

АНАЛИЗ АДсорбЦИОННЫХ И КАТАЛИТИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ В ПОРЕ ЦЕОЛИТА NaX МЕТОДАМИ КВАНТОВОЙ ХИМИИ

Д.А. Фирсов, Ф. Росснер, А.М. Толмачев, Н.Г. Крюченкова

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова.
Химический факультет*

На основе теории функционала плотности проведены квантово-химические расчёты изменения энергетических и структурных характеристик молекул метанола, бензола и пропана при их адсорбции в полости цеолита NaX и на фрагменте полости. Показано, что эти изменения последовательно увеличиваются при переходе от адсорбции в микропоре активного угля к фрагменту полости и далее к полости цеолита NaX. Например, для метанола:

Значение длин связей и углов	Газовая фаза	Активный уголь	Фрагмент полости	Цеолит NaX
Связь С–О, Å	1.409	1.408	1.414	1.416
Связь С–Н, Å	1.101	1.100	1.106	1.108
Связь О–Н, Å	0.965	0.966	1.001	1.004
угол С–О–Н	107.107°	107.410°	108.982°	109.120°
угол Н(СН ₃)–С–О	112.885°	112.885°	113.381°	113.586°
угол Н–С–Н	107.877°	107.877°	108.057°	108.148°
Значение зарядов на атомах				
С	–0.276	–0.281	–0.307	–0.312
О	–0.620	–0.638	–0.633	–0.651
Н (СН ₃)	0.152	0.150	0.175	0.181
Н (ОН)	0.407	0.414	0.442	0.453

Наиболее энергетически выгодным является расположение молекул пропана, бензола и спирта вблизи катиона Na, при этом молекула спирта образует водородную связь с кислородным мостиком цеолита. При адсорбции двух молекул спирта, они также локализуются у катиона Na с образованием межмолекулярной водородной связи.

Проведено моделирование катализа реакции дегидрирования пропана в полости цеолита NaX (и других) и проанализировано влияние пространственных факторов на результаты моделирования. Рассмотрены механизмы реакций и показано, что каталитическая активность при переходе от полости к фрагменту полости цеолита NaX различаются незначительно: константа скорости уменьшается приблизительно в 2 раза, а энергия активации на 7 кДж·моль^{–1}.