

ESTUDIO DE LA ACTIVIDAD CATALÍTICA DE CLUSTERS DE Cu SOPORTADOS EN TiO₂ EN LA REACCIÓN DE HIDROGENACIÓN DE CO₂

Khalil Jori¹, Iria Rodriguez Arias², David Buceta², Arturo Lopez-Quintela², José A. Rodriguez³, José M. Ramallo-López¹, Félix G. Requejo¹

¹ INIFTA, UNLP-CONICET, Diagonal 113 y 64, CP 1900, La Plata, Argentina.

² Physical Chemistry Department and NANOMAG Laboratory, USC, E-15782, Santiago de Compostela, Spain.

³ Brookhaven National Laboratory (BNL), Chemistry Division, US Department of Energy, Upton, NY 11973-5000, EEUU
Khaliljori10@gmail.com

Resumen

Debido al confinamiento cuántico, los aglomerados o clusters de átomos metálicos (AQC, por Atomic Quantum Clusters) con tamaños por debajo de 1.5 nm tienen un comportamiento diferente al de las nanopartículas. Por ejemplo, debido a su tamaño, éstos aglomerados no presentan un carácter metálico y tampoco muestran un comportamiento plasmónico, como se observa en las nanopartículas de Au, Ag y Cu [1]. En el caso de los AQC se observa, en cambio, la aparición de un "band gap" HOMO-LUMO similar al de los semiconductores. Los clusters de Cu muestran propiedades catalíticas importantes para la reacción de oxidación de CO [2]. En este trabajo presentamos un estudio in situ de espectroscopia de absorción de rayos X en la región cercana al borde (XANES) del sistema Cu-AQC/TiO₂ utilizado como catalizador de la reacción de hidrogenación de CO₂ en presencia de H₂.

Estudio de interacción Cu₅-AQC/soporte

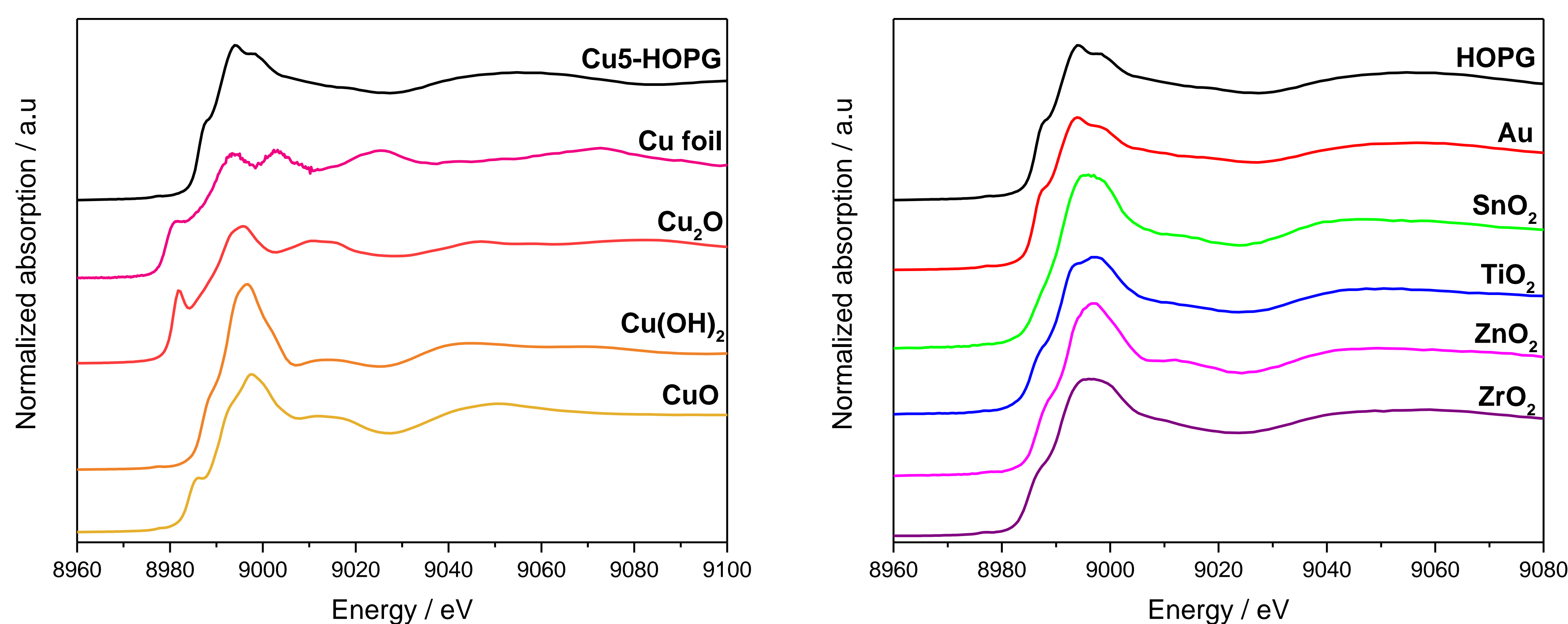


Figura 1. Espectros XANES del borde K-Cu de los AQC de Cu (izq.) comparados con referencias y (der.) en diferentes soportes.

