

## Caracterização por espectroscopia Raman do catalisador $ZrO_2/SO_4/Co$ , para redução catalítica seletiva de $NO_x$

Lúcia K. Noda<sup>1\*</sup>(PQ), Norberto S. Gonçalves<sup>2</sup>(PQ), Joyce A. Silveira<sup>2</sup>(IC)

<sup>1</sup>Departamento de Química, Centro de Ciências Exatas e da Terra, UNIFESP, Campus Diadema, Jd. Eldorado, CEP 09972-270, Diadema – SP; <sup>2</sup>Departamento de Química – Universidade Federal de Santa Catarina, CEP 88040-900, Florianópolis – SC

\*luciakin@gmail.com

Palavras Chave:  $ZrO_2/SO_4/Co$ , redução catalítica seletiva, espectroscopia Raman

### Introdução

A utilização de catalisadores com metais suportados para a redução catalítica seletiva (SCR) de  $NO_x$ , usando hidrocarbonetos como redutores<sup>1</sup>, é uma área de grande interesse, pois  $NO_x$  são gases de alto potencial para causar efeito estufa. Hamada et al.<sup>2</sup>, foram os primeiros a demonstrarem que óxidos metálicos sulfatados ( $TiO_2$ ,  $ZrO_2$ ,  $Fe_2O_3$ ,  $Al_2O_3$ ) podiam ser ativos para redução catalítica seletiva de  $NO_x$  com propano. Vários trabalhos citam a redução catalítica seletiva do  $NO$  com metano, tendo zircônia sulfatada com pequenas quantidades de metais nobres, como catalisador. Porém, a utilização de  $ZrO_2$  sulfatado com adição de metais não nobres para redução catalítica seletiva de  $NO_x$  foi bem pouco investigada. Há poucos resultados sobre a caracterização desse tipo de material, como exemplo o estudo de Zhang et al.<sup>3</sup>. Por tal razão, iniciamos um estudo sobre a preparação de  $ZrO_2$  sulfatado dopado com cobalto e sua caracterização por espectroscopia Raman, que fornece informações sobre as formas cristalinas do  $ZrO_2$ .

### Resultados e Discussão

O  $ZrO_2$  sulfatado dopado com Co (5% m/m) foi preparado em duas etapas: a primeira etapa consistiu na síntese do  $ZrO_2$  sulfatado e a segunda etapa na dopagem do  $ZrO_2$  sulfatado com Co. O  $ZrO_2$  sulfatado foi obtido a partir da hidrólise de  $ZrOCl_2$  com solução de  $NH_4OH$ , formando-se hidróxido de zircônio. Após lavagem do material recém precipitado, efetuou-se a sulfatação adicionando-se uma solução de  $H_2SO_4$  0,5 mol.L<sup>-1</sup>, deixando-se sob agitação por uma hora, filtrando-se e depois secando-se o material a 120°C por 24 horas. A dopagem com Co foi feita colocando-se o  $ZrO_2$  sulfatado em uma solução de  $Co(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ , deixando-se sob agitação por 3h, com aquecimento a ca. 80°C, a fim de evaporar toda a água. A amostra foi, então, aquecida a diversas temperaturas (120, 400, 500, 600, 700 e 800°C) para verificar a evolução das fases cristalinas do  $ZrO_2$ . Os espectros Raman foram obtidos utilizando-se como radiação excitante a linha em 632,8 nm de um laser de He-Ne.(Figura 1)

Observa-se nos espectros Raman que a amostra aquecida a 120°C apresenta um conjunto de bandas em ca. 1000 cm<sup>-1</sup>, devidas ao  $NO_3^-$  e ao sulfato. Amostras calcinadas a 400°C, 500°C e 600°C apresentam uma banda bem larga em ca. 1100 cm<sup>-1</sup>, atribuída ao sulfato e duas outras bandas largas em ca. 460 e 640 cm<sup>-1</sup>, atribuídas ao  $ZrO_2$  amorfo. Com aumento de temperatura há cristalização do  $ZrO_2$ , na forma monoclinica, com bandas bem definidas em 186, 333, 341, 378, 475, 615 e 634 cm<sup>-1</sup>. A não observação da forma tetragonal é um fato intrigante, pois é bem conhecido que no  $ZrO_2$  sulfatado não dopado a forma tetragonal é estabilizada, em comparação com o  $ZrO_2$  não sulfatado<sup>4</sup>.

### Conclusões

Os espectros Raman mostram que o  $ZrO_2/SO_4/Co$  existe na forma amorfa quando aquecido até 600°C e na forma monoclinica após aquecimento a temperaturas de 700 e 800°C.

### Agradecimentos

Produt CAPES, PIBIC/CNPq, LEM/IQUSP.

<sup>1</sup> Parvalescu, V. I.; Grange, P.; Delmon, B. *Catal. Today* **1998**, *46*, 233.

<sup>2</sup> Hamada, H.; Kintaichi, Y.; Tabata, Sasaki, M.; Ito, T. *Chem. Lett.* **1991**, 2179.

<sup>3</sup> Li, N.; Wang, A.; Tang, J.; Wang, X.; Liang, D.; Zhang, T.; *Appl. Catal. B* **2003**, *43*, 195.

<sup>4</sup> Corma, A. *Chem. Rev.* **1995**, *95*, 559

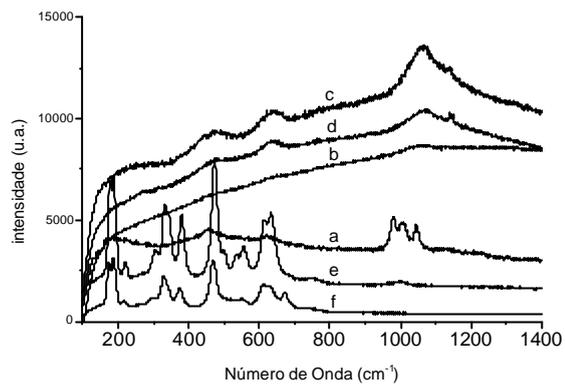


Figura 1. Espectros Raman de  $ZrO_2/SO_4/Co$  aquecido a: a) 120°C, b) 400°C, c) 500°C, d) 600°C, e) 700°C e f) 800°C.