

ESTUDO TEÓRICA DAS PROPRIEDADES ELETRÔNICAS DE ZEÓLITA RUB-11 MODIFICADA POR ÁTOMOS DE TRANSIÇÃO DE COBRE, ZINCO E ESCÂNDIO

THEORETICAL STUDY OF THE ELECTRONIC PROPERTIES OF RUB-11 ZEOLITE MODIFIED BY COPPER, ZINC AND SCANDIUM TRANSITION ATOMS

José de B. M. Neto¹, Aparecida H. M. do Carmo^{1,2}, Rafaela G. Faustino³, Guilherme R. Araújo⁴, Anna B. V. Pavão⁵, David L. Azevedo⁶, Raquel M. T. Fernandes⁷, Alamgir Khan⁸.

1,2 - Programa de Pós Graduação em Engenharia Aeroespacial - PPGEA, Universidade Estadual do Maranhão, (UEMA), São Luís, MA, Brasil.

3,4 e 5- Graduando(a) de licenciatura de Química, Universidade Estadual do Maranhão, São Luís, Brasil.

6 - Instituto de Física, Universidade de Brasília (UnB), Brasília, DF, Brasil.

7,8 -Departamento de Química, Universidade Estadual do Maranhão, São Luís, Brasil

britomonteiro712@gmail.com

RESUMO

As zeólitas são materiais microporosos com base na formação tetraédrica de silicatos, sendo destaque como catalisadores devido à sua característica seletiva com seus sítios reativos. Por isso, são amplamente utilizadas em processos de adsorção, separação e catálise em diversas indústrias [1]. Neste contexto, este trabalho tem como objetivo localizar sítios reativos da zeólita RUB-11 de 5 anéis por meio do método DFT (GGA-PBE) [2–3], utilizando o software Materials Studio com a ferramenta Dmol³ [4]. A Density Functional Theory (DFT) [5–6] é uma abordagem da química computacional que permite o estudo das propriedades eletrônicas de sistemas moleculares e sólidos. A estrutura original apresentou energia de gap de 6,98 eV, enquanto as modificações com átomos de cobre, zinco e escândio resultaram em energias de gap, respectivamente, de 0,512; 0,711 e 3,294 eV, indicando um aumento de reatividade em relação à RUB-11-5A. Além da energia de gap, foi realizada uma análise com a função Fukui [7] e a análise populacional de Hirshfeld [8], com base nos resultados DFT. A análise populacional indicou um sítio reativo mais propício para dopagem com cobre, no qual foram apontados os átomos de silício 18, 23, 24 e 25, com variação de 0,039 a 0,045 (Hirshfeld); entretanto, somente os sítios T-25 e T-18 permitiram a estabilização da estrutura. Enfim, conclui-se que, com a redução do gap indicando o aumento da reatividade e a estabilização da estrutura com metal de transição, abre-se caminho para aplicações catalíticas e de adsorção.

Palavras-chave: Química Computacional, Zeólita, RUB-11, DFT, Hirshfeld.

ABSTRACT

Zeolites being microporous materials based on their tetrahedral formation of silicates, due to their selective characteristic with their reactive sites are used as catalysts. Therefore, they are widely used in adsorption, separation and catalysis processes in several industries [1]. In this context, this work aims to study the reactive sites of the 5-ring zeolite RUB-11 by means of the DFT method (GGA-PBE) [2–3], using the Materials Studio software with the Dmol³ tool [4]. Density Functional Theory (DFT) [5–6] is a computational chemistry approach that allows the study of the electronic properties of molecular and solid systems. The original structure presented a band gap energy of 6.98 eV, while the modifications with copper, zinc and scandium atoms resulted in band gap energies, respectively, of 0.512; 0.711 and 3.294 eV, indicating an increase in reactivity compared to RUB-11-5A. In addition to the band gap energy, an analysis with the Fukui function [7] and the Hirshfeld population analysis [8] were also performed. The population analysis indicated a reactive site more suitable for copper doping, in which the silicon atoms 18, 23, 24 and 25 were pointed out, with a variation of 0.039 to 0.045 (Hirshfeld); however, only the T-25 and T-18 sites allowed the stabilization of the structure. Finally, it is concluded that, with the reduction of the band gap indicating the increase in reactivity and the stabilization of the structure with transition metal, the way is opened for catalytic and adsorption applications.

Keywords: Computational Chemistry, Zeolite, RUB-11, DFT, Hirshfeld.

REFERÊNCIAS

- [1] MOUNSSEF JR, Bassim et al. DFT study of H₂ adsorption at a Cu-SSZ-13 zeolite: a cluster approach. **Physical Chemistry Chemical Physics**, v. 23, n. 16, p. 9980-9990, 2021.
- [2] PERDEW, John P. Generalized gradient approximation made simple. **Phys. Rev. Lett.**, v. 77, p. 3868, 1997.
- [3] VIANA, Giscard Eanes Dias. Estabilidade térmica e propriedades eletrônicas de nanoflakes de nitreto de boro. 2019.
- [4] BIOVIA, Dassault Systemes. Materials Studio 2017, Dassault Systemes. 2016.
- [5] KOHN, W.; SHAM, L. J. Self-consistent equations including exchange and correlation effects. **Physical review**, APS, v. 140, n. 4A, p. A1133, 1965.
- [6] HOHENBERG, P.; KOHN, W. Inhomogeneous electron gas. **Physical review**, APS, v. 136, n. 3B, p. B864, 1964.
- [7] FUKUI, Kenichi. Formulation of the reaction coordinate. **The Journal of Physical Chemistry**, v. 74, n. 23, p. 4161-4163, 1970.
- [8] HIRSHFELD, Fred L. Bonded-atom fragments for describing molecular charge densities. **Theoretica chimica acta**, v. 44, p. 129-138, 1977.