

RESUMEN

El cambio climático es una de las amenazas de nuestro tiempo. Los gases de efecto invernadero, como el dióxido de carbono, son los principales causantes de este fenómeno, siendo necesario disminuir urgentemente sus emisiones. En 2019, la Comisión Europea presentó el "Pacto Verde Europeo", que será clave para alcanzar un objetivo tremendamente ambicioso para nuestra región: la neutralidad climática de aquí a 2050. Las estrategias de descarbonización incluidas en su hoja de ruta van a implicar necesariamente la transición energética de los combustibles fósiles a las energías renovables, reduciendo de forma masiva la liberación de CO₂. En este sentido, el desarrollo de tecnologías efectivas de Captura, Almacenamiento y Uso del Carbono (CAUC) permitirá la valorización del CO₂, evolucionando hacia una economía de carbono circular.

La presente Tesis Doctoral se enmarca en el diseño, síntesis y caracterización de sistemas catalíticos heterogéneos innovadores basados en metales capaces de transformar el CO₂ en otros productos de valor añadido. Entre un amplio catálogo de reacciones que "conectan" el CO₂ con diversos compuestos basados en carbono, esta Tesis se centrará principalmente en la síntesis de dos moléculas C₁ plataforma de interés industrial: el metanol y el metano.

Los Capítulos 3 y 4 están dedicados a la síntesis de metanol, un proceso exotérmico limitado termodinámicamente debido a la estabilidad inherente de la molécula de CO₂, así como a la presencia de la reacción competitiva RWGS. Por un lado, el Capítulo 3 se centra en el efecto promotor del galio sobre las propiedades estructurales, electrónicas y catalíticas de materiales basados en Cu/ZnO (sistemas CZG). Mediante un enfoque espectroscópico-catalítico

multidisciplinar se ha comparado el efecto promotor del Ga^{3+} dopado en la red de un ZnO tipo wurtzita presente en un catalizador Cu/ZnO/ Ga_2O_3 con el de una fase de galato de zinc (ZnGa_2O_4). Por otro lado, en el Capítulo 4 se muestra un catalizador bifuncional que contiene nanopartículas de Cu de 2 nm y especies Cu^+ , con el objetivo de enfrentarse a la inherente baja actividad de estas pequeñas partículas, hecho que impide mejorar la eficiencia atómica de los catalizadores, dificultando así la obtención de resultados catalíticos competitivos en la hidrogenación de CO_2 . La realización de un estudio espectroscópico detallado (combinado con cálculo teórico y ensayos catalíticos) sobre un catalizador óxido mixto de Cu-Mg-Al derivado de un precursor de hidrotalcita tras calcinación y posterior reducción (CuHT-230) pone de manifiesto el papel clave de los iones Cu^+ dopados en estructura en la producción de metanol.

El éxito de las tecnologías CAUC a medio-largo plazo dependerá no solo del desarrollo de catalizadores competitivos, sino también de su capacidad para operar en condiciones de reacción más suaves, permitiendo que estos procesos sean viables económicamente. Por ello, el concepto de eficiencia energética se abordará en el Capítulo 5, a través de un innovador diseño de catalizador tipo "shell/core" formado por un núcleo de rutenio metálico y una envoltura de carburo de rutenio, sintetizado mediante tratamiento hidrotermal. Este sistema (Ru@EDTA-20) exhibe una actividad excepcionalmente alta para la hidrogenación de CO_2 a metano a bajas temperaturas (160-200 °C) con una selectividad a CH_4 del 100%, superando a catalizadores de bibliografía que normalmente operan a mayores temperaturas (400-500 °C).

Por último, en el Capítulo 6 se estudia un catalizador modelo compuesto por un aluminosilicato bidimensional sintetizado sobre una superficie de Ru(0001),

investigación realizada durante mi estancia internacional en el Laboratorio Nacional de Brookhaven (Nueva York, Estados Unidos). La combinación de estos dos materiales en el mismo composite permite la creación de un nanoespacio confinado que puede emplearse como nanorreactor. En este proyecto, se seleccionó la reacción de formación de agua como modelo, que se exploró a nivel fundamental en el sincrotrón NSLS-II.