

金属-有机骨架材料MOF-5的改进与吸附甲烷的巨正则蒙特卡罗模拟

曾余瑶; 张秉坚

浙江大学化学系, 杭州 310027

摘要:

根据金属-有机骨架材料(MOFs)的设计思想, 在MOF-5(对苯二甲酸为桥联配体, Zn₄O金属簇为中心的配位化合物)的基础上设计了10种以Zn₄O金属簇为中心(Corner), 以不同基团单取代的对苯二甲酸(BDC)衍生物为桥联配体(Linker)的多孔材料. 用巨正则蒙特卡罗(GCMC)模拟方法, 计算了这些材料在298 K、1-10 MPa条件下对甲烷的吸附量, 讨论了不同取代基与甲烷吸附量的关系. 结果发现, 在298 K、3.5 MPa时甲烷的吸附量主要取决于吸附热, 并且以硝基取代的配体构成的MOF分子吸附甲烷效果最好. 在此基础上, 进一步设计了以四硝基取代对苯二甲酸为桥联配体的MOF-4NO₂. 该结构在相同条件下对甲烷的超额吸附量为209 cm³·cm⁻³, 总吸附量达到228 cm³·cm⁻³, 比美国能源部(DOE)提出的甲烷吸附材料应用要求标准高26%.

关键词: 甲烷 金属-有机骨架材料 吸附 巨正则蒙特卡罗

收稿日期 2008-02-26 修回日期 2008-04-09 网络版发布日期 2008-05-28

通讯作者: 张秉坚 Email: zbj@mail.hz.zju.cn

本刊中的类似文章

1. 陈吉祥;邱业君;张继炎;苏万华.La₂O₃和CeO₂对CH₄-CO₂重整Ni/MgO催化剂结构和性能的影响[J]. 物理化学学报, 2004,20(01): 76-80
2. 王军威;徐金光;田志坚;徐云鹏;徐竹生;林励吾.Ba、Mn对Al₂O₃热稳定性和甲烷催化燃烧活性的影响[J]. 物理化学学报, 2002,18(11): 1018-1022
3. 邹吉军;李阳;张月萍;刘昌俊.甲烷二氧化碳介质阻挡放电转化产物分布研究[J]. 物理化学学报, 2002,18(08): 759-763
4. 冀永强;冯文林;郝茂荣;李会英.CH₃NO₂和CH₃自由基吸氢反应途径和变分速率常数计算[J]. 物理化学学报, 2002,18(08): 721-726
5. 周灵萍;李伟;陶克毅;李赫咄;李宣文.NaBr/KY催化剂在甲苯氧化甲基化反应中的稳定性[J]. 物理化学学报, 2002,18(10): 916-919
6. 阎震;寇元.氧化条件下NO_x催化的甲烷均相部分氧化[J]. 物理化学学报, 2002,18(11): 1048-1051
7. 张现仁;汪文川.甲烷在中孔分子筛MCM-41中吸附的计算机模拟[J]. 物理化学学报, 2002,18(08): 680-685
8. 季亚英;李文钊;徐恒泳;陈燕馨.用MS-PSR技术研究甲烷部分氧化反应的引发过程[J]. 物理化学学报, 2001,17(03): 201-205
9. 唐晓萍;王素凡;高丽蓉;王操;孔繁毅.甲烷在飞秒强激光场中的解离[J]. 物理化学学报, 2003,19(07): 661-665
10. 曹达鹏;汪文川;沈志刚;陈建峰.超临界甲烷在纳米材料中最适吸附压力的确定 [J]. 物理化学学报, 2001,17(10): 940-943
11. 杨咏来;徐恒泳;李文钊.Ni基催化剂上CH₄、C₂H₆和C₂H₄的裂解积炭性能 [J]. 物理化学学报, 2001,17(09): 773-775
12. 纪敏, 毕颖丽, 甄开吉, 徐立羽华, 魏途.利用Eu³⁺荧光特性研究CaO-La₂O₃催化剂结构[J]. 物理化学学报, 1995,11(02): 175-179
13. 熊国兴;夏新瑞;陈恒荣;郭燮贤.NaCl和B₂O₃在修饰FeO_x催化剂中的协同作用[J]. 物理化学学报, 1994,10(11): 971-977
14. 赵震;远松月;于作龙.锂在甲烷氧化偶联多元氧化物催化剂中的作用[J]. 物理化学学报, 1994,10(07): 616-622
15. 潘竟军;韩布兴;闫海科;李芝芬;刘瑞麟.甲烷在水-叔丁醇混合溶剂中的溶解度[J]. 物理化学学报, 1994,10(06): 501-507
16. 赵震;远松月;于作龙.甲烷氧化偶联Ti-La-Li系混合氧化物催化剂[J]. 物理化学学报, 1994,10(04): 324-329
17. 罗晓鸣;韩巧凤;陈懿;韩世堂;金通政;睦霞霞.Na₂SnO₃系催化剂表面吸附氧的EPR研究[J]. 物理化学学报, 1993,9(06): 746-751

