

Resumo

No presente trabalho foi realizado um estudo teórico da adsorção do radical hidroxilo em superfícies de ouro, tendo em vista a compreensão futura do mecanismo da reacção de oxidação catalítica da α,β -glucose em superfícies R,S-ouro {321}. De facto, é bem sabido que a oxidação de moléculas orgânicas nas superfícies de ouro é precedida pela adsorção de OH que activa a superfície metálica catalisando a oxidação. A importância desta reacção de oxidação reside, por exemplo, na sua aplicação em pilhas de ouro/oxigénio para pacemakers e corações artificiais.

Os locais preferenciais de adsorção do radical OH nas três superfícies simples de ouro – Au(100), Au(110) e Au(111) – estudaram-se com base na teoria do funcional de densidade. Nos modelos usaram-se agregados para representar a superfície metálica, enquanto que a geometria do radical OH é a obtida experimentalmente. Para a análise dos resultados (re)escreveram-se alguns scripts em linguagem awk.

Dos resultados, pode-se concluir que o radical hidroxilo adsorve quimicamente em todos os sítios possíveis de adsorção das três superfícies e que a situação com energética mais favorável corresponde à adsorção no site shortbridge da superfície Au(110). Para uma melhor compreensão destes resultados, procedeu-se igualmente a uma análise detalhada da densidade de estados electrónicos do radical OH adsorvido nos sites preferenciais em cada superfície, bem como da população de sobreposição entre orbitais.

Abstract

This work reports a theoretical study of the adsorption of the OH radical in gold surfaces, intending a future understanding of the mechanism of the catalytic oxidation of α,β -glucose in R,S-gold {321} surfaces. In fact, it is well known that the oxidation of organic molecules on gold surfaces is preceded by the adsorption of OH that catalyses the oxidation activating the metallic surface. The importance of such oxidation reaction stems from its application on pacemakers and artificial hearts gold/oxygen cells.

The preferred adsorption sites of OH over the three elemental gold surfaces – Au(100), Au(110) and Au(111) – have been studied using density functional theory. Cluster models are employed to represent the surfaces, while for radical OH the experimental geometry is used. Several awk scripts have been (re)written to analyze the results.

From the attained results, it became evident that radical OH is chemisorbed in all possible adsorption sites of the three surfaces, and the shortbridge site on the Au(110) surface is the most energetic preferred. For a better understanding of the results, the density of states and

orbital overlap population of OH adsorbed on the most preferential sites in each surface have also been analyzed in detail.