

# 甲醛在 FeS<sub>2</sub>(100) 完整与 S-缺陷表面吸附的理论研究

杜玉栋<sup>1</sup>, 郭欣<sup>2</sup>, 陈文凯<sup>1,\*</sup>, 李奕<sup>1</sup>, 章永凡<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 福州大学化学系, 福建福州 350108; <sup>2</sup> 华中科技大学煤燃烧国家重点实验室, 湖北武汉 410074

DU Yudong<sup>1</sup>, GUO Xin<sup>2</sup>, CHEN Wenkai<sup>1,\*</sup>, LI Yi<sup>1</sup>, ZHANG Yongfan<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Chemistry, Fuzhou University, Fuzhou 350108, Fujian, China; <sup>2</sup>State Key Laboratory of Coal Combustion, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 410074, Hubei, China

- [摘要](#)
- [参考文献](#)
- [相关文章](#)

Download: PDF (626KB) [HTML](#) (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) [Supporting Info](#)

**摘要** 运用密度泛函理论广义梯度近似的 PBE 方法结合周期平板模型, 研究了 HCHO 分子在 FeS<sub>2</sub>(100) 完整与 S-缺陷表面的吸附。结果表明, 在两种表面上, HCHO 均通过 O 原子与两个表面作用: 稳定吸附于完整表面 Fe-top 位 (Fe 五配位); 而在 S-缺陷表面则存在两种稳定吸附模式, 即 HCHO 分别与表面的一个和两个四配位 Fe 成键。对体系的态密度、轨道电荷布居和红外振动频率的分析发现, HCHO 在吸附过程中从 FeS<sub>2</sub>(100) 表面获得电子, 吸附后羰基振动频率发生红移, C=O 键长伸长, 羰基被削弱。

**关键词:** 密度泛函理论 二硫化铁(100) 完整晶面 S-缺陷表面 甲醛分子 吸附

**Abstract:** The adsorption of HCHO molecules on perfect and S-deficient FeS<sub>2</sub>(100) surfaces was studied with a periodic slab model by Perdue-Burke-Ernzerhof approach of General Gradient Approximation within the framework of the density functional theory. The calculated results show that HCHO reacted with both surfaces through the O atom. HCHO adsorbed aslant on the Fe-top site on the perfect surface, while there were two stable structures for HCHO on the S-deficient surface, where HCHO bonded with one and two fourfold-coordinate Fe cations, respectively. The calculation of density of states, Mulliken population, and vibrational frequencies of the adsorption systems indicated that the electrons transferred from the substrate to HCHO, and the bond of C=O was elongated and weakened.

**Keywords:** density functional theory, pyrite(100), perfect surface, S-deficient surface, formaldehyde, adsorption

收稿日期: 2010-12-24; 出版日期: 2011-04-07

**引用本文:**  
杜玉栋, 郭欣, 陈文凯等. 甲醛在 FeS<sub>2</sub>(100) 完整与 S-缺陷表面吸附的理论研究[J]. 催化学报, 2011, V32(6): 1046-1050

DU Yu-Dong, GUO Xin, CHEN Wen-Kai etc. Theoretical Study of the Adsorption of Formaldehyde on Perfect and S-Deficient FeS<sub>2</sub>(100) Surfaces [J] Chinese Journal of Catalysis, 2011, V32(6): 1046-1050

**链接本文:**  
<http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2011.01251> 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2011/V32/I6/1046>

- [1] ekine Y. Atmos Environ, 2002, 36: 5543
- [2] althammer T, Mentese S, Marutzky R. Chem Rev, 2010, 110: 2536
- [3] ang X Z, Shen Y N, Yuan Z F, Zhu H Y. J Mol Catal A, 2005, 237: 224
- [4] hang C B, He H, Tanaka K. Appl Catal B, 2006, 65: 37
- [5] i J, Dasgupta P K, Luke W. Anal Chim Acta, 2005, 531: 51
- [6] euss G, Disteldorf W, Gamer, A O, Hilt A. In: Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Vol A11. 6th Ed. Weinheim: Wiley-VCH, 2001. 619
- [7] alvani S B, DeNeve B A, Weston A. Corros Sci, 1991, 47: 55
- [8] gunsola O M, Osseo-Assare K. Fuel, 1987, 66: 467
- [9] Ison T J, Aplan F F. In: Chug Y P, Cauldrie R D ed. Proc-essing and Utilization of High Sulfur Coal. Amsterdam: Elsevier, 1987. 71
- [10] Lowson R T. Chem Rev, 1982, 82: 461
- [11] Nordstrom D K. SSSA Special Publication, 1982, 10: 37

## 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

- ▶ [杜玉栋](#)
- ▶ [郭欣](#)
- ▶ [陈文凯](#)
- ▶ [李奕](#)
- ▶ [章永凡](#)

