

Síntese e caracterização ácida de catalisadores contendo $\text{CuO}/\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$.

Fillipe A. Garcia (IC), Valdeilson S. Braga (PG), José A. Dias (PQ)*, Sílvia C. L. Dias (PQ) e Maria J. A. Sales (PQ). E-mail: jdias@unb.br.

Universidade de Brasília, Instituto de Química, Laboratório de Catálise e Laboratório de Físico-Química de Polímeros, Campus Darcy Ribeiro - Asa Norte, caixa postal 04478, Brasília/DF, 70904-970.

Palavras Chave: Óxidos suportados; adsorção; DRIFTS.

Introdução

Catalisadores ácidos têm sido largamente estudados, devido à sua grande aplicabilidade e a variedade das suas propriedades catalíticas em função da sua estrutura e composição¹. O objetivo desse trabalho foi a síntese dos sistemas contendo $\text{CuO}/\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ e a caracterização ácida dos mesmos utilizando espectroscopia de reflectância (DRIFTS) e análises térmicas (TG-DTA).

Resultados e Discussão

Os Catalisadores de $\text{CuO}/\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ com razão 1:1 ($\text{CuO}:\text{Nb}_2\text{O}_5$) nos teores de 2, 10 e 25% dos óxidos, foram preparados pela adição de $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Aldrich) em um balão contendo oxalato amoniacal de nióbio (CBMM) e $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2\cdot 3\text{H}_2\text{O}$ (Vetec) em H_2O . O sistema foi evaporado a 80°C , e então os sólidos foram tratados a $100^\circ\text{C}/24\text{h}/\text{v\u00e1cuo}$ e calcinados a $300^\circ\text{C}/6\text{h}$.

A adsorção de piridina foi feita adicionando 2mL de solução $0,1\text{molL}^{-1}$, em ciclo-hexano, a 0,5g do sólido. Posteriormente, as amostras adsorvidas foram analisadas utilizando espectroscopia de reflectância difusa no infravermelho médio (DRIFTS) e análises térmicas (TG-DTA).

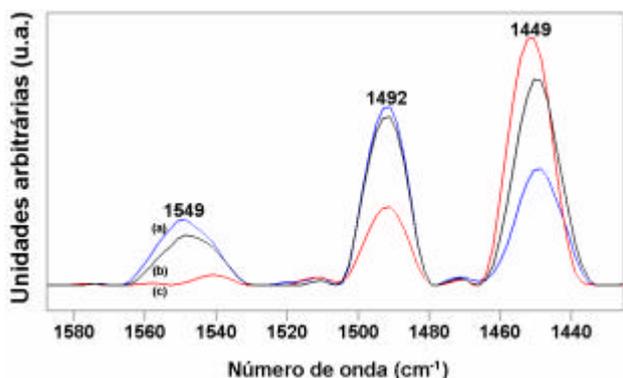


Figura1. DRIFTS do $\text{CuO}/\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$: 2(a), 10(b) e 25%(c) após adsorção de piridina.

Observa-se na figura 1 que os espectros DRIFTS de todas as amostras adsorvidas apresentaram absorções em: 1549 , 1492 e 1449cm^{-1} , correspondentes as interações da piridina ligada a

sítios de Brönsted (O-H terminais), combinações de sítios de Brönsted e Lewis e sítios de Lewis.

Também foi feito um método quantitativo para integrar as áreas dos picos relacionados aos sítios puros, de modo que foi possível obter a razão dos sítios ácidos (Tabela 1). As razões obtidas mostram que os óxidos metálicos se ligam nos grupos OH terminais³, o que causa uma diminuição dos sítios de Brönsted e um aumento dos sítios de Lewis.

As curvas de TG-DTA mostraram três perdas de massa (≈ 300 , 620 e 740°C) associadas a dessorção da piridina ligada aos grupos OH terminais e aos dois sítios de Lewis, nióbio e cobre, respectivamente. Através da integração da curva TG, no intervalo fornecido pela derivada do mesmo, foi possível calcular o número de mols para cada um dos sítios (Tabela 1).

Tabela1. Tabela com as razões ácidas (Lewis/Brönsted) e o número de sítios ácidos (mmols.g^{-1}) de cada tipo.

%CuO (m/m)	Razão (L/B)	Nºsítios-B (mmol.g^{-1})	Nºmols-L (mmol.g^{-1})
2	1,20	0,263	n.d.
10	2,02	0,211	0,008
25	31,09	0,201	0,111

Conclusões

O sistema $\text{CuO}/\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ possui sítios ácidos de Brönsted e Lewis, que variam em proporção e força, dependendo do teor de óxidos. Isso permite que se tenha seletividade para um produto em reações que dependem exclusivamente da força e dos tipos de sítios ácidos da superfície, somente variando o teor dos óxidos.

Agradecimentos

LabPol, UnB/IQ, FINATEC, FAPDF/SCDT/CNPq, CNPq, CBMM, FINEP/CTPetro.

¹ Dumitriu, E.; Hulea V., *J. of Catal* **2003**, 218,249.

² Zaiki, M.I.; Hasan, M.A.; Al-Sagheer, F.A. e Pasupulety L., *Coll and Surf A : Phys and Eng Asp* **2001**, 190, 261.

³ Braga, V.S.; Garcia, F.A; Dias, J.A.; Dias;S.C.L. e Barros, I.C.L.,
Anais do 13º Congresso Brasileiro de Catálise. **2005**, 2, 1311.