

Estudo da Adsorção de Clusters de Ni₄ sobre (ZrO₂)_n, n=1-5

Victor M. P. da Silva, Larissa Zibordi-Besse, and Juarez L. F. Da Silva¹

Instituto de Química de São Carlos, Universidade de São Paulo, PO Box 780,
13560-970, São Carlos, SP, Brazil

murilo.270198@gmail.com

Objetivos

A aplicação de hétero-catalisadores depende da interação metal-suporte e da exploração de todos os sítios de adsorção não equivalentes, que ainda é um desafio. Assim, o estudo das propriedades físico-químicas da interação entre Ni₄ e ZrO₂_n através do processo de adsorção, variando a fórmula unitária, n=1-5, é necessária.

Métodos e Procedimentos

Nesta perspectiva, cálculos de primeiro princípio baseados na Teoria do Funcional da Densidade (DFT) foram realizados no qual o funcional de troca e correlação proposto foi desenvolvido por Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE-GGA), como implementado no pacote FHI-aims¹. Afim de cobrir a maior parte dos sítios de adsorção dos Clusters conforme n aumenta, foi utilizado o algoritmo TGA (Tree Growth Approach) desenvolvido pelo grupo.

Resultados

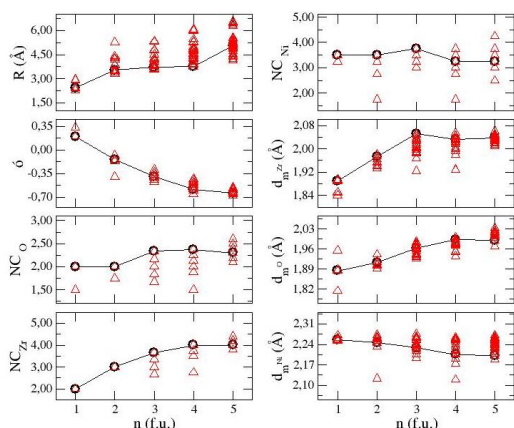


Figura 1: Propriedades estruturais das estruturas Ni₄/(ZrO₂)_n, n=1-5.

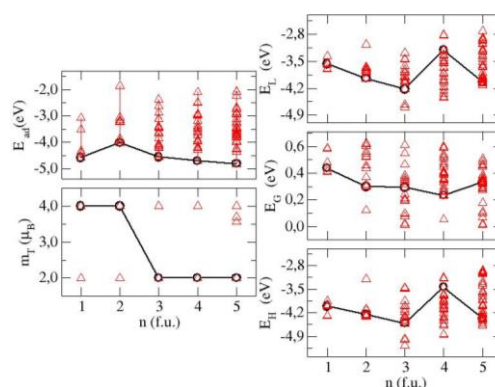


Figura 2: Propriedades eletrônicas das estruturas Ni₄/(ZrO₂)_n, n=1-5.

Conclusões

Das propriedades eletrônicas e geométricas determinadas pode-se concluir que há uma tendência das estruturas Ni, (ZrO₂)_n, n=1-15, e Ni/(ZrO₂)_n, n=1-5, em conformações mais compactas, com maior número de coordenação. A energia de adsorção caminha inversamente ao GAP do catalisador, assim como a distância entre metal e suporte. O sítio de adsorção é unicamente nos oxigênios do suporte. A natureza das interações entre Ni₄ e (ZrO₂)_n, n=1-5, ainda são apresentando padrão, entretanto os sítios de adsorção de possíveis para moléculas, como CH₄, em reações é majoritariamente no Cluster Ni₄, suportado pelo caráter único de átomos de Ni na composição do LUMO.

Referências Bibliográficas

[1] V. Blum, R. Gehrke, F. Hanke, P. Havu, V. Havu, X. Ren, K. Reuter, and M. Scheffler, "Ab Initio molecular simulations with numeric atom-centered orbitals," Comput. Phys. Commun., vol. 180, pp. 2175–2196, 2009.