МОДЕЛИРОВАНИЕ ПОВЕРХНОСТНЫХ ФРАГМЕНТОВ ЧАСТИЦ КРЕМНЕЗЕМОВ

Барышева Н.А., Соловьев М.Е.
Ярославский государственный технический университет, г. Ярославль

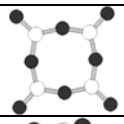
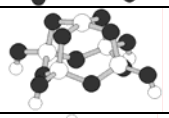
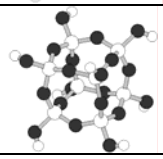
Барышева Н.А.
Соловьев М.Е.
Ярославский государственный технический университет

Классические адсорбционные методы изучения поверхности обычно характеризуют лишь степень однородности без детализации самой структуры поверхности. Методы квантовой химии, молекулярной механики и динамики позволили в последнее время развить и значительно углубить наши представления о структуре отдельных элементов поверхности, определяющих ее адсорбционные свойства.

Однако использование квантовой теории для изучения поверхности в значительной степени отличается от ее традиционных применений в химии. Наибольшее признание в изучении поверхности кремнеземов получил квантовохимический расчет кластерных моделей, в качестве которых используются структурные фрагменты с поверхностными дефектами. Свойства всей поверхности определяются совокупностью свойств фрагментов. Пофрагментный подход в случае систем с ковалентным характером химических связей (в том числе кремнеземов) возможен вследствие локальности межатомных взаимодействий.

Расчет параметров структурных фрагментов кремнеземов производился в данной работе полуэмпирическими методами программного пакета HyperChem. На первом шаге исследования были найдены оптимальные конформации элементарных предполагаемых частиц поверхности производных кремнекислот, отвечающие требованию минимальной энергии. Затем отслеживалось поведение молекул, содержащих от 4-х до 8-и атомов кремния в присутствии молекул воды, бутена и нитрилоакрила. На следующем этапе был произведен анализ динамического поведения этих же систем при различных температурах, и было отмечено, что движение частиц кремнезема зависит в основном от типа и числа поверхностных силанольных групп.

Расчет энергии адсорбции молекулярных систем

Оптимизация геометрии молекул	Энергия адсорбции, кДж/Моль		
	Воды	Бутена	НАК
	-80,84	-16,34	-68,85
	-99,49	-38,83	-122,01
	-34,61	-5,48	-17,1

При исследовании полярных соединений достигается значительно более высокая энергия адсорбции. При этом можно выделить следующие тенденции: в случае адсорбции более полярной молекулы НАК отмечается существенное изменение геометрии молекул диоксида кремния; наиболее высокие показатели энергии адсорбции характерны для тех видов взаимодействия, которые осуществляются за счет атома азота нитрильной группы и атома кремния. Пониженное значение энергии адсорбции наблюдается в тех случаях, когда структура молекулы кремнекислотного наполнителя такова, что в силу стерических ограничений не позволяет осуществлять вышеописанный вид взаимодействия, и тогда адсорбат присоединяется за счет атомов водорода. Для молекул воды в целом характерны те же самые зависимости, хотя деформация частиц кремнезема в этом случае проявляется не так ярко.