

SFP 2011-0

Catalyseurs modèles supportés et auto-organisation: La catalyse hétérogène à l'échelle atomique

Georges Sitja^{1*}, Séverine Le Moal^{1,2} et Claude R. Henry¹

1. Centre Interdisciplinaire de Nanoscience de Marseille, CNRS - UPR 3118, Aix-Marseille Université, Campus de Luminy, Case 913, F-13288 Marseille Cedex 09, France.

2. Chair of Physical Chemistry, Catalysis Research Center, TU München, Lichtenbergstraße 4, D-85747 Garching, Allemagne.

* *sitja@cinam.univ-mrs.fr*

Les catalyseurs industriels étant des matériaux complexes, une meilleure connaissance des mécanismes de la catalyse hétérogène passe par l'utilisation de catalyseurs modèles. Un intérêt croissant est notamment suscité par les catalyseurs modèles supportés, qui consistent en des nanoparticules métalliques supportées par des oxydes, massifs ou en couche mince. La possibilité de contrôler la taille, la composition et la forme des particules permet aujourd'hui d'étudier la relation entre ces paramètres et la chimisorption de molécules simples. Nous présentons ici une étude de la dépendance en taille de l'énergie d'adsorption du monoxyde de carbone (CO) sur des réseaux réguliers de nanoparticules de Pd de taille bien contrôlée et d'environnement très homogène.

Nous avons utilisé un film d'alumine nanostructurée, obtenu par oxydation à haute température d'un monocristal de Ni₃Al(111), comme gabarit pour la croissance de nanoparticules de palladium. Le Pd croît exclusivement sur les nœuds de la nanostructure du film d'alumine, formant ainsi un réseau hexagonal régulier s'étendant sur toute la surface. La densité de particules reste quasi-constante pour un recouvrement compris entre 0,02 et 1 monocouche de Pd. Dans cet intervalle, la taille des particules peut être maîtrisée en contrôlant précisément la quantité de Pd déposé (de 5 à 230 atomes). La cinétique d'adsorption/désorption du CO sur ces réseaux de nanoparticules de Pd a été étudiée par une technique de jet moléculaire pulsé supersonique couplé à un spectromètre de masse (MBRS). Ainsi nous avons pu déterminer l'énergie d'adsorption du CO en fonction de la quantité de Pd déposé (entre 0,02 et 20 MC) et mettre en évidence ses variations en fonction de la taille des particules. Cette dépendance est non-monotone dans le régime des petites tailles (< 2 nm), en raison de la nature moléculaire des agrégats, chaque particule ayant sa propre structure électronique. Pour les dépôts les plus épais de Pd nous retrouvons la valeur précédemment obtenue pour le palladium massif, validant ainsi la méthode utilisée.