



ADSORCIÓN Y OXIDACIÓN DE MONÓXIDO DE CARBONO EN UNA LÁMINA DE β -GRAFENO. ESTUDIO TEÓRICO

Y. Celeste Villagrán López^{(1)*}, S. Magalí Carrión^(1,2) y M. Beatriz López⁽¹⁾

⁽¹⁾Centro de Investigaciones Fisicoquímicas, Teóricas y Aplicadas, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, Universidad Nacional de Catamarca.

⁽²⁾Centro de Investigaciones y Transferencia de Catamarca, CONICET.

*Correo Electrónico (autor de contacto): celestevillagranlopez@gmail.com

RESUMEN

La presencia de CO en el ánodo de una celda de combustible tipo PEM (Proton Exchange Membrane Fuel Cells) constituye un inconveniente en el desarrollo y posterior funcionamiento del dispositivo debido a la rápida pérdida de actividad (envenenamiento) del catalizador, generalmente platino, debido a la fuerte adsorción de CO sobre la superficie, lo que inhabilita los sitios activos ocasionando un descenso de la eficiencia catalítica [1]. Una solución a este problema es utilizar catalizadores alternativos libres de platino con una mayor tolerancia al CO por su remoción por oxidación a CO₂ [2,3].

En ese trabajo se presenta un estudio, basado en la Teoría del Funcional de la Densidad (DFT), de la adsorción y oxidación de CO sobre un catalizador libre de platino constituido por una lámina de Grafeno. El Grafeno es un nuevo alótropo del carbono, su estructura es bidimensional y está constituido por una monocapa de átomos de carbono con hibridación sp². Dependiendo de las diferentes formas de insertar el triple enlace carbono-carbono se puede distinguir tres tipos de Grafeno: alfa, beta y gamma Grafeno.

Se ha estudiado las propiedades estructurales, energéticas, electrónicas y reactividad química frente a la adsorción y oxidación de monóxido de carbono de una lámina de β -Grafeno. Los cálculos fueron realizados usando DFT y se utilizó el funcional B3LYP, la base 6-31 G para los átomos de carbono y oxígeno. Todos los cálculos se realizaron según el formalismo del programa Gaussian09.

Nuestros resultados fueron comparados con los de una lámina de Grafeno y concluimos que la energía de adsorción de CO es menor en β -Grafeno que en Grafeno, en consecuencia presenta una mayor tolerancia frente al CO y también presenta mayor actividad química frente al análisis de indicadores de reactividad.

ABSTRACT

The presence of CO in the anode of a PEM (Proton Exchange Membrane Fuel Cells) fuel cell type is disadvantageous in the development and subsequent operation of the device due to the rapid loss of activity (poisoning) of the catalyst, usually platinum, due to the strong CO adsorption on the surface, which disables the active sites causing a decrease in catalytic efficiency [1]. One solution to this problem is to use alternative platinum free catalysts with increased tolerance to CO removal by oxidation to CO₂ [2,3].

This work presents a study, based on Density functional theory (DFT), of the adsorption and oxidation of CO on a platinum-free catalyst constituted from a sheet of Graphyne.

Graphyne is a new allotrope of carbon, its structure is two-dimensional and is constituted by a monolayer of carbon atoms with sp² hybridization. Depending on the different ways to insert the carbon-carbon triple bond, three types of Graphyne can be distinguished: alpha, beta and gamma Graphyne.

The structural, energetic and electronic properties have been studied, as well as the chemical reactivity to the adsorption and oxidation of carbon monoxide of β -sheet Graphyne. The calculations were performed using DFT, the B3LYP functional and 6-31 G basis for oxygen and carbon atoms was used. All calculations are performed according to the formalism of Gaussian09 program.

Our results were compared with those of a Graphene sheet and we conclude that the adsorption energy of CO is lower in β -Graphyne than in Graphene, consequently it has a higher tolerance to CO and higher chemical activity against indicator analysis reactivity.

REFERENCIAS

1. S. E. Mason, I. Grinberg and A. M. Rappe, "Orbital-Specific Analysis of CO Chemisorption on Transition-Metal Surfaces"; J. Phys. Chem. C, Vol. 112 (2008), p. 1963-1966.
2. D. Pan, M. Ombaba, Z. Y. Zhou, Y. Liu, S. Chen and J. Lu, "Direct Growth of Carbon Nanofibers to Generate a 3D Porous Platform on a Metal Contact to Enable an Oxygen Reduction Reaction"; ACS Nano, Vol. 6 (2012), p. 10720-10726.
3. Y. Zhao, L. Yang, S. Chen, X. Wang, Y. Ma, Q. Wu, Y. Jiang, W. Qian and Z. Hu, "Can Boron and Nitrogen Co-doping Improve Oxygen Reduction Reaction Activity of Carbon Nanotubes?"; J. Am. Chem. Soc., Vol. 135 (2013), p. 1201-1204.

TÓPICO DEL CONGRESO O SIMPOSIO: *T18*

PRESENTACIÓN (ORAL O PÓSTER): *P (poster)*