182287

งานวิจัยนี้ได้นำวิธีการคำนวณทางควอนตัม (DFT และ MP2) มาศึกษาผลของซีโอไลต์ ZSM-5 ที่มีต่อการดูดซับ พลังงานในการเกิดอัลคอกไซด์อินเทอร์มีเดียต ของสารตั้งต้นจำนวนหกชนิด ได้แก่ อีทีน โพรพีน 1-บิวทีน ซิสบิวทีน ทรานส์บิวทีน และ ไอโซบิวทีน ผลการศึกษาพบว่า พลังงานจากการดูดซับ พลังงานของอัลคอกไซด์อินเทอร์มีเดียต สัมพันธ์กับประจุที่กระจายอยู่บนสารตั้งต้น และความแข็งแรงของพันธะคู่ของสารตั้งต้น แต่ไม่ส่งผลต่อทรานซิชันสเตท

ผลการทดลองแสดงให้เห็นว่า พลังงานสัมพัทธ์ของ อีทีน โพรพีน บิวทีน และ ไอโซบิวทีน สัมพันธ์กับการเกิดอัลคอกไซด์อินเทอร์มีเดียตในซีโอไลต์ ZSM-5 ซึ่งมีแนวโน้มสอดคล้องกับผลการคำนวณที่เกิดขึ้นในซีโอไลต์ชนิด Theta-1 ซึ่งอาจจะสรุปได้ว่า สำหรับสารตั้งต้นมีขนาดเล็ก ซีโอไลต์ทั้งสองชนิดที่แตกต่างกันนี้มีแนวโน้มที่จะไม่เลือกผ่านสารตั้งต้น ดังนั้นการพิจารณาผลของอันตรกิริยาในระยะกลาง หรือไกล จึงจำเป็นจะต้องนำมาพิจารณาสำหรับการศึกษาระบบที่ซับซ้อนมากขึ้น

We have performed QM cluster calculations on the zeolite ZSM-5 at DFT and MP2 levels. We investigated the effect of this zeolite on the adsorption energies and the energetics of alkoxide intermediate formation of six different substrates; ethene, propene, 1-butene, cis/trans butene and isobutene in this study. We find the calculated adsorption and the alkoxide intermediate energies correlate strongly with the absolute charge on the substrate and the strength of the substrate double bond. The substrates' transition states are not as affected by the zeolite which would explain why they correlate strongly with the gas-phase substrate protonation energy.

Our results show that for ethene, propene, 1-butene and iso-butene, the relative energetics associated with the formation of the alkoxide intermediate in ZSM-5 follow the same trends to those form in the zeolite theta-1. This seems to suggest that these different zeolites may be relatively unselective towards small substrates or that more effective treatment of medium/long range interactions are required to properly model these complicated systems.

Keywords— zeolite, adsorption, alkene, alkoxide, ZSM-5, DFT