

N-CNT dopados con metales de bajo costo aplicados a la reacción de reducción de oxígeno

A. Elmouwahidi¹, M. Pérez-Cadenas², E. Fajardo-Puerto¹, E. Bailón-García¹, I. Rodríguez-Ramos³, A. Guerrero-Ruiz²

¹Grupo de Materiales Polifuncionales Basados en Carbono (UGR-Carbon), Dpto. Química Inorgánica-Unidad de Excelencia Química Aplicada a Biomedicina y Medioambiente-Universidad de Granada (UEQ-UGR), ES18071-Granada, España.

²Dpto. Química Inorgánica y Técnica, Facultad de Ciencias, UNED, Av. de Esparta s/n, Las Rozas de Madrid (Madrid), 28232, España.

³Instituto de Catálisis y Petroleoquímica, CSIC, C/Marie Curie No. 2, Cantoblanco, Madrid, 28049, España.

aelmouwahidi@ugr.es

Palabras clave: N-CNT, electrocatálisis, metales de transición, ORR.

Introducción

La investigación basada en la reacción de reducción de oxígeno (ORR), se ha visto implementada como parte de un sistema alternativo de conversión y almacenamiento de energía frente a la quema de combustibles fósiles [1]. La selección del material usado como soporte del electrocatalizador es crucial para su comportamiento en estas aplicaciones. En este trabajo, se han utilizado nanotubos de carbono dopados con nitrógeno para ser utilizados como electrodos para ORR, ya que la inserción de heteroátomos, como nitrógeno, es una de las estrategias de mejorar su rendimiento electroquímico [2].

Experimental

Se sintetizaron nanotubos de carbono dopados con nitrógeno, mediante descomposición química de acetonitrilo en fase vapor, sobre catalizadores de hierro, cobalto y níquel en un reactor vertical de lecho fluidizado [3]. Los materiales se trataron con ácido fluorhídrico para eliminar los metales y los soportes de sílice. Finalmente, los N-CNT obtenidos a partir de los catalizadores de Fe, Co y Ni se denominaron N-CNT-Fe, N-CNT-Co y N-CNT-Ni, respectivamente. Las tres muestras fueron caracterizadas mediante microscopía de transmisión (TEM), adsorción de nitrógeno (BET-N₂-77 K) y espectroscopia fotoelectrónica de rayos X (XPS). Los materiales fueron estudiados electroquímicamente mediante voltametría cíclica (CV) y voltametría lineal de barrido (LSV). El cálculo del número de electrones y selectividad de H₂O₂ fueron determinados a partir de los datos obtenidos con un electrodo de disco anillo giratorio (RRDE).

Resultado y discusión

En la Figura 1 podemos observar la morfología de los N-CNT en la que aparecen estructuras tipo bambú, características de los nanotubos dopados con nitrógeno. La mayoría de los extremos de los nanotubos están abiertos, lo que favorece la exposición de los planos grafiticos, y se ha eliminado la mayor parte del catalizador de síntesis. Los nanotubos sintetizados presentan un área superficial de entre 222 hasta 497 m²/g siendo principalmente mesoporosos. Mediante XPS se ha calculado la cantidad de nitrógeno superficial y de metal residual después de la purificación de las muestras. Los resultados muestran un porcentaje en peso de nitrógeno de 5,5, 3,5 y 6,4 así como, de metal de 0, 1,13 y 2,42 para las muestras N-CNT-Fe, N-CNT-Co y N-CNT-Ni, respectivamente.

La Figura 2 muestra el número de electrones transferidos (n) y la selectividad hacia H₂O₂ de cada muestra. El incremento en contenido metálico parece aumentar el número de electrones transferidos, a la vez que disminuye la selectividad hacia la producción de H₂O₂. La muestra N-CNT-Fe muestra un valor promedio de n = 4 en el rango de potenciales evaluados, lo cual indica que la reducción del oxígeno transcurre a través una vía que implicara 4 electrones.

