

Efecto de la inserción de Co en nanotubos de carbono de pared simple con defectos puntuales

Luciana Rey^{1,2,*}, José Nuñez^{1,2}, Gustavo D. Belletti^{1,2,*}

1.- Facultad de Ingeniería Química - Universidad Nacional del Litoral
 2.- Instituto de Química Aplicada del Litoral (CONICET – UNL).
 * lrey@fiq.unl.edu.ar ; gbelletti@fiq.unl.edu.ar

INTRODUCCIÓN

Los nanotubos de carbono (CNT) de pared simple encuentran su aplicación en:

- Electrónica a nanoescala
- Celdas de combustible
- Espintrónica
- Almacenamiento de H₂
- Biomedicina y biosensores
- Electroquímica

Los CNT disponibles experimentalmente no son perfectos, presentan defectos topológicos, como vacantes puntuales, que pueden cambiar significativamente sus propiedades y se modifican la reactividad de la superficie del CNT.

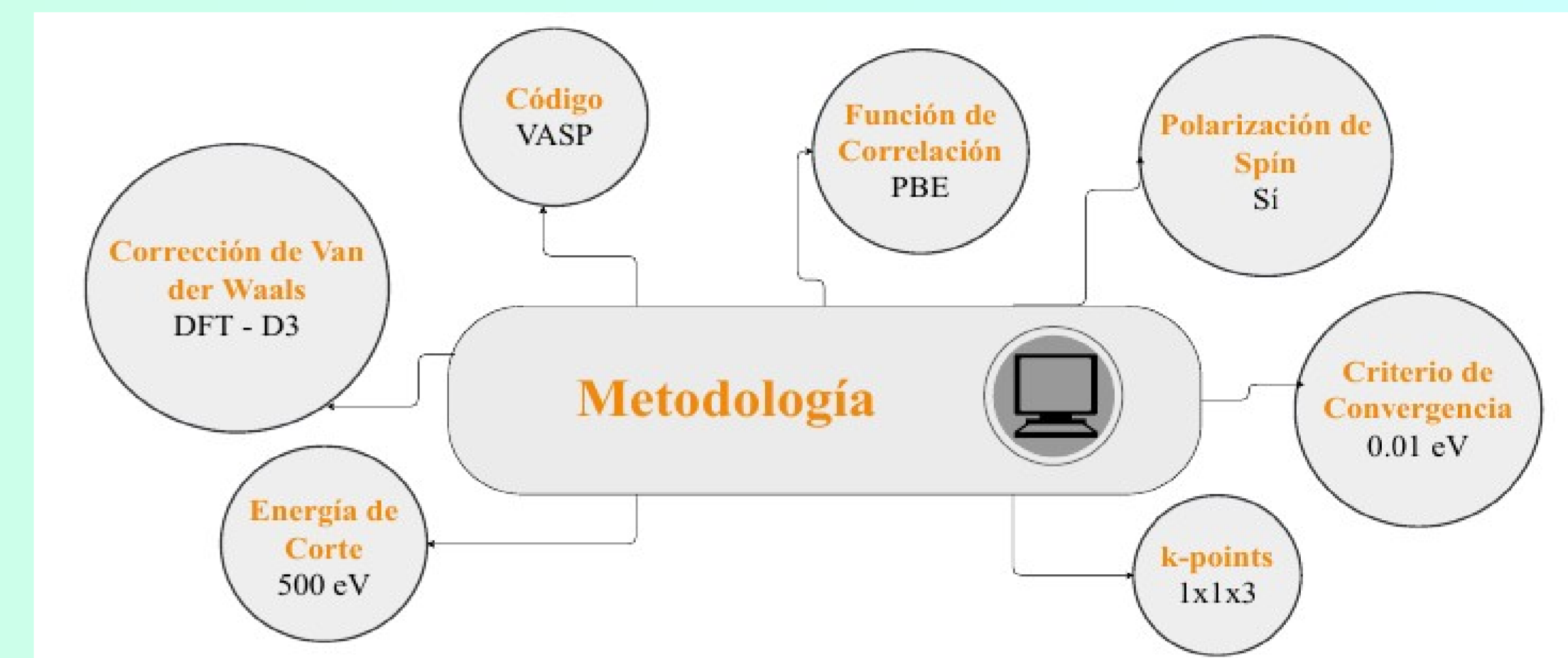
El presente trabajo pretende contribuir con la investigación de estos materiales híbridos realizando cálculos de primeros principios en CNT de pared simple que presenten defectos puntuales, a los que se les adsorbe un átomo de Co, dopando así el CNT.

