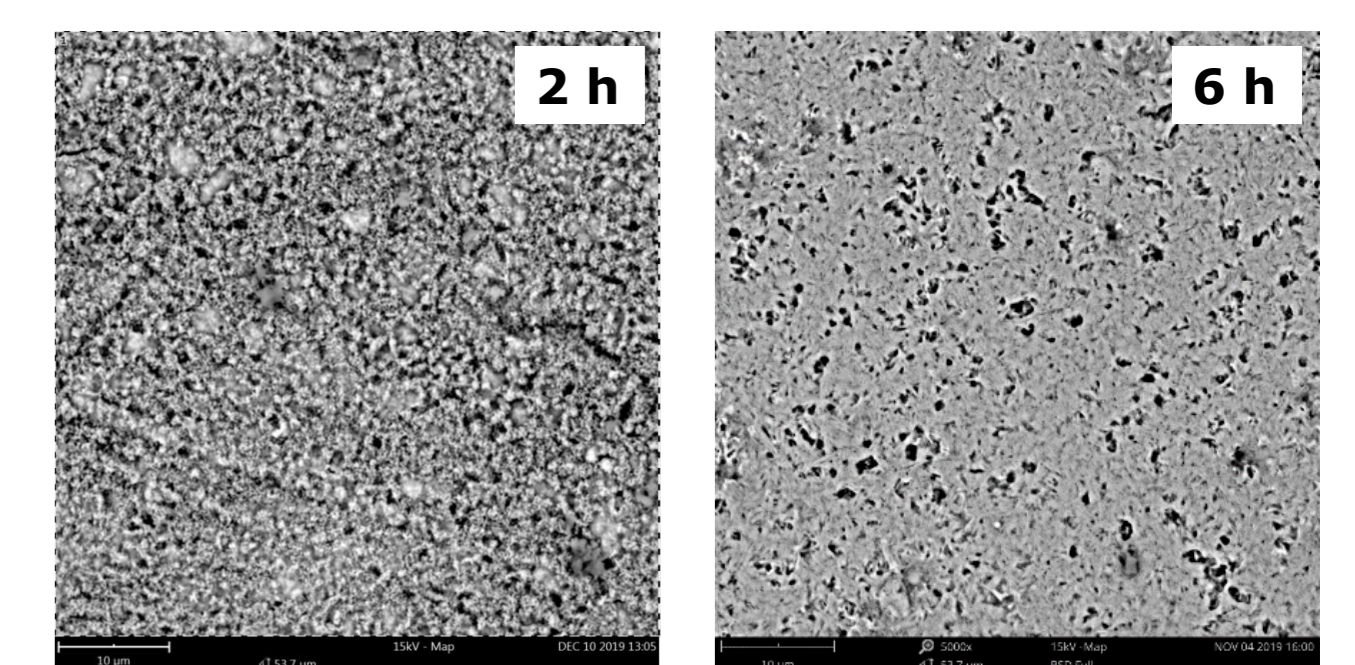
