

## Interactions des molécules $H_2$ , $C_2H_2$ , $C_2H_4$ avec la surface (100) de $Al_{13}Co_4$ Conséquences pour la semi-hydrogénation de l'acétylène

*D. Kandaskalov\**, J. Ledieu, V. Fournée, É. Gaudry

Institut Jean Lamour, UMR CNRS 7198, Université de Lorraine, 54011 Nancy cedex, France

[dmytro.kandaskalov@univ-lorraine.fr](mailto:dmytro.kandaskalov@univ-lorraine.fr)

La semi-hydrogénation de l'acétylène est une réaction industriellement importante, utilisée pour la production de polyéthylène. Les catalyseurs traditionnels, à base de métaux nobles comme les alliages de Pd-Ag<sup>1</sup>, sont coûteux. Récemment, les composés métalliques complexes, à base d'aluminium, ont montré une efficacité pour cette réaction et sont considérés comme une alternative «low-cost» pour la catalyse. Parmi ces composés,  $Al_{13}Co_4$  montre une sélectivité et une activité élevée<sup>2</sup>, tout en conservant une bonne stabilité. Une première étape vers la compréhension des mécanismes à la base de la réactivité requiert la détermination des sites d'adsorption des molécules impliquées dans la réaction.

Dans cette étude, nous avons déterminé les sites d'adsorption préférentiels des molécules impliquées dans la semi-hydrogénation de l'acétylène sur la surface (100) de  $Al_{13}Co_4$ , par une approche utilisant des calculs fondés sur la théorie de la fonctionnelle de la densité. Nous avons utilisé des modèles de surface déterminés récemment, grâce à une approche à la fois théorique et expérimentale<sup>3</sup> (Figure).

Notre étude montre que les molécules  $C_2H_x$  sont adsorbées via un atome de carbone, et forment préférentiellement des liaisons C-surface avec l'atome de carbone hybridé  $sp^3$ . Ainsi, les molécules  $C_2H_2$  et  $C_2H_4$  sont adsorbées respectivement sur des sites de symétrie d'ordre 4 et 2. L'influence de la nature des atomes formant le site d'adsorption (Al ou Co) est discutée, ainsi que l'influence des atomes situés dans le plan de sous-surface. En conclusion, nous évoquons les conséquences pour la semi-hydrogénation de l'acétylène.

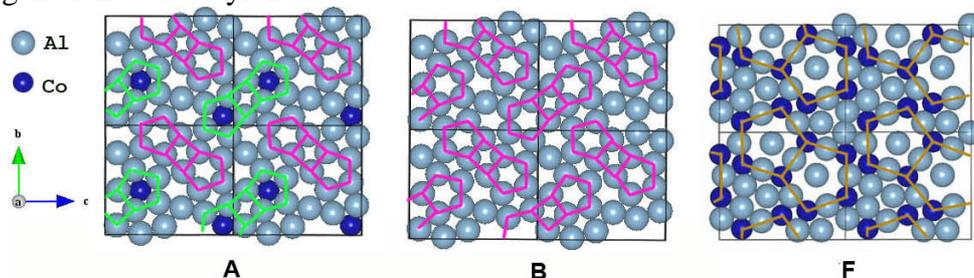


Fig 1. Modèles A et B de la surface  $Al_{13}Co_4(100)$ . F est le plan de sous surface pour les deux modèles considérés.

1. N. S. Schbib *et al.*, *Ind. Eng. Chem. Res.* **35** 1496 (1996); C. N. Thanh *et al.*, *U.S. Patent* 6,054,409 (2000).
2. M. Armbrüster *et al.*, *Nat. Mat.*, **11** 690 (2012) ; M. Armbrüster *et al.*, European patent application No. 09157875.7, (2009).
3. H. Shin *et al.*, *Phys. Rev. B*, **84** 085411 (2011); V. Fournée *et al.*, MRS proceedings **1517** (2012).