OBJETIVOS

- Comprender el comportamiento de nanotubos de carbono de pared simple en diferentes configuraciones geométricas pero de diámetro interno similar, dopados con átomos de Co.
- Evaluar las propiedades estructurales, electrónicas y magnéticas de los sistemas, previa y posteriormente al dopado con los átomos metálicos.

METODOLOGÍA

En el presente trabajo fueron utilizados métodos computacionales ab-initio para modelar la adsorción de un átomo de Co sobre la superficie externa de CNT de quiralidad (5,5) y (8,0) que presentan un defecto puntual (al que denominamos CNT*).

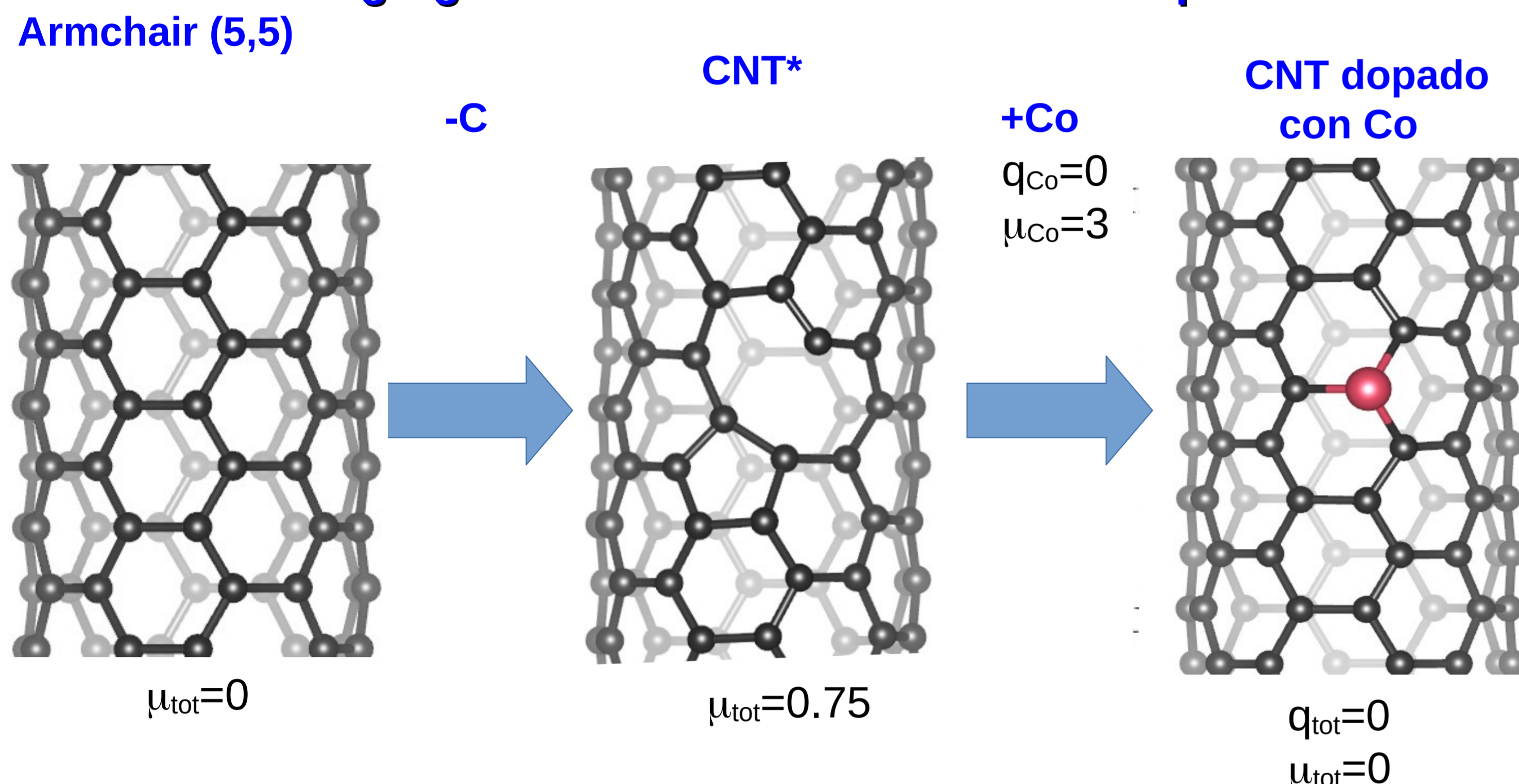


Las estabildades de las estructuras propuestas fueron analizadas a través de las energías de adsorción (E_{ads}) de átomos de Co sobre la superficie del CNT que presentan vacancias puntuales (CNT*) definida según la ecuación:

