



XXVI Comunicaciones Científicas y Tecnológicas

Orden Poster: CE-028 (ID: 2066)

Autor: ROMERO OJEDA, GONZALO DAVID

Título: Diversidad catalítica en zeolitas: influencia del efecto de confinamiento en la adsorción de ácido acético y su relación con las características topológicas del catalizador

Director: Peruchena, Nelida Maria

Co-Director: Zalazar, María Fernanda

Palabras clave: Zeolitas, Efecto de Confinamiento, Adsorción, Catálisis Heterogénea

Área de Beca: Cs. Naturales Y Exactas

Tipo Beca: Cofinanciadas Doctorales

Periodo: 01/04/2019 al 31/03/2023

Lugar de trabajo: Iquiba Nea - Inst. De Química Básica Y Aplicada Del Nordeste Argentino

Proyecto: (18V002) Modelado de reacciones catalíticas sobre materiales micro-mesoporosos en procesos químicos relevantes de interés industrial.

Resumen:

En virtud de la presencia de microporos, las zeolitas presentan una elevada complejidad debido al efecto de confinamiento. La combinación entre el tamaño de los espacios vacíos confinados y la fuerza ácida de estos sólidos, determinan su actividad catalítica. En las reacciones de esterificación catalizadas por zeolitas se presenta la adsorción de ácidos carboxílicos como un paso relevante en el mecanismo. El objetivo de este trabajo es estudiar desde el punto de vista de la distribución electrónica, el efecto de confinamiento sobre la adsorción de ácido acético en las zeolitas HMF1, HBEA, HMOR y HFAU considerando sus diferencias en relación al tamaño de poro, cavidad y estructura tridimensional, e inferir su contribución a la actividad catalítica. La estructura de los catalizadores se representó con un modelo de agregado 46T (T=Si,Al) para HFMI, 52T para HBEA, 70T para HMOR y 84T para HFAU. Las optimizaciones y análisis de frecuencias vibracionales de las especies involucradas se realizaron con el programa Gaussian09 y las densidades electrónicas se obtuvieron con el programa AIMAll a nivel M06-2X/6-31++G(d,p)//M06-2X/6-31G(d). Se hallaron las estructuras más estables para la adsorción de ácido acético sobre el sitio ácido de Brønsted de cada uno de los modelos zeolíticos. Se cuantificaron y discriminaron las interacciones debidas a la adsorción y al confinamiento. Los resultados revelaron para ambos modos de adsorción de ácido acético (adsorción por carbonilo e hidroxilo sobre el sitio ácido) que en zeolitas monodimensionales (HMOR) y aquellas tridimensionales con cavidades pequeñas (HMF1) la estructura de la zeolita permite una ubicación de la molécula huésped que favorece la presencia de una mayor cantidad de interacciones débiles adsorbato-catalizador. Estas interacciones representan conjuntamente el 32.3% y 34.7% del total de la densidad electrónica para HMOR y HMF1 respectivamente, por lo que su contribución a la energía de adsorción es importante y favorecen una mayor estabilidad del complejo adsorbido en relación a los otros modelos estudiados. En conclusión, el efecto de confinamiento en zeolitas juega un rol crucial y está relacionado con la estructura mono, di y tridimensional del catalizador que permite estabilizar al ácido acético en su interior.