- [12] Huang X, Leiro J A, Laajalehto K. In: Alpers C N, Blowes D W ed. Environmental Geochemistry of Sulfide Oxidation. Vol 550. New York: Oxford University Press, 1994. 562
- [13] Mattila S, Leiro J A, Laajalehto K. Appl Surf Sci, 2003, 212-213: 97 
- [14] Leiro J A, Mattila S S, Laajalehto K. Surf Sci, 2003, 547: 157 
- [15] Mattila S, Leiro J A, Heinonen M. Surf Sci, 2004, 566-568: 1097 
- [16] Kim E J, Batchelor B. Environ Sci Technol, 2009, 43: 2899 
- [17] Rosso K M, Becker U, Hochella M F Jr. Am Mineral, 1999, 84: 1549
- [18] Rosso K M, Becker U, Hochella M F Jr. Am Mineral, 1999, 84: 1535
- [19] Guevremont J M, Strongin D R, Schoonen M A A. Surf Sci, 1997, 391: 109 
- [20] Guevremont J M, Strongin D R, Schoonen M A A. Lang-muir, 1998, 14: 1361
- [21] Guevremont J M, Strongin D R, Schoonen M A A. Am Mineral, 1998, 83: 1246
- [22] Stirling A, Bernasconi M, Parrinello M. J Chem Phys, 2003, 118: 8917 
- [23] Stirling A, Bernasconi M, Parrinello M. J Chem Phys, 2003, 119: 4934 
- [24] Boehme C, Marx D. J Am Chem Soc, 2003, 125: 13362 
- [25] 孙伟, 胡岳华, 邱冠周, 覃文庆. 中南工业大学学报 (Sun W, Hu Y H, Qiu G Zh, Qin W Q. J Central South Univ Technol), 2004, 11: 386
- [26] Von Oertzen G U, Skinner W M, Nesbitt H W. Phys Rev B, 2005, 72: 235427 
- [27] Nair N N, Schreiner E, Marx D. J Am Chem Soc, 2006, 128: 13815 
- [28] Stirling A, Bernasconi M, Parrinello M. Phys Rev B, 2007, 75: 165406 
- [29] 黎全, 覃文庆, 孙伟, 邱冠周. 中南工业大学学报 (Li Q, Qin W Q, Sun W, Qiu G Zh. J Central South Univ Technol), 2007, 14: 618 
- [30] Kleppe A K, Jephcoat A P. Miner Magazine, 2004, 68: 433 
- [31] Du Y D, Chen W K, Zhang Y F, Guo X. J Nat Gas Chem, 2011, 20: 60 
- [32] Delley B. J Chem Phys, 1990, 92: 508 
- [33] Delley B. J Chem Phys, 2000, 113: 7756 
- [34] Lide D R. CRC Handbook of Chemistry and Physics. 84th Ed. Boca Raton: CRC Press, 2003-2004. 9
- [35] Alonso-Azcarate J, Rodas M, Fernandez-Diaz, Bottrell S H, Mas J R, Lopez-Andres S. Geolog J, 2001, 36: 159 
- [36] 蒋仕宇, 滕波涛, 鲁继青, 刘雪松, 杨培芳, 杨飞勇, 罗孟飞. 物理化学学报 (Jiang Sh Y, Teng B T, Lu J Q, Liu X S, Yang P F, Yang F Y, Luo M F. Acta Phys-Chim Sin), 2008, 24: 2025
- [37] Nakanaga T, Kondo S, Saeki S. J Chem Phys, 1982, 76: 3860 
- [1] 陈亮, 沈俭. 间苯二酚-甲醛树脂凝胶对Co/SiO<sub>2</sub>催化剂费-托性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(4): 621-628
- [2] 孟庆森, 申勇立, 徐晶, 巩金龙. Au(111)表面上乙醇选择性氧化反应机理的密度泛函理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(3): 407-415
- [3] 张岩, 黄翠英, 王俊芳, 孙琪, 王长生. Ti/SiO<sub>2</sub>催化H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>氧化苯甲醇制苯甲醛反应机理的理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(2): 360-366
- [4] 万密密, 朱建华. 沸石对亚硝胺吸附及降解的研究进展[J]. 催化学报, 2012,33(1): 60-69
- [5] 李冬梅, 刘建勇. 细胞色素P450催化4-氯-N-环丙基-N-异丙基苯胺C<sub>α</sub>-H羟基化反应机理的理论研究[J]. 催化学报, 2011,32(7): 1208-1213
- [6] 任珏, 周丹红, 李惊鸿, 曹亮, 邢双英. 密度泛函理论研究分子筛相邻双酸性位对乙烯质子化反应的影响[J]. 催化学报, 2011,32(6): 1056-1062
- [7] 胡胜华, 薛明伟, 陈慧, 孙寅璐, 沈俭. 高载量、高活性Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>催化剂的制备及其芳环加氢催化反应研究[J]. 催化学报, 2011,32(6): 917-925
- [8] 张丽, 刘福东, 余运波, 刘永春, 张长斌, 贺泓. 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
- [9] 王德强 1,2, 张一波 1,2, 肖德海 1, 杨向光 1. 硅烷化TS-1对环己烷均相氧化反应的促进作用[J]. 催化学报, 2011,32(5): 723-726
- [10] 李赏, 朱广文, 邱鹏, 荣刚, 潘牧. Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/C催化氧还原反应的活性及机理[J]. 催化学报, 2011,32(4): 624-629
- [11] 李秋荣 1,2, 武金宝 1, 郝吉明 2. 低温等离子体处理对NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>吸附NO<sub>x</sub>的促进作用[J]. 催化学报, 2011,32(4): 572-581
- [12] 吕永康 1, 郝瑞鑫 1, 任瑞鹏 1,2. 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, 2011,32(3): 451-455
- [13] 翟新磊, 徐金光, 徐秀峰, 邹旭华, 齐世学, 祁彩霞, 安立敦. 吸附柱色谱法制备负载型纳米金催化剂[J]. 催化学报, 2011,32(2): 374-378
- [14] 陈慧, 戴乐, 谢建新, 白志平, 贾敏慧, 沈俭. 介孔碳负载的Pd催化剂催化β-谷甾醇加氢制备β-谷甾醇[J]. 催化学报, 2011,32(12): 1777-1781
- [15] 游奎一, 尹笃林, 毛丽秋, 刘平乐, 罗和安. 钠灯下α-蒎烯光敏氧化反应中区域选择性的催化调控[J]. 催化学报, 2011,32(10): 1610-1616

