

## 论文

### 在Rh(111)面上NO+CO反应机理的密度泛函理论研究

田凯<sup>1,2</sup>, 涂学炎<sup>1</sup>, 戴树珊<sup>1</sup>

1. 云南大学化学科学与工程学院, 昆明 650091; 2. 云南民族大学化学与生物技术学院, 昆明 650031

#### 摘要:

应用基于密度泛函理论赝势平面波方法的CASTEP程序, 对Rh(111)上的NO+CO反应机理进行研究. 对于反应中的各个关键步骤: NO离解、CO<sub>2</sub>生成、通过N<sub>2</sub>O离解生成N<sub>2</sub>以及通过N+N反应生成N<sub>2</sub>都进行了详细讨论, 计算得到各反应步骤的过渡态以及活化能, 从而确立了各步骤的反应路径.

关键词: 密度泛函理论 NO+CO反应 Rh(111)表面 表面反应机理 过渡态

### Density Functional Theory Study of NO+CO Reaction Mechanism on the Rh(111) Surface

TIAN Kai<sup>1,2</sup>, TU Xue-Yan<sup>1\*</sup>, DAI Shu-Shan<sup>1</sup>

1. School of Chemical Science and Technology, Yunnan University, Kunming 650091, China; 2. School of Chemistry and Biotechnology, Yunnan Nationalities University, Kunming 650031, China

#### Abstract:

The NO+CO reaction mechanism on the Rh(111) surface were studied by the plane-wave density functional theory(DFT) with CASTEP program. The main elementary steps are taken into account, namely: NO dissociation, CO<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> production, through the formation of the N<sub>2</sub>O intermediary species, and the classical N+N recombination. The transition states were confirmed for the main elementary steps by successful transition state search, and the activation energy were calculated, respectively.

Keywords: Density functional theory NO+CO reaction Rh(111) surface Surface reaction mechanism Transition state

收稿日期 2008-09-28 修回日期 1900-01-01 网络版发布日期

DOI:

基金项目:

通讯作者: 涂学炎

作者简介:

#### 参考文献:

- Taylor K. C.. Catal. Rev. Sci. Eng.[J], 1993, 35(4): 457—481  
Shelef M., Graham G. W.. Catal. Rev. Sci. Eng.[J], 1994, 36(3): 433—457  
Farrauto R. J., Heck R. M.. Catal. Today[J], 2000, 55(1/2): 179—187  
Veser G., Imbihl R.. J. Chem. Phys.[J], 1994, 100(11): 8483—8491  
Zhdanov V. P., Kasemo B.. Surf. Sci. Rep.[J], 1997, 29(2): 35—90  
Kortluke O., von Niessen W.. Surf. Sci.[J], 1998, 401(2): 185—198  
Granger P., Delannoy L., Lecomte J. J., et al.. J. Catal.[J], 2002, 207(2): 202—212  
Belton D. N., DiMaggio C. L., Schmiege S. J., et al.. J. Catal.[J], 1995, 157(2): 559—568

## 扩展功能

### 本文信息

Supporting info

PDF(356KB)

[HTML全文](OKB)

参考文献[PDF]

