

研究论文

分子筛催化 *cis*-2-丁烯的双键异构反应机理的DFT研究

李会英, 蒲敏*, 陈标华

(北京化工大学化工资源有效利用国家重点实验室 北京 100029)

收稿日期 2004-12-31 修回日期 2006-4-26 网络版发布日期 2006-8-10 接受日期 2006-4-26

摘要 基于含有两个Si和一个Al的分子筛3T簇模型, 利用密度泛函方法(DFT)研究了分子筛催化1-丁烯双键异构为 *cis*-2-丁烯的反应机理. 在B3LYP/6-31G(d,p)计算水平上对反应各驻点进行了全优化, 并计算了反应的活化能. 研究发现, 分子筛上的酸性OH基团首先通过物理吸附靠近1-丁烯的双键, 形成了 π 配位复合物后, 丁烯双键的端基C原子逐渐抽取这个质子, 同时相邻酸性位的一个O原子也抽取丁烯碳链上的一个H原子, 形成吸附态的 *cis*-2-丁烯, 最后通过脱附形成产物, 使分子筛复原, 反应按照协同反应机理发生. 计算得到的表观活化能是55.9 kJ/mol, 与实验结果接近.

关键词 [分子筛](#) [丁烯](#) [双键异构](#) [密度泛函理论](#)

分类号

DFT Study on the Double Bond Rearrangement Mechanism of *cis*-2-Butene Catalyzed by 3T Cluster Model of Zeolite

LI Hui-Ying, PU Min*, CHEN Biao-Hua

(State Key Laboratory of Chemical Resource Engineering, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029)

Abstract Using density functional theory, the rearrangement of butene double bond catalyzed by a 3T cluster model of zeolite was investigated. At the B3LYP/6-31G(d,p) level, the complete geometry optimization and the activation energy calculation were performed. It was found that the OH group of acidic site of zeolite adsorbed the double bond of 1-butene with formation of a π -complex, then the side C atom of the double bond of butene drew this proton simultaneously, and the neighboring O atom of the cluster abstracted a hydrogen atom from the butene to yield adsorbed *cis*-2-butene, lastly restoring the zeolite active site. The whole reaction process showed a concerted mechanism. The calculated apparent activation barrier was 55.9 kJ/mol in agreement with experimental data.

Key words [zeolite](#) [butene](#) [double bond isomerization](#) [density functional theory](#)

DOI:

通讯作者 蒲敏 pumin@mail.buct.edu.cn

扩展功能

本文信息

▶ [Supporting info](#)

▶ [PDF\(196KB\)](#)

▶ [\[HTML全文\]\(0KB\)](#)

▶ [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](#)

▶ [复制索引](#)

▶ [Email Alert](#)

▶ [文章反馈](#)

▶ [浏览反馈信息](#)

相关信息

▶ [本刊中 包含“分子筛”的
相关文章](#)

▶ 本文作者相关文章

· [李会英](#)

· [蒲敏](#)

· [陈标华](#)