$$E_{ads} = E_{CNT+Co} - E_{CNT^*} - E_{Co}$$

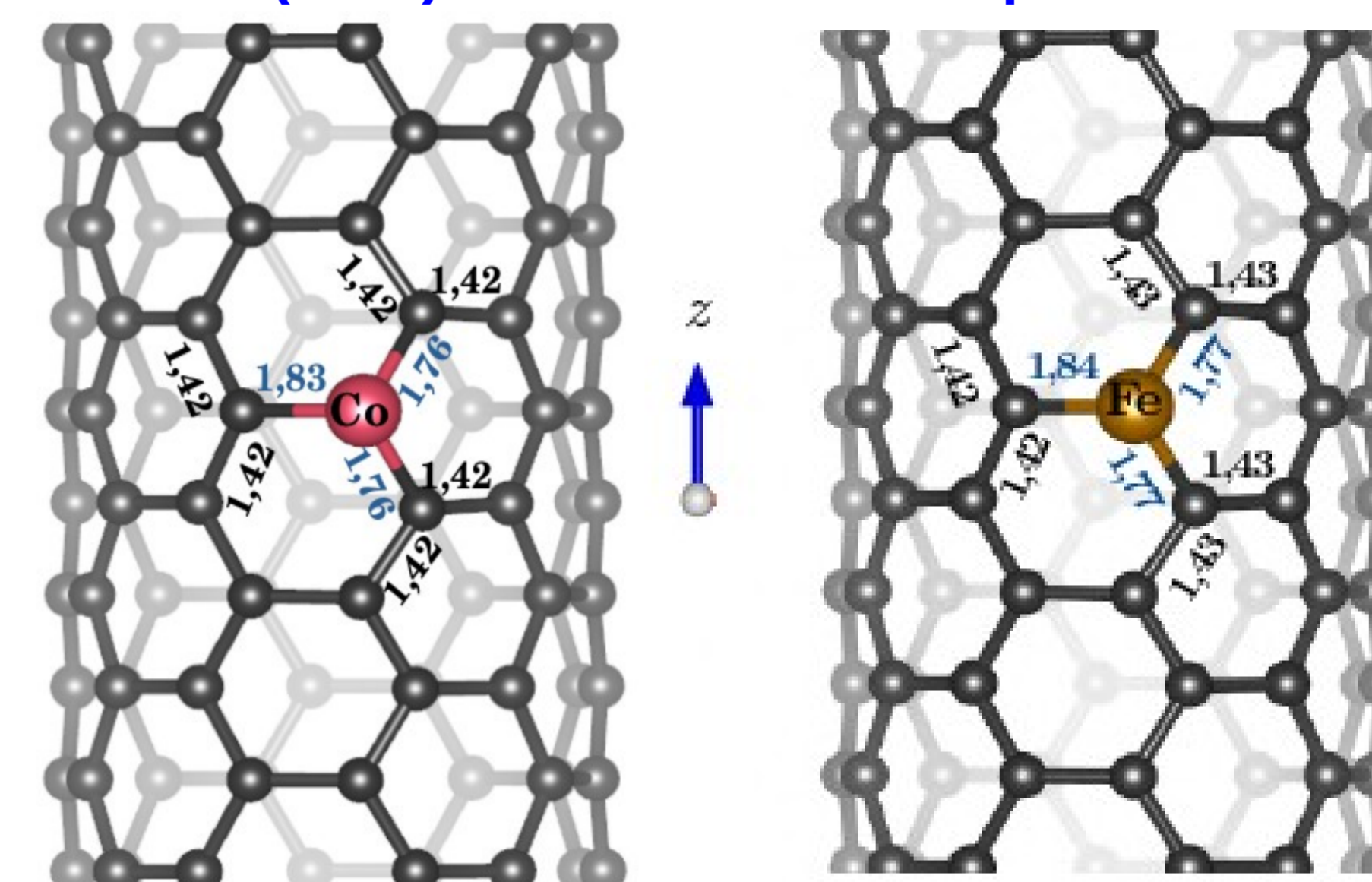
RESULTADOS

