

Abstracto

En esta Tesis Doctoral, las heterouniones de grafeno basadas en grafeno con otros materiales 2D o nanopartículas metálicas, incluyendo (N)grafeno/h-BN, grafeno/MoS₂ y grafeno depositado Fe/Co, se sintetizaron en base al uso de polisacáridos naturales como precursors de grafeno. Estos materiales se caracterizaron usando diversos métodos analíticos y se ensayaron para determinar el acoplamiento C-N oxidativo de las amidas, la hidrogenación de CO₂ o la aplicación catalítica fotoeléctrica y física.

En la primera etapa de la tesis, se estudió la influencia de la temperatura y la presencia de H₂ durante la pirólisis en la calidad del grafeno. Se observó que una disminución significativa en la densidad de defectos relacionados con la presencia de oxígeno residual se puede lograr cuando el producto se preparó a la temperatura óptima (1100 °C) bajo un bajo porcentaje de H₂ (5%). Esta mejora en la calidad del grafeno defectuoso resultante se reflejó en una disminución de la resistencia eléctrica y una mayor actividad fotoeléctrica.

En el caso de las heteroestructuras de grafeno dopadas con N/h-BN, se ha revelado que se produjeron capas de segregación espontánea (N)grafeno y nitruro de boro durante la pirólisis. Aunque las heteroestructuras resultantes no mostraron una mejora en la conductividad, el material podría comportarse como un condensador que almacena carga en el rango de voltajes positivos.

El grafeno/MoS₂ se preparó por pirólisis de ácido algínico que contenía (NH₄)₂MoS₄ adsorbido. Las nanopartículas de MoS₂ exhibieron una orientación preferencial en la cara 002, como resultado del efecto de plantilla de las capas de grafeno. Este material exhibió actividad para la reacción de evolución H₂, aunque se ha observado alguna variación de la actividad electrocatalítica de un lote a otro.

También se prepararon Fe, Co NP o aleaciones Fe-Co incrustadas en matriz carbonosa por pirólisis de polvos de quitosano que contenían iones Fe²⁺ y Co²⁺ a 900 °C en atmósfera de Ar y se usaron para el acoplamiento oxidativo de C-N de amidas y

compuestos aromáticos de N-H. Se observó que la adición secuencial de dos alícuotas de hidroperóxido de terc-butilo (TBHP) en un exceso de N,N-dimetilacetamida (DMA) como disolvente proporcionaba el correspondiente producto de acoplamiento en altos rendimientos, y el catalizador más eficiente era FeNP@C con alta reutilización y un amplio alcance.

Finalmente, las perlas de matriz de carbono grafitico que contienen Fe, Co NPs o aleaciones de Fe-Co se sintetizaron secuencialmente mediante pirólisis en una etapa a 900 °C de perlas de quitosano que tenían acetatos de hierro y cobalto adsorbidos. La mejor muestra, Fe-Co aleación/G (Fe/Co alrededor de 0.4), mostró alta actividad para la hidrogenación de CO₂ a isobutano con una selectividad superior al 92% y una conversión de CO₂ de aproximadamente el 87%.