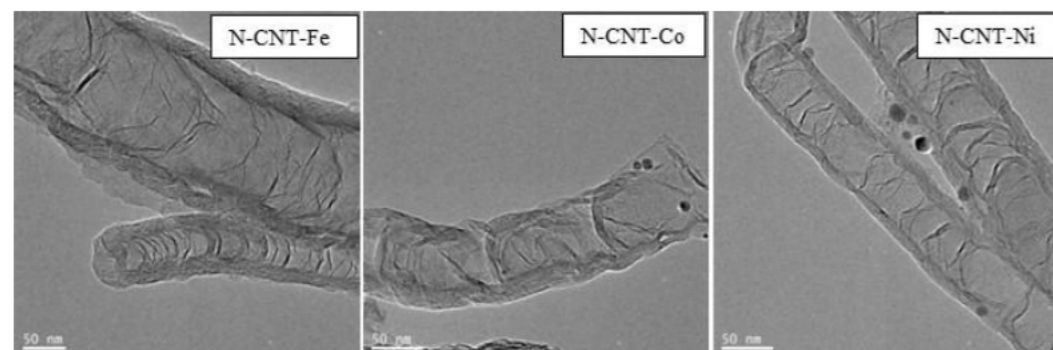


Figura 1. Imágenes de TEM de las muestras N-CNT-Fe, N-CNT-Co y N-CNT-Ni.

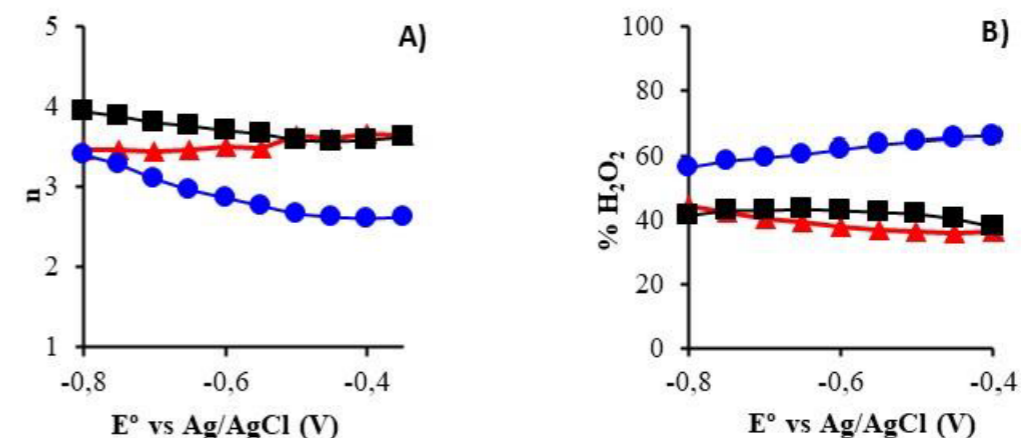


Figura 2. A) Numero de electrones transferidos, B) selectividad hacia H₂O₂. (■) N-CNT-Fe, (●) N-CNT-Co and (▲) N-CNT-Ni.

Conclusiones

Se ha logrado una alta actividad electrocatalítica en la reacción de reducción de oxígeno con los N-CNT sintetizados. El contenido metálico influye claramente en el comportamiento electrocatalítico llevándolo hacia una vía de cuatro electrones. Estos resultados muestran también altas densidades de corriente a bajos potenciales comparables a los electrodos comerciales basados en Pt-C. Por lo tanto, estos materiales son buenos candidatos como electrocatalizadores para ORR en medio básico.

Agradecimientos

Los autores agradecen a MCIN/AEI/10.13039/501100011033/ y "FEDER Una manera de hacer Europa" el proyecto PID2021-127803OB-I00.

Referencias

- [1] P.P. Edwards, V.L. Kuznetso, W.I.F. David, N.P. Brandon, Hydrogen and fuel cells: Towards a sustainable energy future. Energy Policy, 2008, 36:4356-4362.
- [2] D. Hulicova-Jurcakova, M. Seredych, G. Q. Lu, T. J. Bandoz, Combined effect of nitrogen- and oxygen-containing functional groups of microporous activated carbon on its electrochemical performance in supercapacitors. Advanced Functional Materials, 2009, 19:438-447.
- [3] L. Faba, Y. A. Criado, E. Gallegos-Suárez, M. Pérez-Cadenas, E. Díaz, I. Rodríguez-Ramos, A. Guerrero-Ruiz, S. Ordóñez, Preparation of nitrogen-containing carbon nanotubes and study of their performance as basic catalysts. Applied Catalysis A: General, 2013, 458:155-161.