Agregado de Co en CNT con defectos puntuales



Comparación efecto dopado con Co y Fe

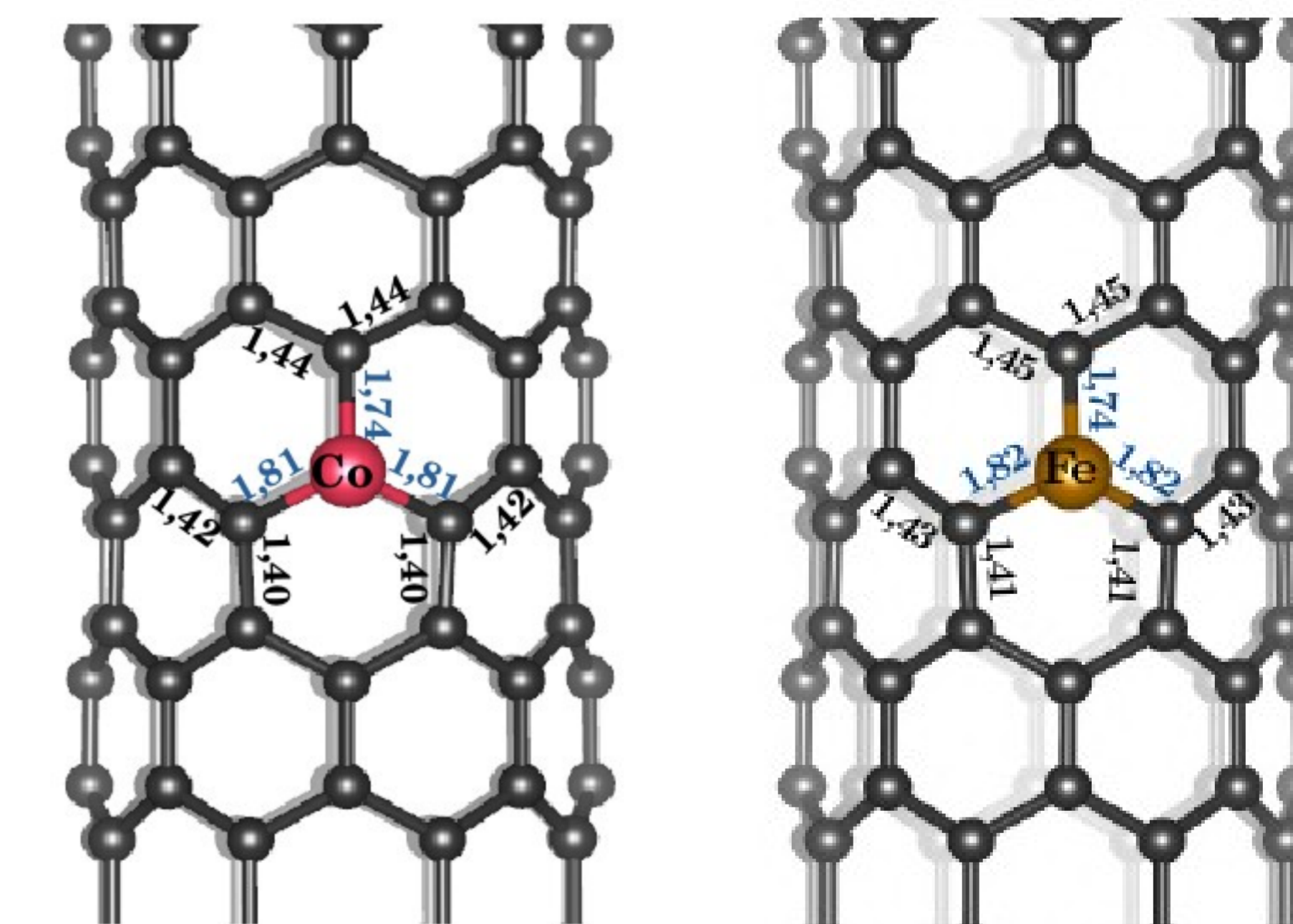
