



De Onderzoeksgroep
Algemene Chemie

nodigt U graag uit op de openbare verdediging van het proefschrift van

José Luis Nuñez

ter behaling van de graad van Doctor in de wetenschappen

Gezamenlijk doctoraat met Universidad Nacional del Litoral

Titel van het proefschrift:

An atomistic view point of the chemical reactivity of
modified carbon materials

Promotoren:

Prof. dr. Frederik Tielens (VUB)
Prof. dr. Paola Quaino (UNL)

De verdediging heeft plaats op
Dinsdag 18 maart 2025 om 13u
in "Aula Leloir", FIQ, UNL, Argentina.

De verdediging kan via een livestream gevolgd
worden:

Microsoft Teams

Meeting ID: 360 897 996 506
Access code: BS6qL2vP

Samenstelling van de jury

Prof. dr. Frank De Proft (VUB, voorzitter)
Prof. dr. Pablo Bolcatto (UNL, secretaris)
Prof. dr. Mercedes Alonso Giner (VUB)
Prof. dr. Alfredo Juan (UNS)

Curriculum vitae

José Luis behaalde zijn "Licenciatura en Química" aan de Universidad Nacional del Litoral (UNL), Argentinië, in april 2020, na het presenteren van een proefschrift over ab initio studies van gemodificeerde koolstofnanobuisjes en OER-reactie. Hij werkte ook aan experimentele chemie bij de afdeling Natuurkunde (FBCB, UNL, Argentinië), met name aan de EPR-karakterisering van een koper-dianionisch complex.

Hij is geïnteresseerd in het gebruik en de ontwikkeling van computercodes voor de beschrijving en voorspelling van chemische eigenschappen van nieuwe materialen, die door een beter begrip kunnen bijdragen aan de vooruitgang van wetenschap en technologie.

Abstract van het doctoraatsonderzoek

Een van de manieren om het gebruik van dure katalysatoren te verminderen is de synthese van nieuwe verbindingen met een laag aandeel van deze katalysatoren, die hun gewenste eigenschappen behouden of verbeteren. Omgekeerd bieden koolstofhoudende materialen grote oppervlakken met diverse geometrieën en samenstellingen die als drager kunnen dienen tegen aanzienlijk lagere kosten. Een beter begrip van de synthesecondities van deze systemen is echter nog steeds nodig om hun bereiding en eigenschappen te controleren en, in het bijzonder, de veranderingen in hun katalytische eigenschappen die kunnen ontstaan door het synergetische effect van de combinatie van deze materialen.

Dit proefschrift richt zich op theoretische studies die inzicht geven in het gedrag van koolstofhoudende materialen die gemodificeerd zijn met nanodeeltjes van een metaal of oxide in verschillende structurele configuraties en samenstellingen. Het doel is om een uitgebreid begrip te ontwikkelen van hoe veranderingen in de materiaaleigenschappen na modificatie de adsorptie en dissociatie van water beïnvloeden. Op basis van deze bevindingen is het de bedoeling om een solide basis te leggen voor het ontwerp van nieuwe materialen met verbeterde prestaties voor de bestudeerde processen. Hiervoor is een reeks chemische modellen van hybride materialen voorgesteld en onderzocht met behulp van ab-initio methoden. In het bijzonder zijn twee vormen van koolstofoppervlakken, namelijk koolstofnanobuisjes (CNT) en grafeenoxide (GO), voorgesteld als substraten voor de afzetting van verschillende platina- en iridiumoxide nanodeeltjes.

Het resultaat van dit onderzoek is dat de voorgestelde koolstofoppervlakken platina (Pt_n , $n = 1-10, 13$) en stoichiometrisch iridiumoxide ($(IrO_2)_n$, $n = 1-6$) nanodeeltjes kunnen stabiliseren. De kleine diameter van de CNT beperkt duidelijk het interactiegebied tussen de deeltjes en het koolstofoppervlak. Bovendien blijken iridiumoxide "core-shell-achtige" structuren geschikter te zijn voor interactie met polaire oppervlakken zoals dat van GO. Bovendien werden wateradsorptie en verdere dissociatie geanalyseerd op geselecteerde Pt_n/CNT - en $(IrO_2)_n/CNT$ -systemen. Beide soorten systemen gaven uitstekende resultaten wat betreft activeringsenergieën voor de dissociatiestap. De resultaten van deze studie moedigen experimentalisten aan om stabiele driehoekige Pt nanodeeltjes en nano-geschaalde iridiumoxide deeltjes op een CNT oppervlak te synthetiseren om polarisatie te bevorderen en de efficiëntie van katalyse te verhogen.

Tot slot onderzoekt dit proefschrift verder M_{13} monometallische nanodeeltjes en hun reactiviteit (door eenvoudige moleculen te gebruiken, zoals O_2 en N_2), met als doel om in de toekomst een vergelijkbare analyse te ontwikkelen voor M_{13} clusters op koolstofgebaseerde oppervlakken.