

论文

含氮ZSM-5分子筛骨架中氮取代位置的密度泛函计算

武光军, 王鑫, 于爱敏, 王贵昌, 杨雅莉, 章福祥, 关乃佳

南开大学化学学院材料化学系新催化材料科学研究所, 天津 300071

摘要:

运用Gaussian 98程序包, 采用密度泛函理论B3LYP方法, 基于ZSM-5分子筛的8T模型, 分别通过6-31G, 6-31G(d)和6-311G(d,p)基组计算了ZSM-5分子筛中氮原子取代前后各O原子和各N原子的能量, 从而得到各O原子与各N原子在骨架中的稳定性及其对氮化取代反应的影响. 计算结果表明, N原子在骨架中的稳定性对氮取代反应的影响较大. ZSM-5分子筛晶体结构与B酸位处于同一个四面体的O11位置, 为氮原子的最佳取代位置, 因此氮化后分子筛表面的B酸强度得到较大程度的减弱.

关键词: ZSM-5分子筛 密度泛函理论 氮化 取代

Density Functional Theory Studies on the Substitutional Site of Nitrogen in the Nitrogen-Incorporated ZSM-5 Zeolite

WU Guang-Jun, WANG Xin, YU Ai-Min, WANG Gui-Chang, YANG Ya-Li, ZHANG Fu-Xiang, GUAN Nai-Jia*

Institute of New Catalytic Materials Science, Department of Materials Chemistry, College of Chemistry, Nankai University, Tianjin 300071, China

Abstract:

Density Functional Theory study was performed to predict the nitrogen substitutional site in the framework of nitrogen-incorporated ZSM-5 zeolite. All the calculations were performed on 8T clusters of ZSM-5 by Gaussian 98 program at B3LYP/6-31G, B3LYP/6-31G(d) and B3LYP/6-311G(d,p) levels, respectively. The calculations on energies of O atoms and N atoms show that the stability of N atoms in the framework has bigger effect on the reaction of substitution than the stability of O atoms. The O11 site, which is in the same tetrahedron with Brønsted acid, is the most preferred site for nitrogen substitution in the framework of ZSM-5 zeolite. So the Brønsted acidity on the surface of zeolite after nitridation is decreased.

扩展功能

本文信息

Supporting info

PDF(310KB)

[HTML全文](0KB)

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

▶ ZSM-5分子筛

▶ 密度泛函理论

▶ 氮化

▶ 取代

本文作者相关文章

▶ 武光军

▶ 王鑫

▶ 于爱敏

▶ 王贵昌

▶ 杨雅莉

▶ 章福祥

▶ 关乃佳

▶ 武光军

▶ 王鑫

▶ 于爱敏

▶ 王贵昌

▶ 杨雅莉

▶ 章福祥

▶ 关乃佳

PubMed

Article by

Article by

Article by

Article by

Article by

Article by

Article by

Article by

Article by

Article by

Keywords: ZSM-5 zeolite Density functional theory Nitridation Substitution

收稿日期 2008-10-26 修回日期 1900-01-01 网络版发布日期

DOI:

基金项目:

通讯作者: 关乃佳

作者简介:

参考文献:

- Ernst S., Hartmann M., Sauerbeck S., et al.. Appl. Catal. A[J], 2000, 200: 117—123
- Xiong J., Ding Y., Zhu H., et al.. J. Phys. Chem. B[J], 2003, 107: 1366—1369
- Zhang C., Xu Z., Wan K., et al.. Appl. Catal. A[J], 2004, 258: 55—61
- Guan X., Li N., Wu G., et al.. J. Mol. Catal. A[J], 2006, 248: 220—225
- Guan X., Zhang F., Wu G., et al.. Mater. Lett.[J], 2006, 60: 3141—3144
- Narasimharao K., Hartmann M., Thiel H. H., et al.. Micropor. Mesopor. Mater.[J], 2006, 90: 377—383
- Regli L., Bordiga S., Busco C., et al.. J. Am. Chem. Soc.[J], 2007, 129: 12131—12140
- Cook J. S., Chakraborty K. A., Bell T. A., et al.. J. Phys. Chem.[J], 1993, 97: 6679—6685
- Chatterjee A., Chandra K. A.. J. Mol. Catal. A[J], 1997, 119: 51—56
- Kanougi T., Tsuruya H., Oumi Y., et al.. Appl. Surf. Sci.[J], 1998, 130—132: 561—565
- Yang G., Zhou L., Liu X., et al.. J. Phys. Chem. B[J], 2006, 110: 22295—22297
- Brand V. H., Redondo A., Hay J. P.. J. Mol. Catal. A[J], 1997, 121: 45—62
- Rice J. M., Chakraborty K. A., Bell T. A.. J. Phys. Chem. A[J], 1998, 102: 7498—7504
- Zaragoza P. I., Martínez-Magdan M. J., Santamaria R., et al.. Int. J. Quantum. Chem.[J], 2000, 80: 125—132
- Astala R., Auerbach M. S.. J. Am. Chem. Soc.[J], 2004, 126: 1843—1878
- Lesthaeghe D., Van Speybroeck V., Waroquier M.. J. Am. Chem. Soc.[J], 2004, 126: 9162—9163
- Lesthaeghe D., Van Speybroeck V., Waroquier M.. J. Phys. Chem. B[J], 2005, 109: 7952—7960
- Elanany M., Su B. L., Vercauteren P. D.. J. Mol. Catal. A[J], 2007, 263: 195—199
- Van Koningsveld H., Van Bekkum H., Jansen J. C.. Acta. Crystallogr., Sect. B[J], 1987, 43: 127—132
- Frisch M. J., Trucks G. W., Schlegel H. B., et al.. Gaussian 98, Revision A.9[CP], Pittsburgh PA: Gaussian Inc., 1998
- Sauer J.. Eds: Pacchioni G., Bagus P. S., Parmigiani F.. Cluster Models for Surface and Bulk Phenomena [M], New York: Plenum Press, 1992: 533
- Yuan S. P., Wang J. G., Li Y. W., et al.. J. Mol. Catal. A[J], 2002, 178: 267—274
- Namuangruk S., Khongpracha P., Pantu P., et al.. J. Phys. Chem. B[J], 2006, 110: 25950—25957
- Zheng A., Wang L., Chen L., et al.. Chem. Phys. Chem.[J], 2007, 8: 231—234
- Lonsinger R. S., Chakraborty K. A., Theodorou N. D., et al.. Catal. Lett.[J], 1991, 11: 209—218