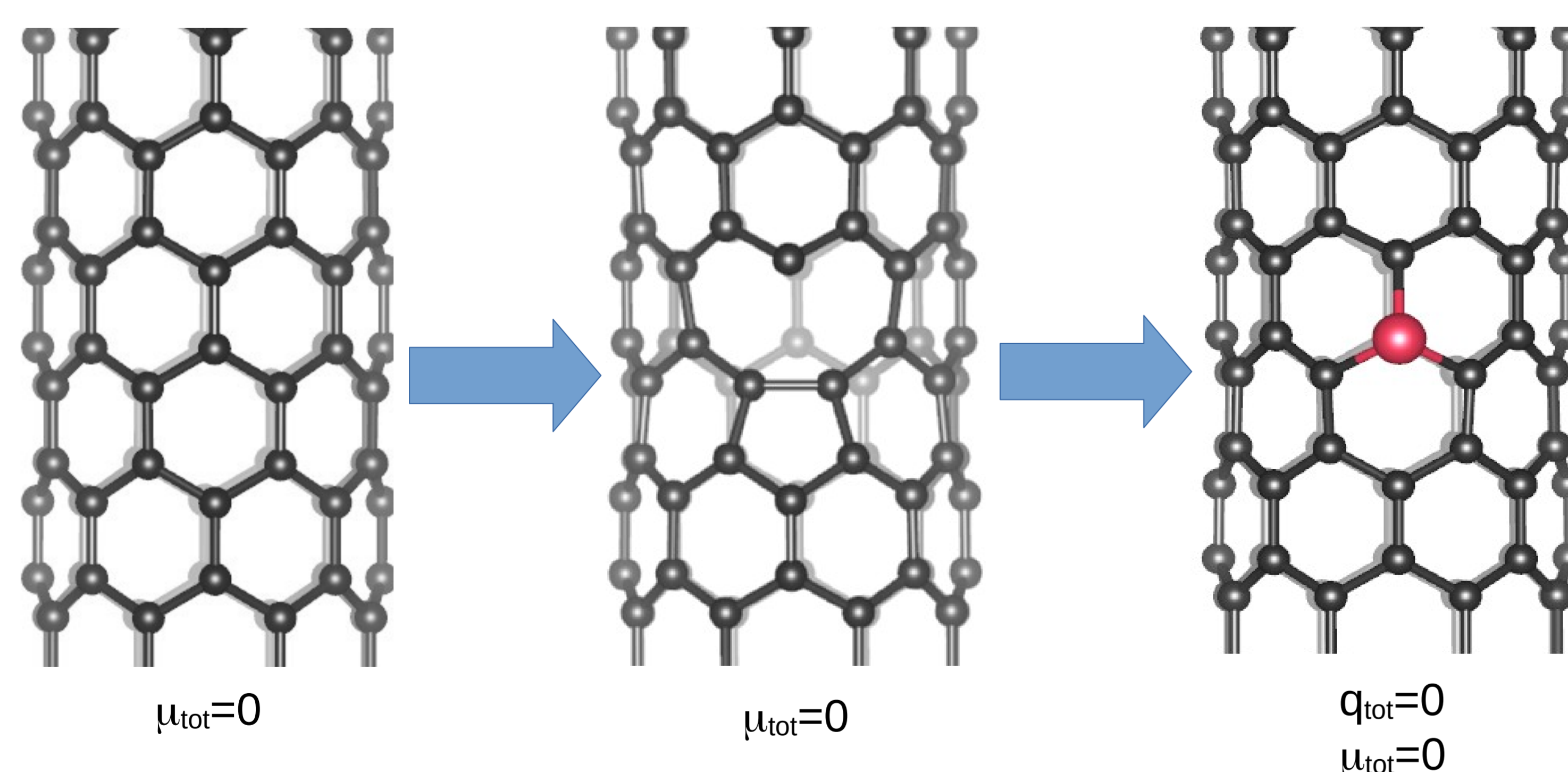
Estructuras y distancias de enlace (en Å) de los sistemas dopados



