

Abstrakt

Byla provedena studie kyselých zeolitů H-FER s Si:Al poměrem 71, 35 a 8 pomocí periodického DFT modelu, klastrového modelu a také pomocí CCSD(T) metody. Výpočetní studie zeolitu H-FER ve vysokosilikátové formě (Si:Al=71) společně s výzkumem interakce CO a N₂ (testovacích molekul) s H-FER byly doplněny experimentálními daty pořízenými infračervenou spektroskopií při různé teplotě (VTR).

U vzorků H-FER s různým poměrem Si:Al byla popsána struktura, umístění a relativní stabilita jejich kyselých Brønstedových skupin. Bylo zjištěno, že relativní stabilita jednotlivých vazebných míst je závislá na poměru Si:Al, který je také hlavním faktorem určujícím relativní koncentraci kyselých Brønstedových vazebných míst s různými typy lokální konfigurace. Počet AlO₄ tetraedrů sdílejících kyslíkový atom s SiO₄ tetraedrem obsahujícím kyselý Brønstedové vazebné místo určuje Si-O(H)-Al úhel, O-H stretch frekvenci a deprotonizační energii (a z ní vyplývající kyselost).

Bylo navíc zjištěno, že teoretické výsledky vztahující se k CO a N₂ interakci s H-FER zeolitem jsou v dobré shodě s experimentálními VTIR daty. Bylo popsáno několik typů vodíkově vázaných komplexů OH...CO a OH...N₂ vznikajících na základě interakce mezi absorbovanými molekulami a kyselými Brønstedovými OH skupinami zeolitu. Ze studie vyplývá, že CO a N₂ tvořící s OH skupinami lineární komplexy mířící do prázdného prostoru vykazují největší adsorpční entalpii, její hodnota byla výpočtem omezena na rozmezí od -25 do -29 kJ/mol pro komplex s CO a na rozmezí od -15 do -19 kJ/mol pro komplex s N₂. Studie také ukázala, že méně stabilní komplexy OH...CO a OH...N₂ jsou vytvořeny v případě, když je kyselá Brønstedová OH skupina součástí intra-zeolitové vodíkové vazby, nebo když je volný prostor příliš malý k vytvoření lineárních komplexů bez dřívější změny pozice protonu kyselých Brønstedových OH skupin.