本刊中的类似文章

1. 刘小波, 黄卫民, 任秀彬, 董艳杰, 徐红, 林海波. 取代基结构-活性关系对电化学降解取代苯胺的影响[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(6): 1131-1134
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. 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
4. 陈建成, 邢小鹏, 唐紫超, 高振. 二元合金团簇 $\text{CoGe}_n^- (n=1\sim 12)$ 的结构和稳定性[J]. 高等学校化学学报, 2007,28(3): 535-538
5. 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
6. 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
7. 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
8. 赵丽娇, 钟儒刚, 戴乾圆. β -甲基亚硝基咪唑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
9. 石绍庆, 杨国春, 袁卓, 苏忠民. $[\text{M}_6\text{O}_m(\text{C}_{25}\text{N}_4\text{H}_{18})_n]^{2-} (M=W, \text{Mo}; n=1, 2; m=17, 18)$ 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
10. 李吉来, 杭焯超, 耿彩云, 黄旭日, 李方实, 孙家锤. 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

11. 徐定国, 鄢国森. L1 β -Lactamase 催化反应机理研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2453-2456
12. 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
13. 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
14. 李岩, 封继康, 任爱民, 杨丽. 茚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
15. 申勇立, 郝金库, 曹映玉, 杨毓. SUP^+ . 白藜芦醇清除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
16. 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
17. 杨静, 张绍文, 李前树. $\text{CH}_n\text{F}_{4-n}$ 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
18. 李明霞, 周欣, 潘清江, 张红星, 付宏刚, 孙家锺. 联吡啶钌配合物 $[\text{Ru}(\text{Htcterpy})\text{X}_3]^{3+}$ [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
19. 王嵩, 于健康, 丁大军, 孙家锺. $\text{NO} + \text{HCCCO}$ 反应势能面的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(1): 170-173
20. 王继芬, 封继康. 二茚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
21. 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
22. 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
23. 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
24. 周欣, 孟烜宇, 李明霞, 潘清江, 张红星. 配合物 $[\text{N}, \text{N}'\text{-二(亚水杨基)-1,2-乙二胺}]\text{Pt}(\text{II})$ 光谱性质的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(6): 1239-1242
25. 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
26. 陈健, 谭凯, 林梦海, 张乾二. 过渡金属氧化物 $(\text{M}_2\text{O}_5)^+$ $m=1,2$ (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
27. 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
28. 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
29. 曹妍, 李会泉, 张懿, 张军, 何嘉松. 低取代醋酸纤维素的均相合成及其水溶性[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(10): 2115-2117
30. 王一, 王永, 韩克利. 非血红素配合物 $[\text{FeIV}(\text{O})(\text{TMC})(\text{NCMe})]^{2+}$ 与 $[\text{FeIV}(\text{O})(\text{TMCS})]^+$ 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
31. 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
32. 蒋帆, 吴云东. 最短 α -螺旋的理论研究[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(12): 2371-2376
33. 张成华, 薛英, 郭勇, 鄢国森. $\text{N}, \text{N}'\text{-二(对氟苄基)-N'-(2',3'\text{-二脱氧-3'-硫代胞苷})}$ 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
34. 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
35. 徐文国, 白王军, 卢士香. $\text{SeH}_n/\text{SeH}_n^-$ ($n=1\sim5$) 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
36. 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
37. 王飞俊, 邵自强, 王文俊, 吕少一, 冯增国, 廖兵. 淤浆法碱化试剂选择对PAC分子结构及其泥浆滤失性能影响[J]. 高等学校化学学报, 2008,29(11): 2326-2330
38. 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
39. 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
40. 覃昊, 李欣, 孟祥丽, 强亮生. O_3 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
41. 阚玉和, 李强. C_{62} 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
42. 蒋洁, 孟素慈, 马晶. 二聚(2,5-噻吩乙撑撑)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
43. 马海霞, 严彪, 宋纪蓉, 吕兴强, 王连江. DNA乙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

44. 杨玉环,潘纲,马晓楠,陈灏,张美一,何广智,李薇. Zn(II)在TiO₂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
45. 薛严冰,唐祯安. CO在SnO₂(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
46. 梅泽民,,丁红,母瀛,苏清. 双(1,2-二苯基环戊二烯基)二氧化锆化合物发光光谱行为及取代基效应[J]. 高等学校化学学报, 2006,27(5): 901-904

文章评论

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