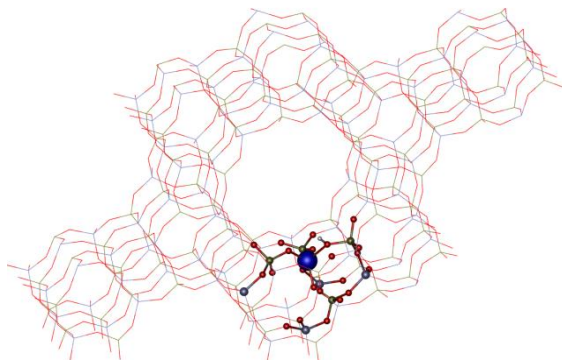


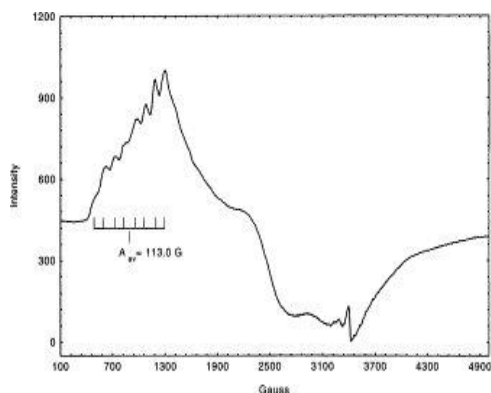
STUDIE VAN EPR ACTIVE KATALYTISCHE CENTRA IN METAALGESUBSTITUEERDE ZEOLIETEN

Keywords: Magnetic Resonance Spectroscopy, Nanoporous Materials



Zeolieten zijn microkristallijne aluminasilicaten met een poriënnetwerk waarin allerlei moleculen kunnen diffunderen. Deze materialen vertonen unieke eigenschappen en genieten als gevolg een ruime interesse vanuit industrieel en wetenschappelijk oogpunt. Dit toegepast luik sluit aan bij andere onderzoeksprojecten binnen het CMM waarbij zeolieten centraal staan (bijv. katalytische reacties over zeolieten, ...).

Door de introductie van bepaalde metalen in deze microporeuze materialen kunnen katalytisch actieve centra ontstaan met aantrekkelijke toepassingen in de redoxchemie. Bijvoorbeeld selectieve oxidatiereacties van organische verbindingen met waterstofperoxide aan titanosilicaten krijgen recent veel aandacht. Deze laatste zijn zeolieten waarin verscheidene Si^{4+} T-centra isomorf zijn gesubstitueerd door Ti^{4+} kationen. Nog een voorbeeld zijn de Fe-gesubstitueerde zeolieten met onder meer toepassing in de selectieve hydroxylatie van benzeen naar fenol. Een andere klasse van zeolieten vormen de Cu^{2+} uitgewisselde aluminasilicaten. De koperionen in de zeolietmatrix kunnen namelijk fungeren als katalytische centra voor de reductie van NO naar stikstofgas en zuurstof.



Momenteel is echter nog niet veel geweten over de microscopische structuur van de actieve sites. Om die reden zijn pogingen ondernomen om met behulp van EPR de precieze coördinatie en symmetrie van dergelijke metaalionen te karakteriseren, alsook de structuur van eventuele intermediaire complexen gevormd tijdens de redoxreacties. De laatste jaren is een accurate theoretische voorspelling van magnetische resonantie spectroscopische grootheden mogelijk geworden door belangrijke theoretische ontwikkelingen binnen de dichtheidsfunctionaaltheorie (DFT).

Voor de experimentator vormen theoretische berekeningen een krachtig hulpmiddel aangezien de waargenomen spectra soms heel complex kunnen zijn.

Doelstelling

Doel van deze thesis is om theoretisch EPR spectra te voorspellen van verschillende actieve sites in de nanoporeuze materialen en de ware aard van de actieve site te onthullen door de bekomen resultaten te verifiëren aan de bestaande EPR spectra. Door middel van deze kwantummechanische beschrijving kan op atomaire schaal nagegaan worden op welke manier de Cu^{2+} ionen met het rooster of met bijkomende zuurstofatomen coördineren. Dit gebeurt door middel van een uitgebreid gamma aan simulatietechnieken voorhanden in het Centrum voor Moleculaire Modelling.

Promotoren: Prof. Dr. ir. V. Van Speybroeck - veronique.vanspeybroeck@ugent.be (09/264.65.58),
Dr. ir. K. Hemelsoet - karen.hemelsoet@ugent.be (09/264.65.64) / **Begeleiding:** ir. A. Van Yperen - De
Deyne andy.vanyperendedeyne@ugent.be (09/264. 66.19) / <http://molmod.ugent.be/student-corner>