

# NGHIÊN CỨU CẤU TRÚC, ĐỘ BỀN VÀ KHẢ NĂNG HẤP PHỤ TRÊN GRAPHITIC CARBON NITRIDE ( $g-C_3N_4$ ) CỦA CLUSTER NICKEL NHỎ BẰNG PHƯƠNG PHÁP PHIÊM HÀM MẬT ĐỘ

Phạm Thị Bé<sup>1</sup>

Ngày nhận bài: 30/3/2022; Ngày phản biện thông qua: 28/7/2022; Ngày duyệt đăng: 01/8/2022

## TÓM TẮT

Trong những năm gần đây, cluster kim loại chuyển tiếp ngày càng khẳng định được vị thế của mình trong lĩnh vực khoa học và kỹ thuật. Trong các cluster của kim loại chuyển tiếp, cluster nhỏ của nickel rất được quan tâm nghiên cứu cả về lý thuyết và thực nghiệm. Graphitic carbon nitride ( $g-C_3N_4$ ) ngày càng trở nên quan trọng do những dự đoán lý thuyết về các đặc tính và ứng dụng đầy hứa hẹn của chúng. Bài báo này nghiên cứu cấu trúc hình học bền vững nhất của các cluster  $Ni_n$  ( $n = 2-5$ ) và khả năng hấp phụ của các cluster này trên  $g-C_3N_4$  bằng phương pháp phiếm hàm mật độ liên kết chặt GFN2-xTB. Kết quả đã xác định được cấu trúc hình học ổn định của các cluster  $Ni_n$  ( $n = 2-5$ ) ứng với một số trạng thái spin xác định (singlet đối với cluster  $Ni_2$ ,  $Ni_3$ ,  $Ni_4$  và quintet đối với cluster  $Ni_5$ ). Sự hấp phụ của các cluster nickel nhỏ trên  $g-C_3N_4$  đều có bản chất là hấp phụ hóa học. Các hệ cluster  $Ni/g-C_3N_4$  được dự đoán là chất hấp phụ tốt đối với các chất ô nhiễm hữu cơ bền (persistent organic pollutants: POPs), góp phần giải quyết vấn đề ô nhiễm môi trường gây ra bởi POPs.

**Từ khóa:** cluster nickel,  $g-C_3N_4$ , hấp phụ, GFN2-xTB.

## 1. MỞ ĐẦU

Trong 15 năm gần đây đã có nhiều công bố cho thấy tập hợp các nguyên tử theo dạng hình học ở một trạng thái electron xác định có những tính chất hóa học tương đồng với các nguyên tử trong Bảng tuần hoàn, và chúng được gọi là siêu nguyên tử “superatoms” hay cluster (một tập hợp có từ một vài đến hàng ngàn nguyên tử ở kích thước nm hoặc nhỏ hơn với tính chất vật lý và hóa học khác biệt) (Veldeman, 2007). Thách thức lớn được đặt ra là làm thế nào xây dựng các quy tắc có tính định hướng để thiết kế những cluster bền với thuộc tính vật lý, hóa học xác định trước, và sử dụng để tạo nên các vật liệu có tính năng đặc biệt, ứng dụng rộng rãi trong đời sống, giải quyết các vấn đề như ô nhiễm môi trường, cải tạo môi trường, ...

Trong các cluster thì cluster kim loại chuyển tiếp Cu, Ni, Au, Ag ... được tập trung nghiên cứu bởi các kim loại này là phổ biến và có phân lớp d chưa bão hòa. Những electron ở orbital d chưa bão hòa đóng vai trò quan trọng trong quá trình hình thành liên kết hóa học và vì thế nó được dự đoán sẽ tạo ra những đặc tính khác biệt đối với các cluster. Trong các cluster kim loại chuyển tiếp, cluster Ni rất được quan tâm nghiên cứu cả về lý thuyết và thực nghiệm (Goel and Masunov, 2012; Michelini et al., 1999; Parks et al., 1991; Parks et al., 1994).

Graphitic carbon nitride ( $g-C_3N_4$ ) đang trở nên ngày càng quan trọng do những dự đoán lý thuyết về tính chất khác thường của chúng và các ứng

dụng đầy hứa hẹn khác nhau, từ xúc tác quang, chất xúc tác dị thể, đến các chất nền, chất hấp phụ.  $g-C_3N_4$  có năng lượng vùng cấm nhỏ, khoảng 2,7 eV (Wen et al., 2017). Tuy nhiên ở dạng nguyên chất,  $g-C_3N_4$  có nhược điểm là dễ tái tổ hợp electron và lỗ trống quang sinh, dẫn đến hiệu suất xúc tác kém (Lan et al., 2014). Do đó, đã có nhiều nghiên cứu biến tính bề mặt  $g-C_3N_4$  bằng kim loại, cluster kim loại ... để cải thiện nhược điểm này.

Trên thế giới đã có một số nghiên cứu đặt cluster Ni pha tạp lên một số chất hấp phụ như Graphene, Graphitic carbon nitride ( $g-C_3N_4$ ) (Cheng et al., 2020; Fang et al., 2018; Gao et al., 2019) nhằm mục đích hấp phụ khí CO, NO, tăng hiệu quả xúc tác quang của  $g-C_3N_4$  trong phản ứng khử  $CO_2$  ... Với mong muốn tạo ra một hệ cluster  $Ni/g-C_3N_4$  có thể là một chất hấp phụ tốt đối với các chất ô nhiễm hữu cơ bền (persistent organic pollutants: POPs), góp phần giải quyết vấn đề ô nhiễm môi trường gây ra bởi POPs. Bài báo này nghiên cứu lý thuyết các cấu trúc, độ bền và khả năng hấp phụ trên Graphitic carbon nitride ( $g-C_3N_4$ ) của các cluster  $Ni_n$  ( $n=2-5$ ).

## 2. NỘI DUNG VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

### 2.1. Mô hình nghiên cứu

- Cluster  $Ni_n$  ( $n = 2-5$ ) có cấu trúc hình học được trình bày trong hình 1. Trong đó cluster  $Ni_4$  có 4 đồng phân:  $Ni_4(s)$  có cấu trúc vuông phẳng,  $Ni_4(t1)$  cấu trúc tứ diện,  $Ni_4(t2)$  cấu trúc tứ diện bị bóp méo,  $Ni_4(r)$  có cấu trúc hình thoi.

<sup>1</sup>Khoa Khoa học Tự nhiên & Công nghệ, Trường Đại học Tây Nguyên;

Tác giả liên hệ: Phạm Thị Bé; ĐT: 0978980047; Email: ptbe@ttn.edu.vn.