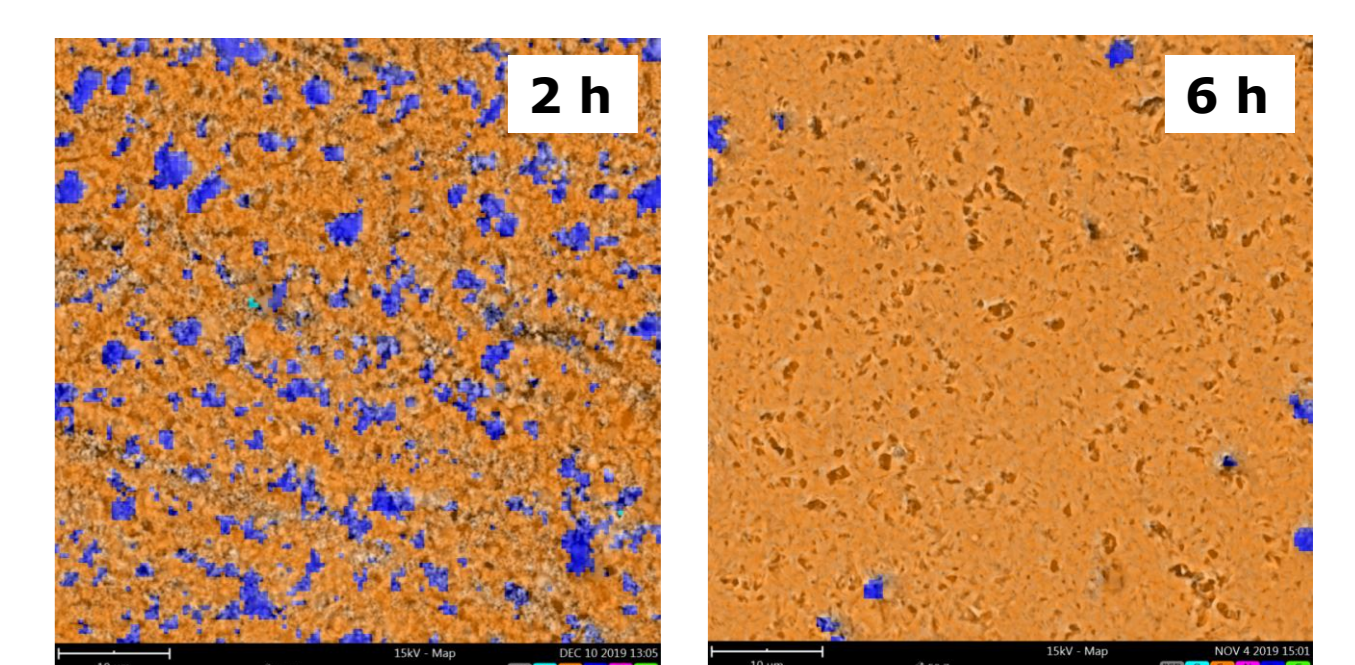


