

Hybrid Lead Perovskites as Photocatalysts and Materials for Photo- and Electrocatalytic N₂ Reduction

Resumen

La conversión de energía solar a productos químicos se considera una de las estrategias más viables para abordar los problemas derivados del uso masivo de combustibles fósiles y la excesiva emisión antropogénica de CO₂. En catálisis asistida con luz, incluida la fotocatalisis y la catálisis fototérmica, el punto clave es el desarrollo de fotocatalizadores eficientes y robustos que puedan utilizar al máximo la energía solar y que sean lo suficientemente estables como para su comercialización. Los materiales basados en perovskitas híbridas orgánicas-inorgánicas han revolucionado el campo de la fotovoltaica en la última década, alcanzando una eficiencia de conversión de luz solar del 23%. Dado que los campos de la fotocatalisis y la fotovoltaica comparten procesos comunes, se abre la posibilidad de aplicación de estos materiales en fotocatalisis. Con el objetivo de confirmar esta posible aplicación de las perovskitas híbridas en fotocatalisis, en esta Tesis Doctoral, se han sintetizado nuevos materiales híbridos de perovskita con el objetivo de mejorar su estabilidad frente a la humedad aprovechando la gran variedad de ligandos orgánicos disponibles, que además pueden ser usados para promover modificaciones superficiales capaces de ajustar las propiedades hidrofílicas / hidrofóbicas. La actividad fotocatalítica de estos nuevos materiales de perovskita se ha estudiado en reacciones modelo para confirmar su estabilidad en las condiciones de reacción.

Por otro lado, la reacción de fijación de nitrógeno fotoasistida también ha sido estudiada en detalle en esta Tesis Doctoral. Por un lado, se han sintetizado, caracterizado y testado nuevos complejos organometálicos como foto- y electrocatalizadores homogéneos para esta reacción. Estos han demostrado ser capaces de activar la molécula de dinitrógeno bajo un potencial electroquímico de reducción para formar amoníaco. Por otro lado, se han preparado nanopartículas de rutenio depositadas sobre un material de perovskita a base de titanato como fotocatalizador heterogéneo para la producción de amoníaco en flujo continuo. Además, se ha demostrado que la incorporación de metales alcalinos a este fotocatalizador puede potenciar su actividad fotocatalítica en esta reacción. Así, este material compuesto ha demostrado estar entre los fotocatalizadores más eficientes del estado del arte en la actualidad para esta reacción demostrando además una su elevada estabilidad en las condiciones de reacción.

Palabra Clave: fotocatalisis, perovskite híbrida orgánica/inorgánica, modificación de la superficie, estabilidad al aire, hidrofobicidad, reducción de nitrógeno, amoníaco.