Tablas de resultados obtenidos para los sistemas dopados

ARMCHAIR			
	E_{ads} (eV)	Magnetización Total (μ_B)	Carga de Bader de TM (e)
Co	-6.92	0	-0.4
Fe	-6.66	0.6	+0.7

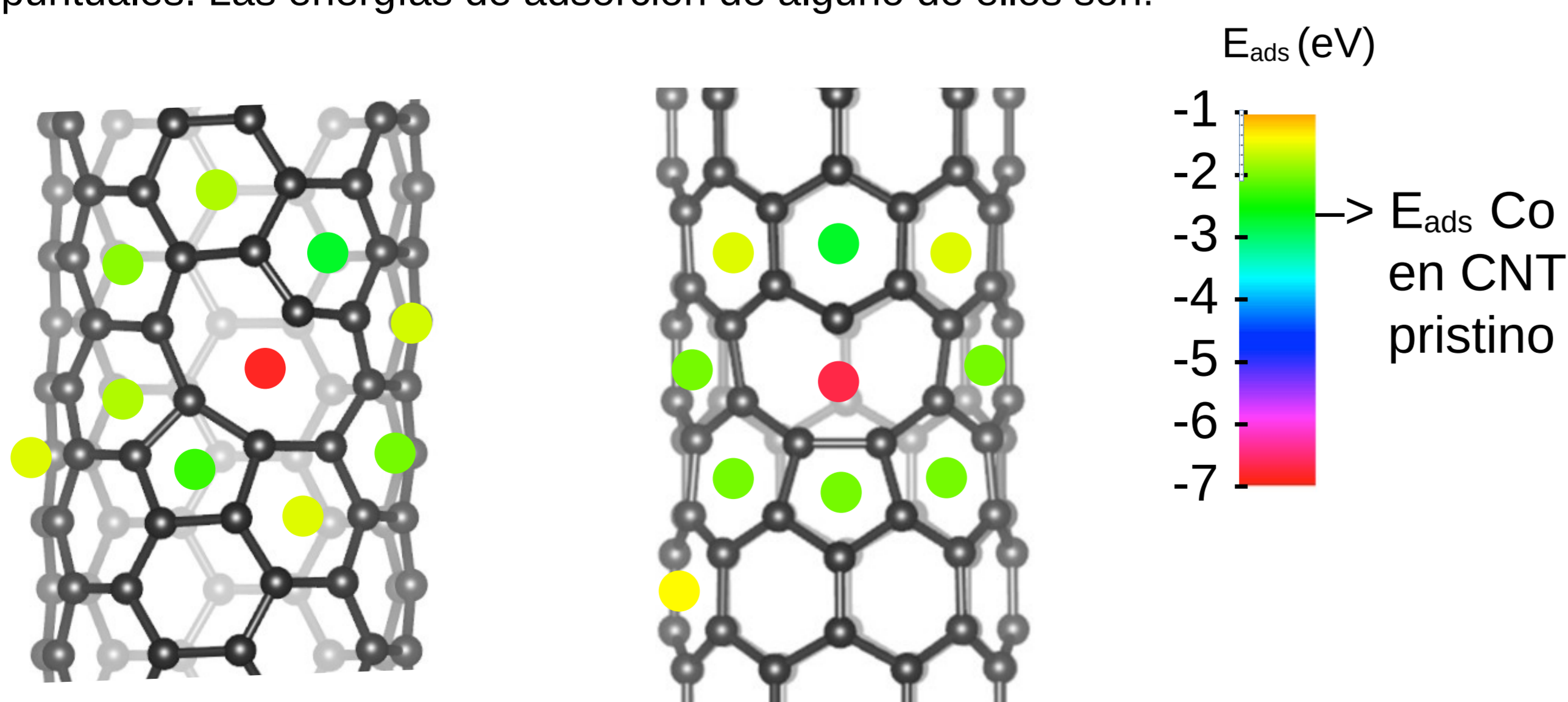
Zigzag (8,0)



ZIGZAG			
	E_{ads} (eV)	Magnetización Total (μ_B)	Carga de Bader de TM (e)
Co	-6.63	0	-0.4
Fe	-6.41	0	+0.7

Estabilidad de adsorción de Co

- Se analizó la adsorción de Co en diferentes sitios de los CNT que presentan defectos puntuales. Las energías de adsorción de alguno de ellos son:



AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen a la Facultad de Ingeniería Química (FIQ-UNL) y al financiamiento del CAI+D 2020 50620190100063LI, PICT-2017-1342, PICT-2019-2019-03392, del CONICET y de la UNL.

CONCLUSIONES

- Nuestros resultados muestran que la adsorción con un átomo de Co en los distintos sistemas defectuosos es energéticamente favorable.
- Se nota claramente una preferencia del Co a enlazarse en el sitio que presenta un anillo de 9C cerrándose y conformando una estructura dopada similar a la del pristino. La preferencia de adsorción del Co a este sitio al conformar una estructura muy estable, en vez de la adsorción en una pared lisa o en cualquier otro sitio adyacente demuestra la alta reactividad de dicho sitio.
- La inserción del Co a su vez produce modificaciones en las propiedades del sistema híbrido respecto a los sistemas aislados, que no parecen ser dependientes de la quiralidad del nanotubo.
- Al comparar nuestros resultados con aquellos CNT modificados con Fe, se evidencian algunos cambios en sus propiedades electrónicas y magnéticas. Sin embargo, al comparar las estructuras finales dopadas poco cambio es observado en la geometrías.
- Se plantea continuar este trabajo con el análisis de adsorción/reactividad de moléculas sencillas en la cara externa de los CNT dopados, de manera de analizar su potencial capacidad como electrocatalizador para celdas de combustible.