Figura 4: Imágenes SEM de los nano-óxidos de Cu y Zn obtenidos a 2 y 6 h (Vista frontal)



Elemento	% atómico	Elemento	% atómico
O	59.88	O	56.60
Cu	21.73	Cu	34.84
Zn	13.59	Zn	3.32
N	4.80	N	5.23

Figura 5: Mapeo elemental combinado Cu/Zn de las muestras obtenidas a 2 y 6 h y concentraciones atómicas elementales

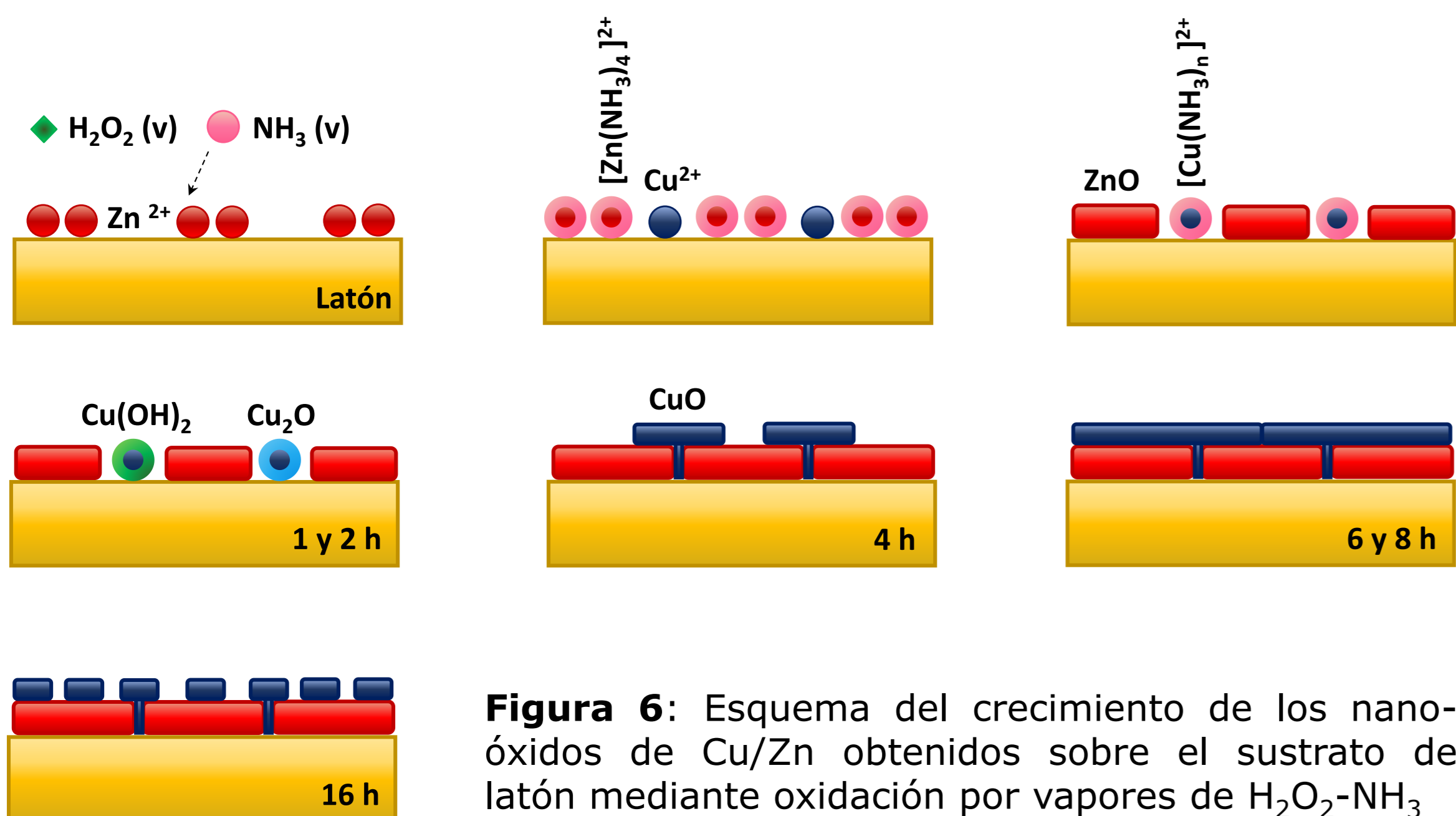


Figura 6: Esquema del crecimiento de los nano-óxidos de Cu/Zn obtenidos sobre el sustrato de latón mediante oxidación por vapores de $\text{H}_2\text{O}_2\text{-NH}_3$

El mecanismo de crecimiento dio lugar a películas de naturaleza estratificada, en las que primero se desarrolló una capa de ZnO y por sobre ésta, una capa con especies de Cu (Fig. 5 y 6).

✓ Las películas de óxidos mixtos de Cu y Zn presentaron **100 % de conversión a 200 °C** (Fig. 7)

✓ Las películas obtenidas tras 1 y 2 h de síntesis tuvieron la **mayor actividad específica** (Tabla 1)