扩展功能

本文信息

PDF(578KB)

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

▶ 甲烷

▶ 金属-有机骨架材料

▶ 吸附

▶ 巨正则蒙特卡罗

本文作者相关文章

▶ 曾余瑶

▶ 张秉坚

18. 刘薇;徐奕德;李丽云;胡红兵.²⁷Al和²⁹Si MAS-NMR对Mo/HZSM-5催化剂的研究[J]. 物理化学学报, 1997,13(08): 693-699
19. 王达望;马腾才;崔锦华.大气压旋转螺旋状电极辉光放电等离子体催化甲烷偶联[J]. 物理化学学报, 2005,21(11): 1291-1294
20. 王操;孔繁放.多原子分子在强飞秒激光场中的解离[J]. 物理化学学报, 2004,20(08S): 1055-1062
21. 白玫瑰,陶旭梅,吴青友,黄志军,李育亮,印永祥,戴晓雁.不同进气方式对热等离子体应用于CH₄-CO₂重整的影响[J]. 物理化学学报, 2009,25(12): 2455-2460
22. 崔锦华;许根慧;刘昌俊.新型多尖端旋转电极甲烷偶联等离子体反应器[J]. 物理化学学报, 2004,20(05): 557-560
23. 李春义;余长春;沈师孔.Ni/Al₂O₃催化剂上甲烷部分氧化制合成气反应CO₂主要来源[J]. 物理化学学报, 2000,16(02): 97-100
24. 耿春宇;丁丽颖;韩清珍;温浩.气体分子对甲烷水合物稳定性的影响[J]. 物理化学学报, 2008,24(04): 595-600
25. 郭亮;吴占松.超临界条件下甲烷在纳米活性炭表面的吸附机理[J]. 物理化学学报, 2008,24(05): 737-742
26. 陈来元,徐竹生,张涛,李新生,林励吾.甲烷在Mo/HZSM-5催化剂上的脱氢聚合反应[J]. 物理化学学报, 1995,11(07): 601-606
27. 刘新华,苗茵,李晓丽,盛世善.La₂O₃对Ni/γ-Al₂O₃甲烷化催化剂的助催化作用[J]. 物理化学学报, 1995,11(08): 746-750
28. 曾金龙;熊智涛;林国栋;于腊佳;张鸿斌.甲烷脱氢芳构化Mo/HZSM-5基催化剂表征[J]. 物理化学学报, 1998,14(05): 394-400
29. 樊晓伟;周少杰;张庆祥;邓景康;郑延友;高乃飞;陈学俊.精确的甲烷分子价轨道的电子动量谱学研究[J]. 物理化学学报, 1998,14(06): 573-576
30. 刘彦方;赵敏;申世刚;高俊刚.TBBPAER/DDM的固化反应动力学[J]. 物理化学学报, 1998,14(10): 927-931
31. 蒋政;侯红霞;郝郑平;康守方;李进军;胡春.La促进型六铝酸盐Ba_{1-x}La_xFeAl₁₁O_{19-δ}催化甲烷燃烧性能[J]. 物理化学学报, 2004,20(11): 1313-1319
32. 李永昕;郭玉华;冀永强.M/(MgO)_y(CeO₂)_{1-y}(M=Ni、Co、Cu)催化剂的催化甲烷燃烧性能[J]. 物理化学学报, 2005,21(05): 468-473