参考文献

### 服务与反馈

把本文推荐给朋友

加入我的书架

加入引用管理器

引用本文

Email Alert

文章反馈

浏览反馈信息

### 本文关键词相关文章

▶ 密度泛函理论

▶ NO+CO反应

▶ Rh(111)表面

▶ 表面反应机理

▶ 过渡态

### 本文作者相关文章

▶ 田凯

▶ 戴树珊

▶ 田凯

▶ 戴树珊

### PubMed

Article by

Article by

Article by

Article by

- Zaera F., Gopinath C. S.. Chem. Phys. Lett.[J], 2000, 332(3/4): 209—214
- Gopinath C. S., Zaera F.. J. Phys. Chem. B[J], 2000, 104(14): 3194—3203
- Bustos V., Gopinath C. S., Unac R., et al.. J. Chem. Phys.[J], 2001, 114(24): 10927—10931
- Zaera F., Gopinath C. S.. Phys. Chem. Chem. Phys.[J], 2003, 5(3): 646—654
- Alas S. J., Vicente L.. J. Mol. Catal. A[J], 2008, 281(1/2): 24—34
- Alas S. J., Zgrablich G.. J. Phys. Chem. B[J], 2006, 110(19): 9499—9510
- Neurock M., Wasileski S. A., Mei D.. Chem. Eng. Sci.[J], 2004, 59(22/23): 4703—4714
- Chambers D. C., Angove D. E., Cant N. W.. J. Catal.[J], 2001, 204(1): 11—22
- Granger P., Malfoy P., Esteves P., et al.. J. Catal.[J], 1999, 187(2): 321—331
- Silva M. A., Schmal M.. Catal. Today.[J], 2003, 85(1): 31—37
- Cho B. K., Shanks B. H., Bailey J. E.. J. Catal.[J], 1989, 115(2): 486—499
- Taylor K. C., Schlatter J. C.. J. Catal.[J], 1980, 63(1): 53—71
- Makeeva A. G., Kevrekidis L. G.. Chem. Eng. Sci.[J], 2004, 59(8/9): 1733—1743
- De Sarkar A., Khanra B. C.. J. Mol. Catal. A[J], 2005, 229(1/2): 25—29
- Bogicevic A., Hass K. C.. Surf. Sci.[J], 2002, 506(1/2): L237—L242
- Mantri D., Aghalayam P.. Catal. Today[J], 2007, 119(1—4): 88—93
- Alas S. J., Rojas F., Kornhauser I., et al.. J. Mol. Catal. A[J], 2006, 244(1/2): 183—192
- Ahmad W., Albano E. V.. Appl. Surf. Sci.[J], 2008, 254(8): 2436—2440
- Olsson L., Zhdanov V. P., Kasemo B.. Surf. Sci.[J], 2003, 529(3): 338—348
- Luque J.J., Gomez A., Cordoba A.. Physica. A[J], 2004, 331(3/4): 505—516
- Loffreda D., Simon D., Sautet P.. J. Chem. Phys.[J], 1998, 108(15): 6447—6457
- [30]TU Xue-Yan(涂学炎), TIAN Kai(田凯), DAI Shu-Shan(戴树珊). Chem. J. Chinese Universities(高等学校化学学报)[J], 2005, 26(12): 2354—2356
- Tian K., Tu X. Y., Dai S. S.. Surf. Sci.[J], 2007, 601(15): 3186—3195
- [32]Loffreda D., Delbecq F., Simon D., et al.. J. Chem. Phys.[J], 2001, 115(17): 8101—8111
- [33]Inderwildi O. R., Lebiez D., Deutschmann O., et al.. J. Chem. Phys.[J], 2005, 122(3): 034710(1—8)
- [34]Loffreda D., Simon D., Sautet P.. J. Catal.[J], 2003, 213(2): 211—225
- [35]Inderwildi O. R., Lebiez D., Deutschmann O., et al.. Chem. Phys. Chem.[J], 2005, 6(12): 2513—2521
- [36]van Bavel A. P., Hermse C. G. M., Hopstaken M. J. P., et al.. Phys. Chem. Chem. Phys.[J], 2004, 6(8): 1830—1836
- [37]Hermse C. G. M., Frechard F., van Bavel A. P., et al.. J. Chem. Phys.[J], 2003, 118(15): 7081—7089
- [38]Eichler A.. Surf. Sci.[J], 2002, 498(3): 314—320
- [39]Kokalj A., Matsushima T.. J. Chem. Phys.[J], 2005, 122(3): 034708(1—10)
- [40]Ricart J. M., Ample F., Clotet A., et al.. J. Catal.[J], 2005, 232(1): 179—185
- [41]Paul J. F., Perez-Ramirez J., Ample F., et al.. J. Phys. Chem. B[J], 2004, 108(46): 17921—17927
- [42]Liu Z. P., Hu P.. J. Chem. Phys.[J], 2001, 114(19): 8244—8247
- [43]Zhang A. H., Zhu J., Duan W. H.. J. Chem. Phys.[J], 2006, 124(23): 234703(1—4)
- [44]Liu Z. P., Hu P.. J. Am. Chem. Soc.[J], 2003, 125(7): 1958—1967
- [45]Payne M. C., Teter M. P., Allan D. C., et al.. Rev. Mod. Phys.[J], 1992, 64(4): 1045—1097
- [46]Segall M. D., Lindan P. J. D., Probert M. J., et al.. J. Phys. Cond. Matter.[J], 2002, 14(11): 2717—2744
- [47]Perdew J. P., Chevary J. A., Vosko S. H., et al.. Phys. Rev. B[J], 1992, 46(11): 6671—6687
- [48]Govind N., Petersen M., Fitzgerald G., et al.. Comput. Mater. Sci.[J], 2003, 28(2): 250—258

