

# 在预吸附氧原子的 Ag(100) 面上氯乙烯环氧化反应的密度泛函理论研究

吕永康 1, 郗瑞鑫 1, 任瑞鹏 1,2

1 太原理工大学煤科学与技术教育部与山西省重点实验室, 山西太原030024; 2 太原理工大学化学化工学院, 山西太原030024

LÜ Yongkang1,\* , XI Ruixin1, REN Ruipeng1,2

1Key Laboratory of Coal Science and Technology, Ministry of Education and Shanxi Province, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, Shanxi, China; 2College of Chemistry and Chemical Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, Shanxi, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (466KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

**摘要** 采用密度泛函理论和周期性平板模型对氯乙烯在预吸附氧原子的 Ag(100) 面上选择性环氧化反应进行了模拟计算. 结果表明, 该反应首先由反应物生成中间体, 再由中间体生成产物. 由于氯乙烯是一种不对称的分子, 所以该反应存在两种可能的途径. 比较反应活化能可以发现, 在一个反应通道中环氧氯乙烷要比氯乙醛的生成更容易; 而在另一反应通道中, 氯乙醛要易于环氧氯乙烷和乙酰氯的生成. 同时还研究了中间体中碳原子和银原子的投影态密度 (PDOS), 以期更深入地了解两种不同反应途径活化能差异的原因.

**关键词:** 氯乙烯 密度泛函理论 选择性环氧化 银 预吸附 氧原子

**Abstract:** Vinyl chloride selectivity during epoxidation on an atomic oxygen pre-adsorbed Ag(100) surface using density functional theory (DFT) with the periodic slab model was investigated. The reaction mechanism is a two-step process where chloroethylene oxametallacycle intermediate (OMMC) is first formed and then converted to the products. Because of the asymmetry of vinyl chloride, two competitive reaction pathways are evident. The reaction energies and the activation energies of the processes were determined by the DFT calculations. Compared with the reaction activity energy, in one pathway the formation of chloroethylene epoxide (CE) is more favorable than the formation of chloroacetaldehyde (CA) whereas in the other pathway, the formation of CA is more favorable than the formation of CE and acetyl chloride. To further understand the reason for the selectivity difference in these different paths the projected density of states of the C atom and the Ag atom involved in the OMMC was calculated.

**Keywords:** vinyl chloride, density functional theory, selectivity epoxidation, silver, pre-adsorption, oxygen

收稿日期: 2010-11-25; 出版日期: 2011-01-26

引用本文:

.在预吸附氧原子的 Ag(100) 面上氯乙烯环氧化反应的密度泛函理论研究[J] 催化学报, 2011,V32(3): 451-455

.Vinyl Chloride Selectivity during Epoxidation on Oxygen Pre-adsorbed Ag(100): A Density-Functional Theory Study[J] , 2011,V32(3): 451-455

链接本文:

http://www.chxb.cn/CN/ 10.1016/S1872-2067(10)60197-0 或 http://www.chxb.cn/CN/Y2011/V32/I3/451

没有本文参考文献

- [1] 张丽, 刘福东<sup>a</sup>, 余运波, 刘永春, 张长斌, 贺泓<sup>b</sup>. CeO<sub>2</sub> 添加对 Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂低温氨氧化性能的影响[J]. 催化学报, 2011,32(5): 727-735
- [2] 潘珍燕<sup>1</sup>, 华丽<sup>1</sup>, 乔云香<sup>1</sup>, 杨汉民<sup>2</sup>, 赵秀阁<sup>1</sup>, 冯博<sup>1</sup>, 朱闻闻<sup>1</sup>, 侯震山<sup>1,\*</sup>. 纳米磁性颗粒负载的银催化剂催化苯乙烯环氧化反应[J]. 催化学报, 2011,32(3): 428-435
- [3] 温艳媛, 丁昆明. Ag@AgCl 修饰的锐钛矿相 TiO<sub>2</sub> 纳米管的制备及其光催化性能[J]. 催化学报, 2011,32(1): 36-45
- [4] 蒋新, 董克增, 王海华, 王挺. 吸附相反应技术制备双金属 Ag-Ni 催化剂用于硝基苯液相加氢[J]. 催化学报, 2010,31(9): 1151-1156
- [5] 李晓莹, 王长生. 肝醇脱氢酶催化乙醇氧化生成乙醛反应机理的理论研究[J]. 催化学报, 2010,31(9): 1167-1171
- [6] 齐随涛<sup>1,2</sup>, 俞伟婷<sup>2</sup>, William W. LONERGAN<sup>2</sup>, 杨伯伦<sup>1</sup>, 陈经广<sup>2</sup>. Pt-Ni/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 双金属催化剂上 1,3-环己二烯的低温加氢和脱氢反应[J]. 催化学报, 2010,31(8): 955-960
- [7] 温书豪, 侯柱锋, 刘建勇, 何国钟. 钼硫碘纳米线结构特性和化学改性的理论研究[J]. 催化学报, 2010,31(7): 739-746
- [8] 曹亮, 周丹红, 邢双英, 李新. HZSM-5 分子筛上乙烯芳构化过程中 C<sub>4</sub> 至 C<sub>6</sub> 中间体的反应机理[J]. 催化学报, 2010,31(6): 645-650
- [9] 贺泓, 余运波, 李毅, 吴强, 张秀丽, 张长斌, 石晓燕, 宋小萍. Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂催化含氧烃类选择性还原氢氧化物的基础与应用研究进展[J]. 催化学报, 2010,31(5): 450-459

## Service

- ▶ 把本文推荐给朋友
- ▶ 加入我的书架
- ▶ 加入引用管理器
- ▶ Email Alert
- ▶ RSS

## 作者相关文章