Las muestras fueron soportadas por el método de drop casting y secadas en horno a 100°C. Las medidas XANES fueron obtenidas por fluorescencia

Estudio de reactividad

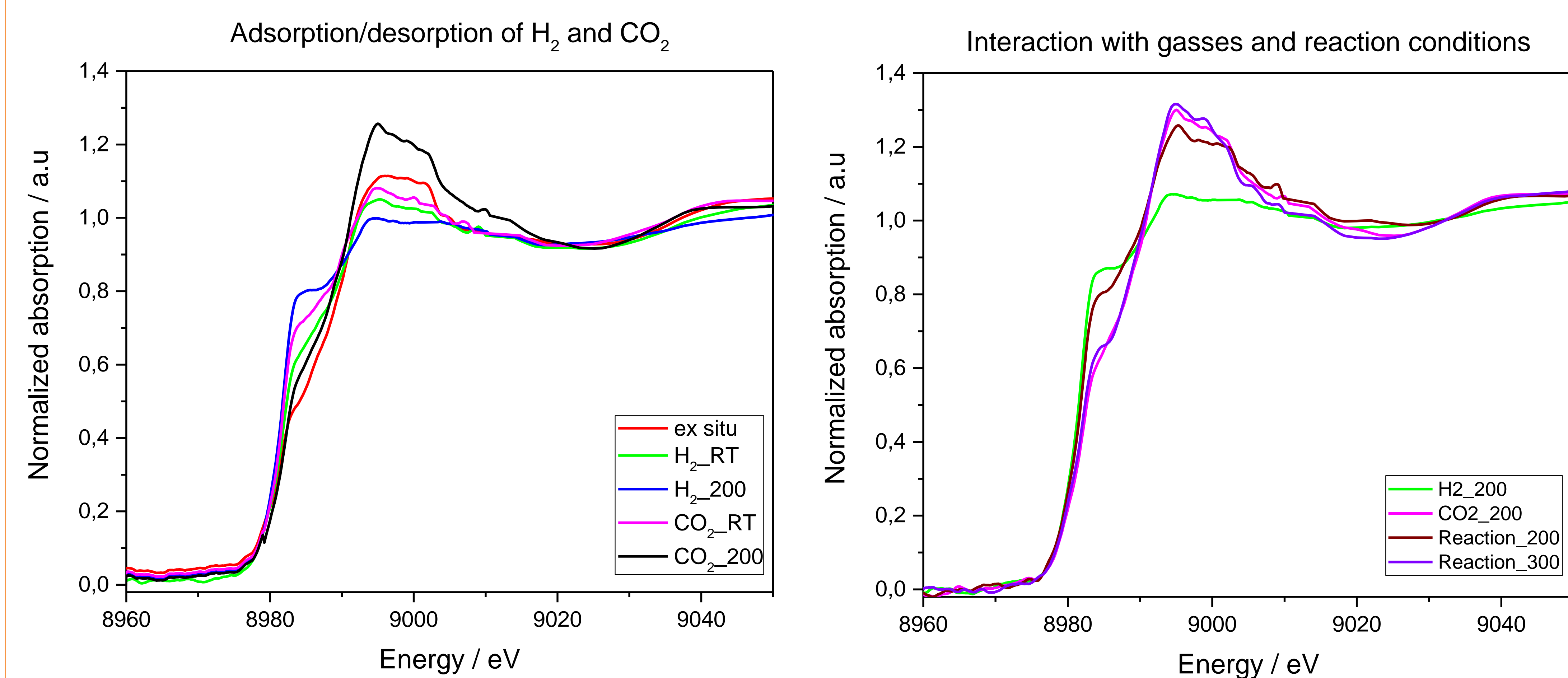
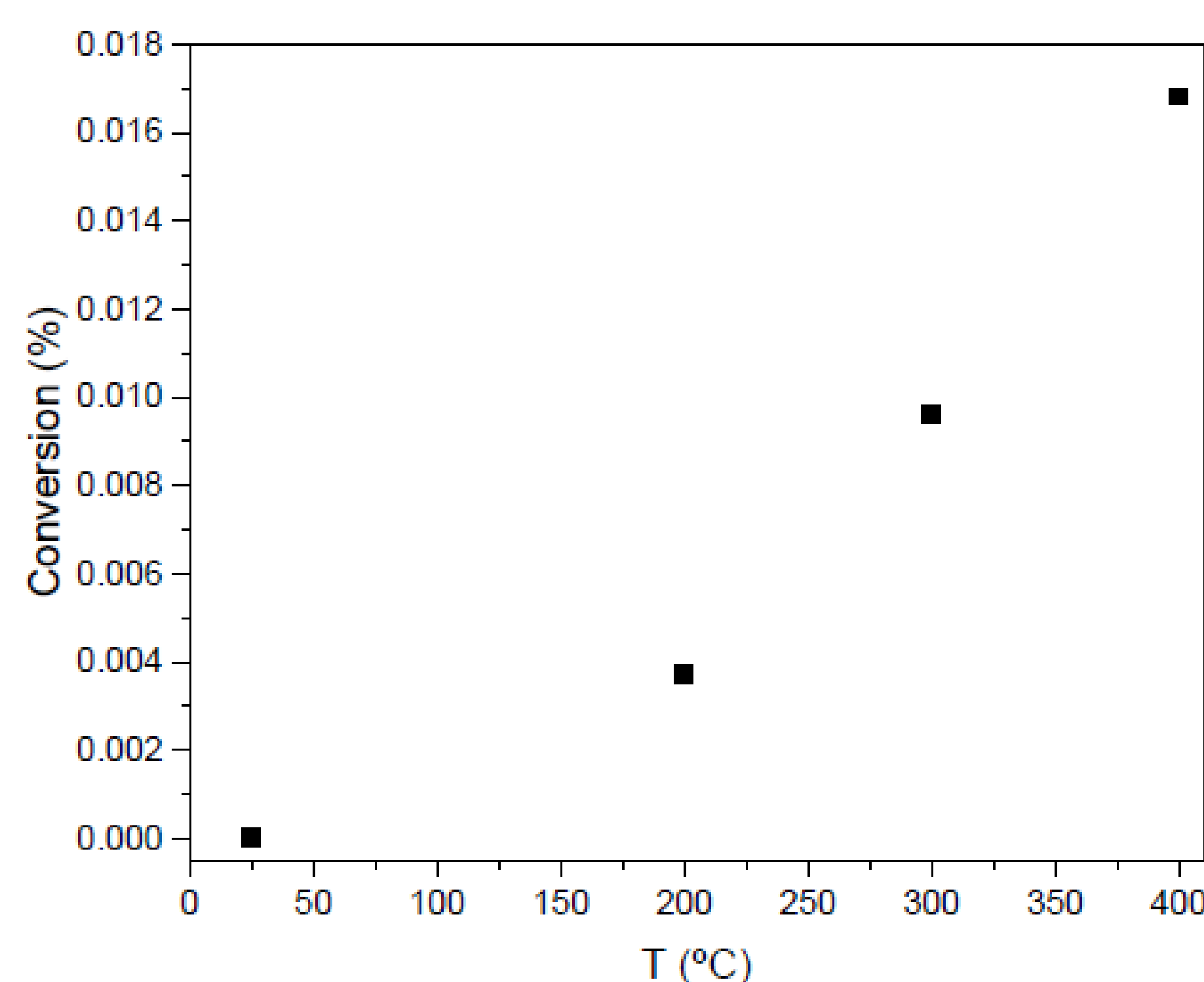