#### 本刊中的类似文章

1. 孔治国,任爱民,封继康,甘霖锋,孙家锺. 烯丙基自由基( $C_3H_5$ )与氧气( $O_2$ )反应机理的理论计算[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(10): 1932-1936
2. 朱元强,郭勇,谢代前. 2-(2-甲基烯丙基)-3-(3-甲基-1,2-丁二烯基)环己-2-烯酮重排生成八元环化合物反应机理的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(2): 385-388
3. 申勇立,曹映玉,杨恩翠,郝金库. 异戊烯与甲醇成醚反应机理的量子化学研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(8): 1535-1539
4. 王鹏,王大喜,高金森,董坤,徐春明,刘靖疆. 三氯化铝烷基氯化咪唑盐结构和红外光谱的模拟计算[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(8): 1505-1508
5. 陈建成,邢小鹏,唐紫超,高振. 二元合金团簇 $CoGe_n^-$  ( $n=1\sim 12$ )的结构和稳定性[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(3): 535-538
6. 温斌;魏娜然;马红军;赵纪军;李廷举. 新金刚石稳定性及晶体结构模型的研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(7): 1332-1335
7. 李会学,萧泰. 3-苯基-6-芳基-1,2,4-三唑并[3,4-b]-1,3,4-噻二唑的电子结构和光谱性质的含时密度泛函理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(4): 747-750
8. 金莲姬,张珉,苏忠民,史丽丽,赵亮. 单壁碳纳米管内包含有机小分子(乙炔、乙烯和乙烷)结构的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(4): 755-759
9. 李思殿,任光明,苗常青,李栋东. 含有平面六配位碳的第二及第三过渡系金属夹心配合物密度泛函理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(1): 129-131
10. 曲雯雯,谭宏伟,刘若庄,陈光巨. 侧链间氢键的协同效应对环状多肽自组装的影响[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(2): 307-311

