

Estudo da oxidação de metanol sobre os catalisadores quaternários Pt-Ru-PbO_x-M/C (M = Ir, TaO_x ou RhO_x) preparados por Sol-gel.

Giancarlo R. Salazar-Banda^{1*} (PG), Hugo B. Suffredini^{1,2} (PQ), Katlin I.B. Eguiluz¹ (PG), Luis A. Avaca¹ (PQ). (*gian@iqsc.usp.br)

¹ GMEME – Instituto de Química de São Carlos, Universidade de São Paulo – Av. Trabalhador São Carlense 400, Centro – São Carlos, SP. CEP 13566-000, CP. 780.

² Departamento de Biologia e Química, UNIJUÍ – Rua do Comércio, 3000, Centro – Ijuí, RS. CEP 98700-000.

Palavras Chave: Oxidação de metanol, Sol-gel, Suporte de diamante.

Introdução

Recentemente^{1,2}, foram mostrados excelentes resultados na oxidação de metanol sobre eletrodos contendo Pt, Ru e óxidos de Pb. A fim de continuar com estes estudos, o objetivo deste trabalho é estudar o efeito do tipo de material utilizado em catalisadores quaternários do tipo Pt-Ru-PbO_x-M/C (onde M = Ir, TaO_x ou RhO_x) na oxidação eletroquímica de metanol 0,5 mol L⁻¹ em H₂SO₄ 0,5 mol L⁻¹, utilizando voltametria cíclica e cronoamperometrias e utilizando o eletrodo de diamante como suporte para a fixação dos compósitos. Os compósitos de pó de carbono foram modificados pelo método Sol-gel, utilizando os acetilacetatos de Pt, Ru, Ir, Pb, e Rh e o etóxido de Ta, com porcentagens atômicas de 40%Pt, 20%Ru, 20%PbO_x e 20%M (M = Ir, Ta ou Rh).

Resultados e Discussão

Nas voltametrias cíclicas da Figura 1, observa-se que sobre os catalisadores quaternários a corrente de reativação devida aos intermediários da oxidação adsorvidos na superfície do catalisador é fortemente inibida, indicando que a adição dos novos metais confere um efeito sinérgico aos catalisadores para o processo de oxidação.

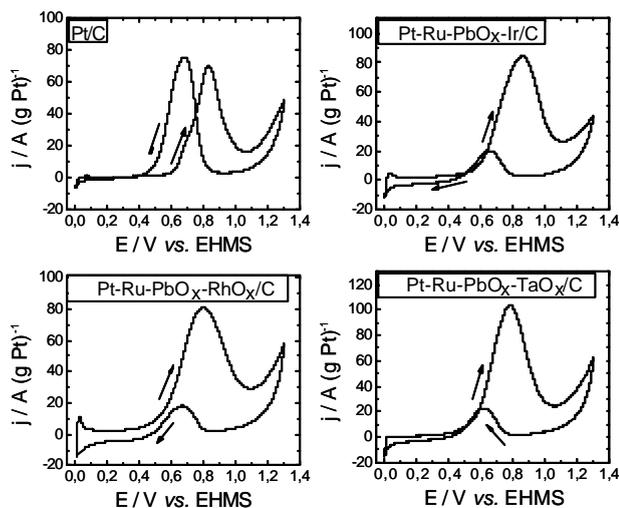


Figura 1. Voltametrias Cíclicas da oxidação de metanol 0,5 mol L⁻¹ em H₂SO₄ 0,5 mol L⁻¹ sobre os catalisadores estudados.

Nessa mesma figura pode-se observar que a adição de RhO_x ou de TaO_x sobre catalisadores que contêm Pt-Ru-PbO_x melhora consideravelmente o desempenho dos mesmos, deslocando o início da reação em 200 mV e 180 mV com relação ao catalisador que contém somente Pt respectivamente. Já a adição de Ir apresenta resultados menos satisfatórios deslocando o início da reação em 110 mV. Neste sentido, Suffredini¹ mostrou que a combinação de Pt, PbO_x e IrO₂ apresenta resultados ainda piores do que os observados sobre Pt pura.

O bom desempenho observado sobre os catalisadores que contêm RhO_x ou TaO_x pode ser ainda observado nas cronoamperometrias realizadas a 550 mV vs. o eletrodo de hidrogênio na mesma solução (EHMS) (vide Figura 2), Assim, a densidade de corrente observada sobre estes eletrodos é aproximadamente 10 vezes maior do que sobre o eletrodo de Pt/C e conseqüentemente estes catalisadores mostram-se promissores para ser usados em ânodos de células a combustível.

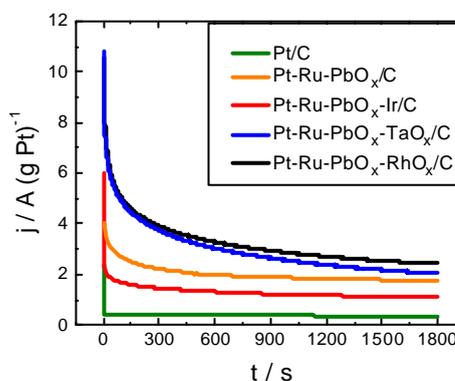


Figura 2. Cronoamperometrias realizadas a 0,55 V vs. EHMS na oxidação de metanol 0,5 mol L⁻¹ em H₂SO₄ 0,5 mol L⁻¹ sobre os catalisadores estudados.

Conclusões

Com base nos resultados mostrados acima, podemos concluir que a adição de RhO_x ou de TaO_x sobre catalisadores contendo Pt-Ru-PbO_x melhora consideravelmente o desempenho dos mesmos frente à reação de oxidação de metanol. Esses catalisadores podem contribuir para a viabilização da aplicação comercial de DMFC.

Agradecimentos

À CAPES, FAPES e CNPq.

¹ Suffredini, H.B.; Tese de doutorado, IQSC/USP. **2005**.

² Eguiluz, K.I.B.; Salazar-Banda, G.R.; Calegari, M.L. e Avaca L.A.
XV Simpósio Brasileiro de Eletroquímica e Eletroanalítica-Paraná
2005, p.191