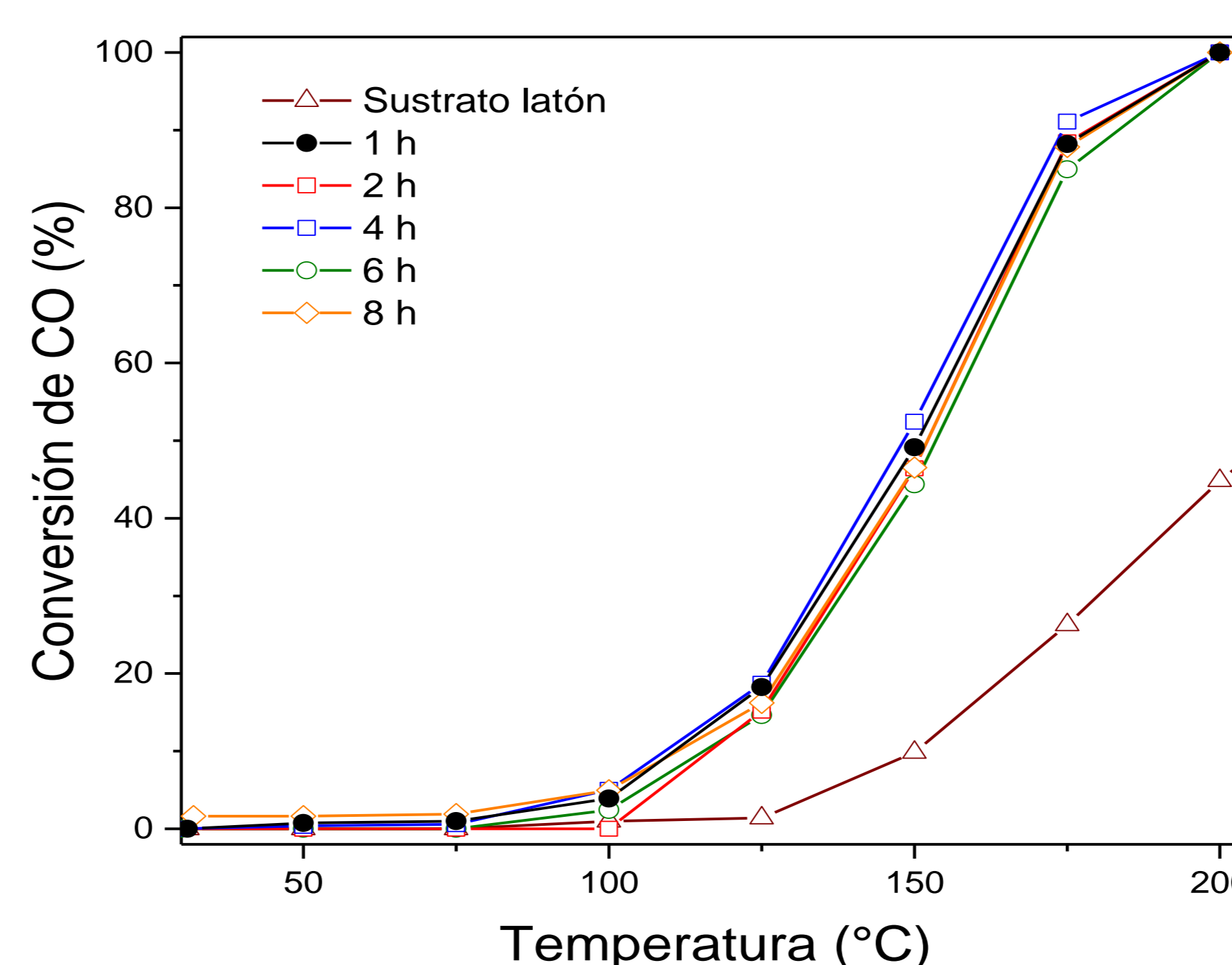


Figura 7: Actividad catalítica de las películas en la oxidación de CO (1% CO, 2% O_2 , balance en He)

Tabla 1: Actividad específica de las películas de Cu_xZnO

Muestra	mg totales de O ^a	T ⁵⁰ (°C)	Ra ^b
1 h	1,3	151	37,8
2 h	1,4	151	33,2
4 h	3,8	148	13,8
6 h	7,2	153	6,2
8 h	7,8	152	6,0

^a Masa de oxígeno incorporado en la síntesis

^b Conversión de CO a 150 °C (X^{150})/mg totales de O

Conclusiones

Se obtuvieron crecimientos nano-estructurados de mezclas de $\text{Cu}_x\text{-ZnO}$ mediante oxidaciones controladas de sustratos de latón. Se reguló la proporción de la masa de los óxidos, y su proporción superficial relativa, modificando el tiempo de síntesis. Se demostró que dichos crecimientos nanométricos en íntimo contacto son activos en la oxidación de CO y constituyen una plataforma interesante para el desarrollo de micro-reactores.

Agradecimientos

Agradecemos el financiamiento provisto por la ANPCyT (PICT 2241) y la Universidad Nacional del Litoral (CAI+D 0071). También se agradece el apoyo institucional de CONICET.