11. 赵丽娜, 钟儒刚, 戴鞞圆.  $\beta$ -甲基亚硝基派嗪致癌剂第二亲电中心邻基参与作用的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(12): 2386-2389
12. 石绍庆, 杨国春, 窦卓, 苏忠民.  $[M_6O_7(C_2F_5N_4H_{18})]^{2-}$  ( $M=W, Mo; n=1, 2; m=17, 18$ )的二阶非线性光学性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(12): 2398-2401
13. 李吉来, 杭焯超, 耿彩云, 黄旭日, 李方实, 孙家锺. 磺酰胺类化合物除草活性的QSAR研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(3): 539-542
14. 沈福刚, 段文勇, 孙宏伟, 陈兰, 陈沛全, 赖城明, 李正名. 吡啶衍生物与碘甲烷反应的密度泛函理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(11): 2175-2178
15. 李建辉, 夏文生, 万惠霖.  $Nb^+$ 离子活化甲烷脱氢反应机理密度泛函(DFT)研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(12): 2357-2361
16. 耿彩云, 李吉来, 孙广领, 黄旭日, 孙家锺. 金属 $Ir_4$  Cluster催化丙烯加氢反应势能面的密度泛函理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(12): 2372-2375
17. 孙仁安, 张旭, 韩克利.  $SiHCl_3-H_2$ 气相外延生长Si单晶反应机理的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(9): 1695-1698
18. 徐定国, 鄢国森. L1  $\beta$ -Lactamase催化反应机理研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2453-2456
19. 苏钎, 朱东霞, 仇永清, 陈徽, 王悦. 含水杨醛缩苯胺双Schiff碱和吡啶配体的Zn(II)配合物的电子结构和二阶非线性光学性质[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(7): 1361-1364
20. 苏钎, 朱东霞, 仇永清, 陈徽, 王悦. 含水杨醛缩苯胺双Schiff碱和吡啶配体的Zn(II)配合物的电子结构和二阶非线性光学性质[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(7): 1361-1364
21. 李岩, 封继康, 任爱民, 杨丽. 苄与苯并硒化二唑共聚物的电子结构和光谱性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(8): 1561-1565
22. 申勇立, 郝金库, 曹映玉, 杨鞞.  $SUP >$ . 白藜芦醇清理羟基自由基夺氢机理的量子化学研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(9): 1743-1746
23. 赵树魁, 孙秀云, 方亮, 朱玉兰. 双核金属茂合物 $Zn_2(\eta^5-E_5)_2$  ( $E=N, P, As, Sb$ )电子结构和三阶非线性光学性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(9): 1731-1734
24. 熊杰明, 龚良发, 李前树. 杂硼原子簇 $B_6X^-$  ( $X=N, P, As, Sb, Bi$ )稳定性和芳香性研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(10): 1968-1971
25. 杨静, 张绍文, 李前树.  $CH_nF_{4-n}$ 与 $O_3$ 吸氢反应途径和速率常数计算[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(10): 1975-1977
26. 李明霞, 周欣, 潘清江, 张红星, 付宏刚, 孙家锺. 联吡啶钌配合物 $[Ru(Htcterpy)X_3]^{3-}$  ( $X=NCS, CN, Cl$ )的电子结构和光谱性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(12): 2377-2380
27. 王嵩, 于健康, 丁大军, 孙家锺.  $NO+HCCCO$ 反应势能面的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(1): 170-173
28. 王继芬, 封继康. 二苄及其衍生物的结构优化、前线轨道及其性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(1): 177-181
29. 艾纯芝, 孙仁安, 王长生, 马琳, 杨凌. 己烷催化异构化反应中氢溢流机理的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(1): 182-186
30. 丁秀丽, 吴剑鸣, 徐昕. 一些密度泛函方法预测电子亲和势[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(2): 396-398
31. 吕晓洁, 蒋举兴, 任洁, 朱华结. 脂肪族酯基选择性还原模型的建立[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(3): 537-541
32. 王岩, 方德彩, 刘若庄. Lewis碱稳定的硼代苯与亲二烯体的Diels-Alder反应的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(5): 1005-1010
33. 常青, 吴水星, 阚玉和, 杨双阳, 滕云雷, 杨国春, 苏忠民. 硅杂环戊二烯衍生物电子结构与光谱性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(5): 1011-1015
34. 周欣, 孟烜宇, 李明霞, 潘清江, 张红星. 配合物 $[N,N'-二(亚水杨基)-1,2-乙二胺]Pt(II)$ 光谱性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(6): 1239-1242
35. 周中军, 刘慧玲, 黄旭日, 孙家锺. 预测[C,O,S]体系的稳定异构体[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(8): 1641-1643
36. 纪艺琼, 王墨焱, 王兰芬, 包鹏, 刘扬. 稳定直线型硝酮- $O_2^-$ 加合物的构型因素解析[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(9): 1801-1803
37. 陈健, 谭凯, 林梦海, 张乾二. 过渡金属氧化物 $(M_2O_5)^+$  ( $m=1,2; M=V, Nb, Ta$ )与 $C_2H_4$ 气相反应机理的密度泛函研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(9): 1821-1825
38. 夏树伟, 马晓楠, 于良民, 潘纲.  $Zn(II)/\gamma-MnOOH$ 体系化学吸附的密度泛函理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(9): 1804-1809
39. 刘晓东, 于艳波, 仇永清, 孙世玲, 陈徽, 苏忠民, 王荣顺. 十二顶点邻位双取代碳硼烷衍生物二阶NLO性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(9): 1816-1820
40. 范建训, 任爱民, 封继康, 薄冬生. 7-氮杂吡啶衍生物分子基态和激发态性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(6): 1091-1095
41. 裘云锋, 曹泽星. 分子内结构环境对解离能的影响[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2489-2491
42. 王一, 王永, 韩克利. 非血红素配合物 $[FeIV(O)(TMC)(NCMe)]_2+$ 与 $[FeIV(O)(TMCS)]_+$ 的几何结构、电子结构、成键性和反应活性比较[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2469-2473
43. 彭亮, 丁万见, 于建国, 刘若庄. 硫代乙酰胺光化学反应机理的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2462-2468
44. 武光军, 王鑫, 于爱敏, 王贵昌, 杨雅莉, 章福祥, 关乃佳. 含氮ZSM-5分子筛骨架中氮取代位置的密度泛函计算

