

Begeleider Servaas Lips	Promotoren Maarten Sabbe, Vladimir Galvita	Funding BOF
-----------------------------------	--	-----------------------

Microkinetisch modelleren van CO₂-methanatie over nickel

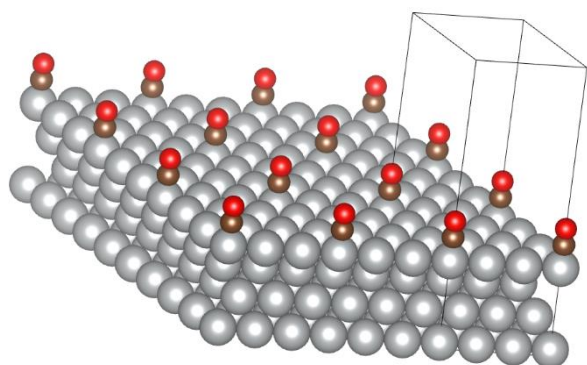
Trefwoorden: heterogene katalyse, DFT, CO₂-methanatie, microkinetisch model

Probleemstelling

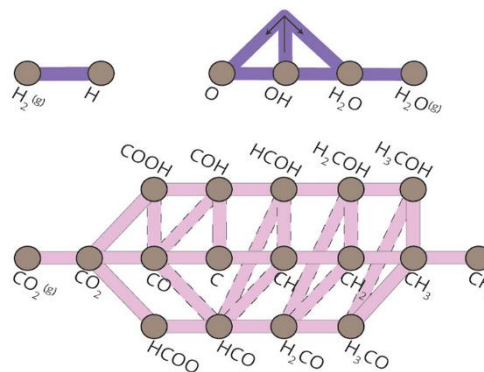
In het onderzoek naar heterogene katalyse spelen DFT-berekeningen een steeds prominentere rol. Met behulp van DFT (*Density Functional Theory*) kan de elektronische structuur van een katalysator beschreven worden en kunnen de interacties tussen het katalysatoroppervlak en de reactieve moleculen op atomair niveau gemodelleerd worden (zie Figuur 1). Dit stelt ons in staat om beter te begrijpen welke reactiemechanismes plaats vinden op dit oppervlak.

Microkinetische modellering is een methode waarmee DFT-berekeningen kunnen worden vertaald naar realistische, experimenteel relevante informatie. Terwijl DFT inzicht geeft in de energieën van adsorptie, transitietoestanden en activeringsenergieën op atomair niveau, maakt microkinetische modellering het mogelijk om deze gegevens om te zetten in voorspellingen van reactiesnelheden, conversie en selectiviteit onder realistische reactietemperaturen en -drukken. Dit gebeurt door een netwerk van elementaire reactiestappen op te stellen (zie Figuur 2). Op deze manier helpt microkinetische modellering bij het begrijpen van de invloed van katalysatormaterialen op reactiemechanismen, wat essentieel is voor het ontwerp van efficiëntere katalysatoren voor CO₂-methanatie en andere chemische processen.

Om DFT-berekeningen uit te voeren zijn verschillende softwarepakketten voorhanden, in dit onderzoek wordt met de VASP (Vienna Ab initio Software Package)-software gewerkt. Het doorrekenen van het opgestelde microkinetisch model wordt gedaan met behulp van het MKMCXX softwarepakket. Om de nodige inzichten te verkrijgen in deze berekeningen wordt initieel een intensieve samenwerking tussen begeleider en student voorzien. De berekeningen worden uitgevoerd op de HPC (High Performance Computing)-infrastructuur van de UGent. Om met deze infrastructuur te werken is een basiskennis van het Linux besturingssysteem vereist. Ervaring hiermee is dus een voordeel maar geen vereiste.



Figuur 1: Ni(111)-oppervlak met 1/9 ML CO



Figuur 2: Reactienetwerk CO₂-methanatie over Ni (Sterk et al. JACS Au, 2022)

Doelstelling

Dit project heeft als doel om de kloof tussen DFT-berekeningen en experimentele katalyse te overbruggen door middel van microkinetische modellering. Specifiek worden de volgende doelstellingen nagestreefd:

1. Uitbreiding van een bestaande dataset van geoptimaliseerde adsorptiegeometrieën en energieën door middel van DFT-berekeningen met VASP.
2. Bepalen van transitietoestanden en activeringsenergieën voor reactiestappen in CO₂-methanatie via *Climbing Image Nudged Elastic Band* (CI-NEB) berekeningen.
3. Doorrekening van een microkinetisch model met behulp van MKMCXX-software om reactiesnelheden, conversie en selectiviteit te voorspellen.
4. Inzicht verkrijgen in de invloed van katalysatormaterialen op reactiemechanismen met als doel het ontwerp van efficiëntere Ni-gebaseerde katalysatoren voor CO₂-methanatie te ondersteunen.