

Resumen

El objetivo de la presente tesis fue diseñar y sintetizar catalizadores soportados en carbono con mayor actividad electrocatalítica frente a la oxidación de monóxido de carbono en celdas de combustible metanol/aire y hidrógeno/aire. Posteriormente se estudió el efecto del agregado de molibdeno en la actividad electrocatalítica de catalizadores soportados en carbono. Se sintetizaron catalizadores de Pt/C, PtRu/C, PtIr/C, PtMo/C, PtRuIr/C y PtRuMo/C con una carga metálica de 20% en masa mediante reducción química.

La caracterización física de los catalizadores en polvo se realizó mediante estudios de difracción de rayos X, microscopía electrónica de transmisión y microscopía electrónica de barrido con una sonda de espectroscopía de dispersión de energía con el fin de determinar el tamaño de cristalita, la dispersión y la composición atómica de los catalizadores, respectivamente. La caracterización y el desempeño electrocatalítico de los electrodos se estudió mediante diversas técnicas electroquímicas: espectroscopía de impedancia electroquímica (Electrochemical Impedance spectroscopy, EIS), cronoamperometría, voltamperometría cíclica, stripping anódico y curvas de polarización con y sin electrodo de disco rotante a temperatura ambiente. Todos los electrodos soportados en carbono fueron pre-tratados mediante catodización potencioestática, generando una superficie con mayor actividad electrocatalítica debido al aumento de la presencia de escalones y esquinas que aumenta la velocidad de formación de COOH_{ads} .

Los valores de las pendientes de Tafel con electrodo de disco rotante para Pt/C, PtMo/C y PtRuMo/C fueron de 60 mV dec^{-1} , donde el paso químico es el paso determinante de la velocidad, a saber, la formación de COOH_{ads} . Por otro lado, el catalizador PtRu/C presenta un valor de pendiente de Tafel de 120 mVdec^{-1} , lo que indica que el paso determinante de la velocidad estaría asociado a una transferencia de carga monoeléctronica, este paso respondería a la electrooxidación de COOH_{ads} o CO_{ads} . A partir de los estudios de EIS, se observan dos comportamientos diferentes, por debajo y por encima de 0.55 V. Por debajo de 0.55 V se observa un circuito de Randles simple con una constante de tiempo asociada a la deshidrogenación de metanol mientras que en la segunda región se observa además, un comportamiento pseudo-inductivo con una segunda constante de tiempo asociada a la liberación de sitios activos para posteriores actos de reacción.

El efecto de la adición de molibdeno a catalizadores en base platino se atribuye principalmente a un efecto electrónico y/o morfológico, efecto que se

observa en los estudios de voltamperometría de stripping anódico de CO. Esto permite sustituir paulatinamente la masa superficial de platino y disminuir los costos de elaboración de los catalizadores industriales. El efecto del rutenio es favorecer la descarga del agua en especies hidroxiladas capaces de favorecer el mecanismo bifuncional de Langmuir-Hinshelwood frente a los otros. En conclusión, la fabricación de aleaciones binarias y ternarias mejora el desempeño de catalizadores anódicos frente a la oxidación de metanol y de monóxido de carbono.