- [J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2403-2406
45. 魏子章, 王贵昌, 卜显和. 联吡啶Ir(III)配合物电子结构及光谱性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2393-2397
46. 蒋帆, 吴云东. 最短 $\alpha$ -螺旋的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2371-2376
47. 张成华, 薛英, 郭勇, 鄢国森. *N,N*-二(对氟苄基)-*N'*-(2',3'-二脱氧-3'-硫代胞苷)甲脒水解反应的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2354-2359
48. 谭凯, 吕鑫, 林梦海, 张乾二. 正、负和中性TiP10团簇结构与电子性质的密度泛函研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2350-2353
49. 任杰, 王炳武, 陈志达, 徐光宪. 密度泛函理论在分子磁学中的应用——混合价三核锰配合物磁性的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2331-2336
50. 徐文国, 白王军, 卢士香.  $\text{SeH}_n/\text{SeH}_n^-$  ( $n=1\sim 5$ )的结构、热化学及电子亲合能研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(11): 2281-2288
51. 苏钊, 朱东霞, 仇永清, 陈徽, 王悦. 含水杨醛缩苯胺双Schiff碱和吡啶配体的Zn(II)配合物的电子结构和二阶非线性光学性质[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(7): 1361-1364
52. 罗琼, 李前树. 配位不饱和双核钉羰基化合物Ru<sub>2</sub>(CO)<sub>n</sub> ( $n=7,6$ )的DFT计算研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2430-2434
53. 刘莉, 朱荣秀, 张冬菊, 刘成卜. 甲醇协助丙交酯开环聚合反应的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2420-2424
54. 苏钊, 朱东霞, 仇永清, 陈徽, 王悦. 含水杨醛缩苯胺双Schiff碱和吡啶配体的Zn(II)配合物的电子结构和二阶非线性光学性质[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(7): 1361-1364
55. 覃昊, 李欣, 孟祥丽, 强亮生. O<sub>3</sub>分子在CuO(110)面吸附的密度泛函理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(1): 164-169
56. 沈培俊, 丁伟中, 张玉文, 周宇鼎, 杨志彬, 秦国利. BaCo<sub>0.7</sub>Fe<sub>0.2</sub>Nb<sub>0.1</sub>O<sub>3- $\delta$</sub> 膜反应器还原侧表面反应机理[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(1): 152-158
57. 阚玉和, 李强. C<sub>62</sub>及其吡啶衍生物结构与电子光谱的密度泛函理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(1): 174-177
58. 蒋洁, 孟素慈, 马晶. 二聚(2,5-噻吩乙烯撑)基态和激发态的电子结构: 桥基和芳环取代的影响[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(2): 370-376
59. 马海霞, 严彪, 宋纪蓉, 吕兴强, 王连江. DNAZ酰基衍生物的分子结构及量子化学研究[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(2): 377-381
60. 杨玉环, 潘纲, 马骁楠, 陈灏, 张美一, 何广智, 李薇. Zn(II)在TiO<sub>2</sub>表面上的微观吸附模式研究[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(2): 387-390
61. 薛严冰, 唐祯安. CO在SnO<sub>2</sub>(110)面吸附特性的密度泛函研究[J]. 高等学校化学学报, 2009,30(3): 583-587

## 文章评论

序号	时间	反馈人	邮箱	标题	内容
					ugg online ugg boots online buy ugg boots boots sale ugg boots cardy ugg boots l cardy tall ugg ugg boots ugg knightsb