

Resumen

Las especies de metal con diferentes tamaños (átomos individuales, nanocristales y nanopartículas) muestran un comportamiento catalítico diferente para diversas reacciones catalíticas heterogéneas. Se ha demostrado en la bibliografía que muchos factores que incluyen el tamaño de partícula, la forma, la composición química, la interacción metal-soporte, la interacción metal-reactivo / disolvente, pueden tener influencias significativas sobre las propiedades catalíticas de los catalizadores metálicos. Los desarrollos recientes de metodologías de síntesis bien controladas y herramientas de caracterización avanzada permiten correlacionar las relaciones a nivel molecular.

En esta tesis, he llevado a cabo estudios sobre catalizadores metálicos desde átomos individuales hasta nanoclusters y nanopartículas. Al desarrollar nuevas metodologías de síntesis, el tamaño de las especies metálicas puede modularse y usarse como catalizadores modelo para estudiar el efecto del tamaño sobre el comportamiento catalítico de los catalizadores metálicos para la oxidación del CO, la hidrogenación selectiva, la oxidación selectiva y la fotocatalisis. Se ha encontrado que, los átomos metálicos dispersados por separado y los grupos subnanométricos de metal pueden aglomerarse en nanoclusters o nanopartículas más grandes en condiciones de reacción. Para mejorar la estabilidad de los catalizadores subnanométricos de metal, he desarrollado una nueva estrategia para la generación de átomos individuales y clusters en zeolitas. Esas especies subnanométricas de metales son estables en tratamientos de oxidación-reducción a 550 °C. Siguiendo esta nueva metodología de síntesis, este nuevo tipo de materiales puede servir como catalizador modelo para estudiar la evolución de especies subnanométricas de metales en condiciones de reacción. La transformación estructural de las especies subnanométricas de Pt ha sido estudiada mediante microscopía electrónica de transmisión in situ. Se ha demostrado que el tamaño de las especies de Pt está fuertemente relacionado con las condiciones de reacción, que proporcionan importantes conocimientos para comprender el comportamiento de los catalizadores de metales subnanométricos en condiciones de reacción.

En la otra línea de investigación para catalizadores de metales no nobles, he desarrollado varias estrategias generales para obtener catalizadores de metales

no nobles, ya sea soportados sobre óxidos metálicos o protegidos por capas delgadas de carbono. Estos materiales muestran un rendimiento excelente para varias reacciones importantes, como la hidrogenación quimioselectiva de nitroareños, incluso cuando se comparan con los catalizadores de metales nobles convencionales. En algunos casos, los catalizadores de metales no nobles pueden incluso alcanzar selectividades para productos inviábiles que no ha sido posible conseguir en catalizadores de metales nobles convencionales, que es causado por la diferente ruta de reacción en catalizadores de metales no nobles. Sin embargo, la espectroscopía fotoelectrónica de rayos X a presión ambiente ha revelado que la irradiación de la luz puede modular la selectividad a los alcoholes y los hidrocarburos C_2+ , lo que abre una nueva posibilidad para ajustar el comportamiento catalítico de los catalizadores metálicos.

Con base en los trabajos anteriores de diferentes aspectos relacionados con catalizadores metálicos heterogéneos, las perspectivas sobre las direcciones futuras hacia una mejor comprensión del comportamiento catalítico de diferentes entidades metálicas (átomos individuales, nanoagrupamientos y nanopartículas) de una manera unificadora también se han dado en esta tesis.