

# SO<sub>2</sub>-oksidasiemeganisme op 'n Pt-oppervlak: 'n Digtheidsfunksionaalondersoek

**Outeurs:**

Theunis Nel  
CGCE van Sittert  
MJ Ungerer

**Affiliatie:**

Laboratorium vir Toegepaste  
Molekuulmodellering,  
Chemiese Hulpbron-  
veredeling, Noordwes-  
Universiteit,  
Privaatsak X6001,  
Potchefstroom, 2520,  
Suid-Afrika

**Korresponderende outeur:**

Cornie van Sittert  
E-pos:  
Cornie.VanSittert@nwu.ac.za

**Hoe om hierdie artikel aan  
te haal:**

Theunis Nel, CGCE van  
Sittert, MJ Ungerer,  
SO<sub>2</sub>-oksidasiemeganisme  
op 'n Pt-oppervlak:  
'n Digtheidsfunksio-  
naalondersoek, *Suid-  
Afrikaanse Tydskrif vir  
Natuurwetenskap en  
Tegnologie* 39(1) (2020).  
[https://doi.org/10.36303/  
SATNT.2020.39.1.825](https://doi.org/10.36303/SATNT.2020.39.1.825)

**Kopiereg:**

© 2020. Authors.  
Licensee: *Die Suid-  
Afrikaanse Akademie vir  
Wetenskap en Kuns*.  
Hierdie werk is onder  
die Creative Commons  
Attribution License  
geïllustreer.

**SO<sub>2</sub>-oxidation mechanism on a Pt surface: A density functional investigation:**

Alternative energy sources obtained through the hybrid-sulphur (HyS) cycle are crucial to meet sustainable energy objectives. Despite several studies concerning the HyS cycle, uncertainties over the fundamental reaction mechanism of SO<sub>2</sub> on Pt remain. This study used DFT (GGA) to investigate the reaction mechanism and parameters in the HyS cycle.

Die druk op natuurlike hulpbronne word aansienlik verhoog deur die wêreld se toenemende energiebehoefte. Natuurlike hulpbronne soos fossielbrandstowwe is beperk en dit dra verder tot lugbesoedeling by. Dit noodsaak die omskakeling na alternatiewe en omgewingsvriendelike energiebronne, soos byvoorbeeld waterstof. Waterstof kan onder andere met behulp van die hibriedswawelsiklus (HS-siklus) vervaardig word. Tydens die HS-siklus word swawelsuur (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) termies na water (H<sub>2</sub>O) en swaweldioksied (SO<sub>2</sub>) omgeskakel. Die SO<sub>2</sub> en H<sub>2</sub>O reageer elektrolities op 'n Pt-anode om waterstofgas (H<sub>2</sub>) en H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> te vorm (Kriek et al., 2013).

Alhoewel verskeie eksperimentele ondersoek rakende die SO<sub>2</sub>-adsorpsie en SO<sub>2</sub>-oksidasiemeganisme op Pt uitgevoer is, bestaan daar steeds onduidelikhede (Happel et al., 2009). Wat wel bekend is, is dat die adsorpsie van SO<sub>2</sub> op die Pt-anode-oppervlak tot 'n sterk afname in die beskikbaarheid van elektrone vir die H<sub>2</sub>O-splytingsreaksie lei (Happel et al., 2009). Daar is ook aangedui dat mede-geadsorbeerde spesies, soos byvoorbeeld O<sub>2</sub> en H<sub>2</sub>O, die SO<sub>2</sub>-adsorpsie en -oksidasiemeganisme beïnvloed (Wilson et al., 1997). Die PtSO<sub>2</sub>-adsorpsiestelsels, in die teenwoordigheid en afwesigheid van mede-geadsorbeerde molekules soos H<sub>2</sub>O en O<sub>2</sub>, kan selektief met behulp van molekuulmodellering ondersoek word.

In hierdie ondersoek van die reaksiemeganisme en -parameters wat in die HS-siklus voorkom, is die veralgemeende gradiëntbenadering (GGA) digtheidsfunksionaalteorieberekening (DFT), binne die Vienna ab-initio simulasiëprogram (VASP) gebruik.

Om die invloed van die Pt-katalisator op die meganisme te bepaal, is die molekules SO<sub>2</sub> en H<sub>2</sub>O eers in 'n periodiese gasfase geoptimeer en die energieprofiel vir die gasfase-reaksie saamgestel. 'n Pt-oppervlak is geometries geoptimeer en verskillende adsorpsie-oriëntasies en -posisies van elke gasmolekuul is bestudeer. Daar is bevind dat SO<sub>2</sub> hoofsaaklik in die vlakgesentreerde-kubies(vgk)-posisie adsorbeer. Die adsorpsie-geometrie met die laagste energie is vir elke gasfase gebruik om die energieprofiel vir die SO<sub>2</sub>-oksidasiereaksie op Pt, saam te stel. Bogenoemde energieprofiel is vergelyk.

Verder is waargeneem dat dié SO<sub>2</sub>-adsorpsiemodus 'n invloed op die elektroniese energie van Pt het, wat die elektronbeweging in die HS-siklus beïnvloed. Hierdie adsorpsiemodus sal verder gebruik word om die oksidasie-eienskappe van SO<sub>2</sub> op Pt te ondersoek. Die elektroniese invloed van geadsorbeerde SO<sub>2</sub> op die Pt-oppervlak sal ook verder met behulp van toestanddigtheidsanalises ondersoek word. Die invloed wat die adsorpsie-volgorde van verskillende molekules en ione op die adsorpsie-eienskappe en tussenprodukvorming het, sal ook ondersoek word.

## Verwysings

- Kriek RJ, Van Ravenswaay JP, Potgieter M, et al. 2013. SO<sub>2</sub> - An indirect source of energy. *Journal of the South African Institute of Mining and Metallurgy* 113, 593-604.  
Happel M, Kylhammar L, Carlsson PA, et al. 2009. SO<sub>2</sub> storage and release kinetics for ceria-supported platinum. *Applied Catalysis B Environmental* 91, 679-682.  
Wilson K, Hardacre C, Baddeley CJ, et al. 1997. A spectroscopic study of the chemistry and reactivity of SO<sub>2</sub> on Pt{111}: Reactions with O<sub>2</sub>, CO and C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>. *Surface Science* 372, 279-288.

**Nota:** 'n Seleksie van referaatopsommings: Studentesimposium in die Natuurwetenskappe, 31 Oktober – 1 November 2019, Universiteit van die Vrystaat. Reëlingskomitee: Prof Rudi Pretorius (Departement Geografie, Universiteit van Suid-Afrika); Dr Hertzog Bisset (Suid-Afrikaanse Kernenergie-korporasie); Dr Ernie Langner (Departement Chemie, Universiteit van die Vrystaat) en Dr Wynand Nel (Departement Rekenaarwetenskap en Informatika, Universiteit van die Vrystaat).