33. 田宜灵;肖衍繁;朱红旭;董习靖;任晓文;张风才.高温高压下水与非极性流体间的界面张力[J]. 物理化学学报, 1997,13(01): 89-95
34. 樊晓伟;周少杰;郑延友;陈学俊.甲烷分子价电子的能谱和动量谱[J]. 物理化学学报, 1996,12(12): 1106-1109
35. 褚衍来;李树本;龚华;陈正石.Ni-Cu-Al₂O₃催化剂的活性相及作用机理[J]. 物理化学学报, 1996,12(05): 429-435
36. 曾凡桂,贾建波.霍林河褐煤热解甲烷生成反应类型及动力学的热重-质谱实验与量子化学计算[J]. 物理化学学报, 2009,25(06): 1117-1124
37. 徐军科;李兆静;汪吉辉;周伟;马建新.甲烷干重整催化剂Ni/Al₂O₃表面积炭表征与分析[J]. 物理化学学报, 2009,25(02): 253-260
38. 陈善俊;戴伟;罗江山;唐永建;王朝阳;孙卫国.甲烷在AFS型分子筛中的吸附模拟[J]. 物理化学学报, 2009,25(02): 285-290
39. 万丽华 颜克凤 李小森 樊栓狮.热力学抑制剂作用下甲烷水合物分解过程的分子动力学模拟[J]. 物理化学学报, 2009,25(03): 486-494
40. 张诺伟 黄传敬 匡飞平 高晓晓 翁维正 万惠霖.Mg助剂对Co/Mg/HZSM-5催化剂结构及其催化甲烷部分氧化制合成气性能的影响[J]. 物理化学学报, 2008,24(12): 2165-2171
41. 肖利华 孙鲲鹏 徐贤伦.CeO₂-MO_x (M=La³⁺, Ca²⁺)改性Pd/γ-Al₂O₃催化甲烷燃烧性能[J]. 物理化学学报, 2008,24(11): 2108-2113
42. 马淳安;王晓娟;李国华;李美超;陈松.硝基甲烷在离子液体BmImBF₄中的电还原特性[J]. 物理化学学报, 2007,23(11): 1719-1722
43. 姜勇;储伟;江成发;王耀红.Pd_n(n=1-7)团簇及其与甲烷相互作用的密度泛函理论研究[J]. 物理化学学报, 2007,23(11): 1723-1727
44. 任秀彬;李换英;郭向云.甲烷部分氧化反应过程中的振荡行为[J]. 物理化学学报, 2008,24(02): 197-200
45. 张涯远;蒋政;张世超;朱庆山.La_{0.8}Sr_{0.2}FeMn_{1.5}Al_{9.5}O_{19-δ}六铝酸盐气溶胶催化剂的催化性能[J]. 物理化学学报, 2008,24(02): 211-216
46. 张晓菲;胡瑞生;高官俊;孟和;苏海全.两种络合剂对Ce-Sn-O复合氧化物结构与性能的影响[J]. 物理化学学报, 2007,23(05): 659-663
47. 周健;汪文川.Gibbs系综Monte Carlo模拟甲烷的吸附平衡[J]. 物理化学学报, 2001,17(08): 723-727
48. 崔锦华;许根慧;韩森.等离子体甲烷偶联体系中纯氢气放电消除积炭 [J]. 物理化学学报, 2002,18(03): 276-

