

RE SUMEN

En esta Tesis se han estudiado en forma teórica diversos procesos de adsorción de hidrógeno sobre nanomateriales de carbono decorados con paladio. En primer lugar se utilizó un modelo sencillo de decoración basado en átomos individuales de paladio, y a continuación se analizó la adsorción de dímeros de paladio, de modo de comprender la relación entre el fenómeno de nucleación de paladio y el almacenamiento de hidrógeno en grafeno y nanotubos de carbono. En particular se consideraron diferentes sitios de adsorción sobre la superficie de carbono, al igual que varias estructuras de coordinación en las que el hidrógeno se encuentra tanto en forma molecular como disociada. En todos los casos se computaron las energías y se describieron los enlaces y la estructura electrónica para los diferentes sistemas hidrógeno—paladio soportados. Estos cálculos se llevaron a nivel mecánico cuántico, mediante uso tanto de la teoría de primeros principios del Funcional de la Densidad (DFT) como del método semiempírico de Superposición Atómica y Deslocalización Electrónica (ASED), implementados respectivamente con los códigos SIESTA y YAeHMOP. Nuestros resultados se compararon con otros cálculos teóricos y con la información experimental disponible. Los resultados obtenidos permiten describir las principales interacciones I—I—Pd—C durante el fenómeno de adsorción. De esta manera, se detalló el rol de los orbitales *s*, *p* y *d* en el mecanismo de enlace para todos los adsorbatos y sustratos. El objeto de este estudio es contribuir a la comprensión del fenómeno de incremento de la capacidad de almacenamiento de hidrógeno observado en materiales de carbono decorados con paladio.

ABSTRACT

This Thesis presents a theoretical study of hydrogen adsorption processes on palladium decorated carbon nanomaterials. First, we used a simple decoration model involving single palladium atoms, and then we analyzed the adsorption of palladium dimers, in order to shed more light on the relation between palladium clustering and hydrogen storage in graphene and carbon nanotubes. We considered different adsorption sites on the carbon surface, as well as several molecular and dissociative hydrogen coordination structures.

In all cases we computed the energy, bonding and electronic structure for the different supported hydrogen—palladium systems. These calculations were performed at quantum mechanical level, using both the *ab initio* Density Functional Theory (DFT) as the semiempirical Atomic Superposition and Electronic Delocalization (ASED) method, implemented respectively by means of SIESTA and YAeHMOP codes. Our results were compared with other theoretical calculations and available experimental data. The obtained results allow us to describe the main H—Pd—C interactions during the adsorption scheme. In this way, the role of *s*, *p* and *d* orbitals on the bonding mechanism for all adsorbates and substrates was addressed. The aim of this study is to contribute to the understanding of the hydrogen uptake of carbon materials decorated with palladium.