Figura 2. (arriba) Espectros XANES en el borde K-Cu de Cu₅AQC soportados en TiO₂ con (izq.) ambiente de H₂ and CO₂ (der.) ambiente de reacción (H₂:CO₂ 3:1) (abajo) Conversión vs T para la reducción de CO₂



No se observa formación de CO.
AQC loading 0.1%wt.
Los estudios de XAFS fueron realizados en la línea ISS del NSLS-II (Nueva York, EEUU)
Los estudios del reactor fueron realizados en el departamento de química del BNL (Nueva York, EEUU)

Conclusiones

Los AQC de Cu₅ se muestran como candidatos ideales para ser utilizados como catalizadores, variando sus propiedades electrónicas según el soporte (Figura 1).

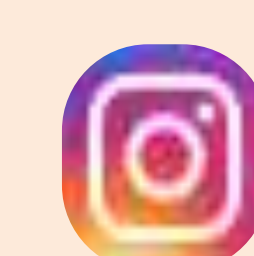
El sistema de Cu₅/TiO₂ puede adsorber y desorber de forma reversible H₂ y muestra actividad en la reducción de CO₂, produciendo selectivamente metano, a diferencia de otros catalizadores basados en Cu (Figura 2).

No se observa CO como producto secundario.

Referencias

- [1] M. Zhou, C. Zeng, Y. Chen, S. Zhao, M. Y. Sfeir, M. Zhu and R. Jin, Nat. Commun., 2016, 7, 13240.
[2] A. Halder, L. A. Curtiss, A. Fortunelli, S. Vajda, Perspective: Size selected clusters for catalysis and electrochemistry, J. Chem. Phys. 148 (11) (2018) 110901.

Contacto:
nano.fisica.unlp.edu.ar



@sunsetinifta

