



Universidad de Concepción

Dirección de Postgrado

Facultad de Ingeniería - Programa de Doctorado en Ciencias de la Ingeniería con  
mención en Ingeniería Química

**Transferencia de oxígeno en carbones y catalizadores  
soportados en carbones  
(Oxygen Transfer on Carbons and Carbon-Supported  
Catalysts)**

FERNANDO ESTEBAN VALLEJOS BURGOS

CONCEPCIÓN-CHILE

2011

Profesores Guía: Ljubisa R. Radovic

Alfredo L. Gordon

Ximena García

Dpto. de Ingeniería Química, Facultad de Ingeniería

Universidad de Concepción

## Resumen

Las reacciones catalizada y no catalizada entre carbono-oxígeno fueron estudiadas desde el punto de vista de la transferencia de oxígeno, *i.e.*, la facilidad del oxígeno para moverse desde la fase gas hacia diferentes tipos de sitios en la superficie de carbones y catalizadores soportados en carbones con diferentes propiedades estructurales y químicas. Los carbones estudiados fueron chars derivados de carbón y de biomasa, ftalocianinas y estructuras representativas de grafeno.

Se mostró que la activación física de los chars con CO<sub>2</sub> a iguales temperaturas pero distinto *burnoff*, tuvo un fuerte efecto sólo en la porosidad y no en las propiedades estructurales ni químicas de los dominios grafíticos. Los carbones activados sin adición de metal mostraron reactividades similares en reacciones con O<sub>2</sub> y NO. Después de impregnar estos soportes con Co o Cu, se encontró que un aumento en la porosidad gradualmente favorece la reacción catalizada con O<sub>2</sub>, y por tanto la facilidad de transferencia de oxígeno desde el metal hacia el carbono; los efectos en la reducción de NO no fueron tan notorios.

El efecto del tratamiento térmico (HT) en la reactividad fue estudiado en chars desmineralizados derivados de carbón mineral y biomasa así como también en ftalocianinas (Pc) carbonizadas. En el caso de los carbones desmineralizados, se encontró que ninguno de los parámetros estructurales convencionales (porosidad, contenido de heteroátomos o cuasi-cristalinidad de los clusters) pudo entregar una explicación cuantitativa de los cambios de reactividad; sin embargo, utilizando un análisis mediante química computacional en estructuras representativas de grafeno, se encontró un efecto de compensación entre los diferentes tipos de sitios activos que pueden ser responsable de las diferencias relativamente pequeñas en reactividad. Para las HT-Pc, la pérdida constante de reactividad con el aumento de la temperatura de HT en el caso de H-Pc fue atribuida al ordenamiento por calor de las microestructura grafítica y a la pérdida de heteroátomos sin influencia de la porosidad. Las Pc coordinadas con Co- y Cu mostraron un óptimo en la reactividad a temperaturas de HT intermedio lo que se correlacionó con el área superficial de microporos y el aumento de tamaño de las partículas metálicas; no se encontró relación entre el contenido de nitrógeno y la reactividad. El rol del metal coordinado fue doble: en un ambiente térmicamente demandante entregó estabilidad a la molécula, mientras que en uno