49. 严前古;罗春容;翁维正;杨乐夫;万惠霖;吴廷华.甲烷在Ni/TiO₂催化剂表面的活化[J].物理化学学报,2001,17(08):733-738
50. 周长军;朱月香;谢有畅.甲烷催化燃烧催化剂Ag/SnO₂体系的研究 [J].物理化学学报,2001,17(09):850-854
51. 李建昌;宋延林;薛增泉;刘维敏;江雷;朱道本.聚苯胺-TCNQ复合薄膜的微观结构与电学特性[J].物理化学学报,2000,16(04):289-293
52. 苏文悦;付贤智;魏可镁.SO₄²⁻表面修饰对TiO₂结构及其光催化性能的影响[J].物理化学学报,2001,17(01):28-31
53. 朱爱民;张秀玲;宫为民;张报安.有气氛下等离子体甲烷偶联反应的研究[J].物理化学学报,2000,16(09):839-843
54. 陈宏善;牛建中;夏春谷;李树本.甲烷氧化偶联Na-W-Mn/SiO₂催化剂的喇曼光谱[J].物理化学学报,2000,16(06):543-546
55. 李建昌;薛增泉;张浩;曾燕;刘惟敏;吴全德.真空沉积TCNQ薄膜的手性分形结构[J].物理化学学报,2000,16(07):579-582
56. 金荣超;陈燕馨;崔巍;李文钊;于春英;江义.甲烷催化部分氧化制合成气的反应机理[J].物理化学学报,1999,15(04):313-318
57. 金荣超;陈燕馨;李文钊;季亚英;秦永生;江义.甲烷部分氧化Ni催化剂及助剂的研究[J].物理化学学报,1998,14(08):737-741
58. 周长军;林伟;朱月香;谢有畅.氧化锡基甲烷催化燃烧催化剂的硫中毒反应机理[J].物理化学学报,2003,19(03):246-250
59. 朴玲钰;李永丹.气凝胶催化剂上甲烷裂解制备的碳纳米管结构特征[J].物理化学学报,2003,19(04):347-351
60. 侯思聪;刘凌涛;寇元.低温甲烷氧化偶联Li-ZnO/La₂O₃催化剂[J].物理化学学报,2006,22(08):1040-1042
61. 杨达林;凌云;丁传凡;周游;朱起鹤.碘甲烷通过 \tilde{A} 态和 \tilde{C} 态的多光子电离[J].物理化学学报,1993,9(04):442-446
62. 王江;甄开吉;魏谗;毕颖丽.ABO₃型稀土铝酸盐的表面状态及其催化性能[J].物理化学学报,1992,8(02):247-250
63. 詹明生;周士康;储焰南;宋芳青;杨新;李方琳.F(²P)与CH₂Br₂反应的化学发光光谱及其动力学[J].物理化学学报,1992,8(02):274-278
64. 邵淑敏;席光康;王君容;李胜林;杨学柱;王金合;周志强;贺添喜;于宝霞.甲烷在Ni表面及La薄膜上激活解离化学吸附[J].物理化学学报,1992,8(06):767-771
65. 龚桦;姜永基;王贻;陈铭之;郑国康.某些Lewis碱与CCl₄和CHCl₃在298.15K的过量体积[J].物理化学学报,1991,7(01):49-56
66. 郭敬忠;顾月姝;刘传朴;李保中;印永嘉;蔡继业;曹德兆.He(2³S)与含氢卤代甲烷传能反应中产生的CH(A²Δ,v'=0)的新态转动分布[J].物理化学学报,1991,7(02):211-214
67. 曹晨忠;曾荣今.原子电负性和极化度对卤代甲烷C 1s电子电离能的影响[J].物理化学学报,2006,22(09):1085-1089
68. 余林;徐奕德;郭燮贤.红外光谱研究甲烷和氧与SrO-La₂O₃/CaO表面的相互作用[J].物理化学学报,1995,11(10):902-906
69. 张昌华,张延,张嵩,张冰.氯碘甲烷在A带的光解动力学[J].物理化学学报,2009,25(08):1708-1712