

Institut des NanoSciences de Paris, UMR CNRS 7588, Université Pierre et Marie Curie, Campus Bouicaut, 140, rue de Lourmel 75015 Paris (Jacques Jupille)
 Laboratoire de Réactivité de Surface, UMR CNRS 7609, Université Pierre et Marie Curie, case 178, 4 place Jussieu, 75252 Paris cedex 05 (Catherine Louis)
 Institut Néel, UPR CNRS 2940, 25 avenue des Martyrs BP 166 X, 38052 Grenoble cedex (Marie-Claire Saint-Lager)
 Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers, BP48, Saint Aubin, 91191 Gif Sur Yvette cedex (Paul Dumas)
 Centre Interdisciplinaire de Nanosciences de Marseille, UPR CNRS 7251, Campus de Luminy, Case 913, 13288 Marseille cedex 9 (Suzanne Giorgio)
 Laboratoire de Chimie Physique, Matière et Environnement, UMR CNRS 7614, 11, rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris cedex 05 (François Rochet)
 Affiche présentée par Gregory Cabailh (Institut des Nanosciences de Paris) gregory.cabailh@insp.jussieu.fr
 Responsable du projet : Jacques Jupille (Institut des Nanosciences de Paris) jacques.jupille@insp.jussieu.fr

Etude de l'oxydation de CO sur des nanoparticules d'or supportées sur substrats cristallins

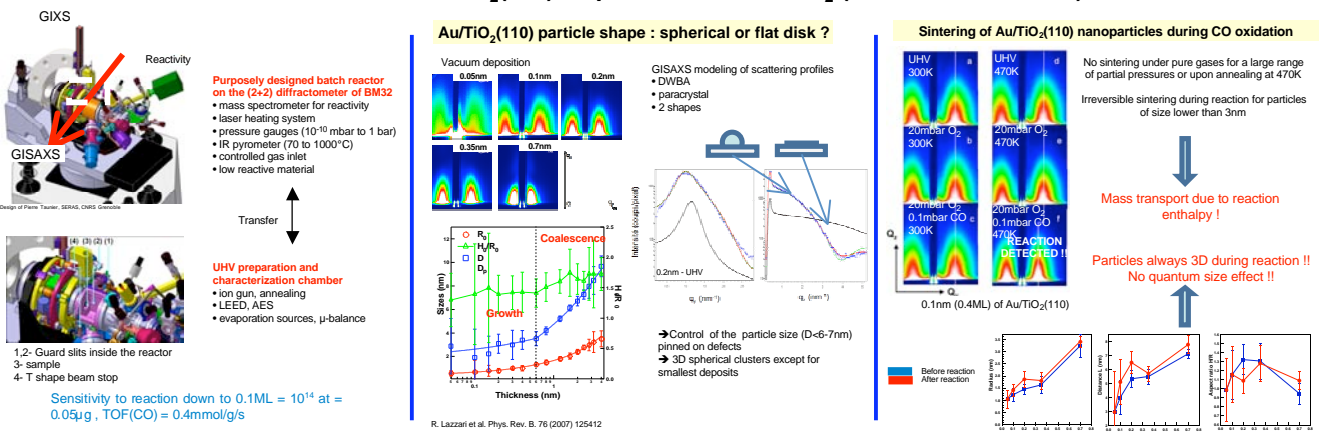
Objectif: comprendre le mécanisme réactionnel: dissociation de l'oxygène, adsorption de CO et enfin réaction elle-même.

Méthodes: techniques de pointe actuellement encore peu répandues au niveau international: Grazing Incidence X-ray Diffraction at Small (GISAXS) and large Angles (GIXS), microscopie électronique en transmission (TEM), microscopie tunnel (STM) dans des conditions environnementales; spectroscopies infrarouges proche et lointain; réactivité résolue en temps.

Les étapes clés sont :

- la préparation d'un nombre restreint de systèmes bien définis, Au sur surfaces cristallines (TiO₂ et Al₂O₃) et Au sur couches minces d'alumine épitaxiées dans le but d'obtenir des particules auto-organisées;
- la caractérisation de la taille, la forme, la cristallographie et les propriétés électroniques des particules d'or supportées pour déterminer la morphologie optimale vis-à-vis de leur réactivité;
- l'analyse des liaisons molécule-substrat et des mécanismes réactionnels sur ces systèmes catalytiques; une comparaison sera faite avec des catalyseurs de grande surface spécifique.

GISAXS et GIXS de Au/TiO₂(110) en présence de CO + O₂ (Institut Néel et INSP)



Ségrégations dans les agrégats de Au-Pd par ETEM (CINAM-CNRS)

- Préparation des agrégats d'alliages Au-Pd par co-dépôt-précipitation à l'urée sur support d'oxyde. Au-Pd supportés sur TiO₂, contenant 8 % pds d'au et un rapport atomique Au/Pd = 4
- Echantillons réduits ex situ sous H₂ à 500°C

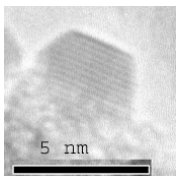


Fig. 1 Agrégat de Au-Pd. Structure et morphologie déterminées par MET standard

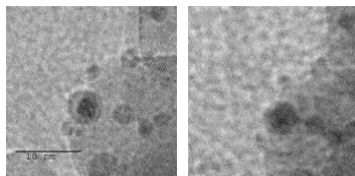
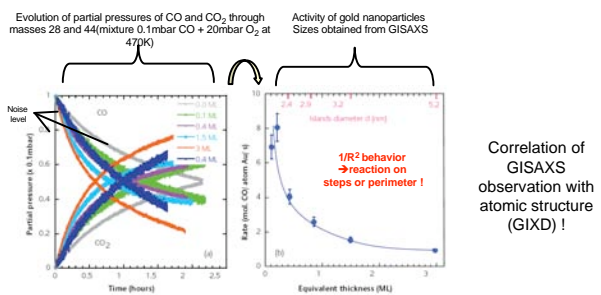


Fig. 2 (Gauche) Agrégats de Au-Pd observé sous flux de O₂ à 4 mbar. (Droite) Mêmes agrégats en cours de réduction sous H₂ à 4 mbar. Ségrégations étudiées par microscopie haute résolution environnementale in situ

- Tailles des agrégats: entre 3 et 5 nm
- Haute résolution sous vide: structure désordonnée cfc (fig. 1)
- Ségrégations sous une pression de O₂ de 4 mbar à T ambiante: structure « cœur-coquille » avec du Pd à l'extérieur (fig. 2)
- Transformations réversibles sous flux de H₂ à la même pression et à T ambiante (fig. 3)

Reactivity versus size : a clue about the reaction site ?



Conclusion

The catalytic oxidation of CO on Au/TiO₂(110) has been studied in situ in a dedicated chamber allowing simultaneous GISAXS and reactivity measurements. A maximum in the reaction rate has been observed for particles in the size range of 2 nm to 2.5 nm. The nanoparticles are 3D except for very small deposits.