

Modelagem Computacional da Redução de NOx em catalisador de CeO₂/MnO₂

Polena do Nascimento Peixoto¹ (IC)*, Vanessa Castro de Souza¹ (IC), Maria José Gomes¹ (IC) Sidney Ramos Santana¹ (PQ), Regiane de C. M. U. de Araújo¹ (PQ).

¹ Departamento de Química, CCEN, Universidade Federal da Paraíba, João Pessoa – PB

*polena9@yahoo.com.br

Palavras Chave: Catálise Heterogênea, redução de NO_x, PM6.

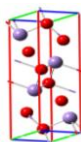
Introdução

Os esforços no campo da catálise heterogênea culminaram no desenvolvimento de um dispositivo chamado conversor catalítico, que é um material cerâmico envolto em uma blindagem metálica capaz de promover a redução seletiva de NO_x para N₂, visando solucionar problemas ambientais. Ele é geralmente colocado após a saída dos gases dos motores automobilísticos. O estudo da reação, onde temos a representação de um sólido e um gás, foi feito baseado em cálculos teóricos. Os mecanismos desta reação ainda não foram completamente elucidados, pois a reação SCR pode ocorrer com NH₃, CO, ou até mesmo CH₄. O óxido de cério suportados por óxido de manganês, possui uma reação SCR com NH₃, assim, este trabalho tem como objetivo investigar qual é o efeito da reação de modo a validar o mecanismo SCR com NH₃ neste material. O trabalho foi desenvolvido no Laboratório de Química Quântica Computacional que conta com os principais softwares necessários à realização do projeto de pesquisa.

Resultados e Discussão

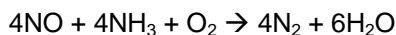
O modelo foi criado baseando-se em superfícies geradas a partir da estrutura cristalográfica do MnO₂, para gerar o plano de adsorção (001), obtidas do banco de dados de estruturas inorgânicas ICSD[2].

Figura 1. Estrutura cristalográfica do MnO₂ (célula unitária).



Utilizamos o método PM6[3], e condições periódicas de contorno (PBC), implementado no programa MOPAC2007[4], para o cálculo de propriedades termodinâmicas do sistema.

Iniciamos o mecanismos proposto para reação de redução do NO_x para N₂ como mostrado no artigo de Jug e colaboradores[5], que emprega o agregado V₂O₇H₄Ti₃₃O₆₆(H₂O)₁₇ segundo a reação abaixo:



Foram realizados cálculos de otimização das geometrias para a reação de adsorção do NH₃ sobre a superfície MnO₂ no plano (001), usando uma supercélula (n.m.p), onde estes número correpondem a n.a, m.b, e p.c, para n=m=3 e p=1, sendo a,b,e c os parâmetros da célula unitária do MnO₂.

Na Tabela 1 vemos os valores de energia de adsorção do NH₃ para os sistemas estudados em comparação com o agregado V₂O₇H₄Ti₃₃O₆₆(H₂O)₁₇

O nosso resultado mostra que a energia de adsorção do NH₃ no nosso modelo 2x4x1 MnO₂ é cerca de cinco vezes menor, ou seja, o sistema é cinco vezes mais estável do que o modelo proposto por Jug e colaboradores[4]. Assim esta superfície apresentasse como um bom candidato para o estudo da reação de redução do NO_x para N₂.

Tabela 1. Comparação entre a energia de adsorção do NH₃ na superfície 2x4x1 MnO₂ e no agregado V₂O₇H₄Ti₃₃O₆₆(H₂O)₁₇

Estruturas	Energia de adsorção
Ce:MnO ₂	-664,24 kJ/mol
V ₂ O ₇ H ₄ Ti ₃₃ O ₆₆ (H ₂ O) ₁₇	-128 kJ/mol

Conclusões

A superfície de MnO₂ estudada apresenta resultados comparáveis com outros modelos da literatura para a adsorção de NH₃. Outros mecanismos para a reação de conversão do NO_x para N₂, ainda estão sendo investigados.

Agradecimentos

CNPQ, CAPES, UFPB, LQQC.

¹ N. Apostolescu, B. Geiger, K. Hizbullah, M.T. Jan, S. Kureti, D. Reichert, F. Schott, W. Weisweiler, Appl. Catal. B: Environ. 62 (2006) 104-114.

² <http://icsdweb.fiz.karlsruhe.de>. (acessado em 10/05/09).

³ Stewart, J. J. P., J. Mol. Model. 14 (2008) 499-535.

⁴ <http://www.openmopac.net> (acesso em 10/05/09)

⁵ K. Jug, T. Homann, and T. Bredow, J. Phys. Chem. A 108 (2004) 2966-2971.

⁶ Orita et al., Appl Catal. A: General 258 (2004) 115-120