

ПОВЕРХНОСТНЫЕ ЯВЛЕНИЯ

УДК 544.7

МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ МЕЛАМИНА С ПОВЕРХНОСТЬЮ АКТИВНЫХ УГЛЕЙ

© 2010 Ю. А. Тарасенко, С. В. Журавский, И. Н. Духно*, Н. Т. Картель, В. Д. Хаврюченко**

Проведено квантово-химическое моделирование взаимодействия молекулы меламина с различными кислородсодержащими группами на поверхности углеродного кластера в процессе получения азотсодержащего активного угля. Синтезирован ряд допированных азотом образцов углей, свойства которых согласуются с результатами расчетов.

Ключевые слова: квантово-химическое моделирование, азотсодержащий активный уголь, углеродный кластер, меламина.

1. Введение

Активные угли (АУ) являются полифункциональными материалами широкого применения и проявляют сорбционные, ионообменные, комплексообразующие, электрохимические и каталитические свойства. Сейчас достоверно известно [1-3], что сорбционно-электрохимические и сорбционно-каталитические свойства АУ существенно зависят от наличия в их составе гетероатомов различных элементов (О, S, N, P, В, Н и др.). Так, введение в матрицу АУ гетероатомов азота делает их более активными в каталитических процессах электронного переноса: восстановления молекулярного кислорода [4,5] и электроположительных металлов [6], окисления летучих гидридов [7,8] и органических веществ [9].

Поэтому одной из важных научных и практических задач является получение АУ, содержащих гетероатомы азота в различных химических состояниях. Для этого в качестве модификаторов широко применяются разнообразные азотсодержащие соединения (аммиак, мочевины, меламина и др.) [10]. С технологической точки зрения обязательным условием экономически оправданного использования модификатора является простота процесса как по аппаратному оформлению, так и по затратам реактивов и энергии. Аммиак является дешевым исходным веществом, однако его использование достаточно сложно из-за высокой токсичности и сравнительно низкой реакционной способности [11-13]. Поэтому для упрощения технологического процесса без потери качества получаемых углей необходим поиск наиболее удобных азотсодержащих модификаторов.

Изучение функционализации углеродных материалов, а именно процессов формирования заданных структурно-сорбционных характеристик, регулирования химии поверхности, кислотно-основных, окислительно-восстановительных и каталитических свойств АУ, при помощи методов вычислительной химии, позволяет понять механизм взаимодействия углеродных матриц с различными допантами на атомном уровне. Поэтому целью настоящей работы является квантово-химическое моделирование процесса получения азотсодержащего АУ и экспериментальное изучение модифицирования активного угля меламинами.

2. Методики экспериментов и квантово-химических расчетов

В качестве прекурсора для экспериментального исследования в работе использовали косточковый активный уголь (КАУ). Перед импрегнированием меламинами, образцы КАУ были окислены раствором пероксида водорода (37 %) при комнатной температуре в течение разных промежутков времени для получения образцов с различными величинами статической обменной емкости (СОЕ). Модифицирование углей осуществляли импрегнированием исходных и окисленных КАУ водно-спиртовой суспензией меламина путем встряхивания в течение суток и

Институт химии поверхности им. А.А. Чуйко НАН Украины, ул. Генерала Наумова 17, Киев, Украина

** Национальный технический университет Украины «КПИ», Киев, Украина*

*** Институт сорбции и проблем эндоэкологии НАН Украины, ул. Генерала Наумова 13, Киев, Украина*

последующего кипячения до полного испарения жидкой фазы. После высушивания образцов проводили их термическую обработку в три стадии: при 450⁰С, 600⁰С и 850⁰С, каждую в течение 1 часа. При термообработке импрегнированных образцов в отходящих газах фиксировали наличие аммиака и паров воды.

Для получаемых на всех стадиях процесса образцов определяли их структурно-сорбционные параметры. Удельную поверхность измеряли динамическим методом по низкотемпературной адсорбции аргона из смеси «гелий-аргон» на хроматографе "Цвет-304" [14]. Объем пор исследуемых материалов устанавливали эксикаторным методом по поглощению паров бензола. Элементный состав АУ определяли с помощью анализа образцов на содержание водорода и углерода – по Преглю, азота – по Дюма, кислорода – по разности полученных значений [15]. На всех этапах приготовления азотсодержащих АУ (окисление, импрегнирование, термолиз) составляли материальный баланс процесса по азоту. Структурно-сорбционные характеристики образцов КАУ на различных стадиях синтеза представлены в табл. 1.

Таблица 1. Структурно-сорбционные параметры угля КАУ на различных стадиях синтеза

№	Образец КАУ	СОЕ, мг-экв/г	S _{уд.} , м ² /г	V _s (по бензолу), г/см ³
1	Исходный	0.32	2230	0.73
2	Окисленный	1.32	2340	0.72
3	Исходный модиф. (450 ⁰ С)	-	1560	0.61
4	Окисленный модиф. (450 ⁰ С)	-	1590	0.62
5	Исходный модиф. (850 ⁰ С)	0.43	2020	0.62
6	Окисленный модиф. (850 ⁰ С)	0.47	1890	0.66

Термический анализ осуществляли на приборе "TA Instruments Thermal Analyzer" методом нагревания образцов в кислородной или азотной атмосферах со скоростью подъема температуры 10 град/мин при подаче газов 10 мл/мин.

Химическое состояние атомов азота и кислорода в углеродных материалах исследовали методами РФЭ- и ИК-спектроскопии. Рентгенофотоэлектронные спектры образцов углей снимали на приборе "VG ESCA" (ИКФХП ПАН, Польша), в котором источником излучения служил алюминиевый анод. Рабочее давление в камере составляло 2,7x10⁶ Па. ИК-спектры пропускания регистрировали на двухлучевом приборе "NEXUS, FT-IR" с высокой разрешающей способностью (количество сканов – 32). Образцы готовили диспергированием тонкого порошка углей в КВг (соотношение 1:300). Для удаления адсорбированной воды образцы прогревали в вакууме при 150⁰С в течение 1 часа.

Квантово-химическое моделирование структуры исходного угля и процессов его допирования азотом выполняли полуэмпирическим методом РМ3 [16], который оптимизирован для корректного воспроизведения структурных параметров систем, таких как длины связей, углы между связями и торсионные углы, а также теплоты образования, дипольные моменты и потенциалы ионизации. Вычисления проводили при помощи программы "QuChem" [17,18], которая реализует этот метод и ориентирована на расчет больших молекулярных систем. Из использованных возможностей метода в данной работе представлены результаты расчетов энергетических эффектов (ΔH) и структурных характеристик систем. Данные о пространственном строении моделируемых кластеров здесь не приводятся из-за больших объемов полученного цифрового материала.

Для построения моделей использовали кластерное приближение. Для квантово-химических расчетов применяли простые модели взаимодействия аммиака и меламина с органическими молекулами, содержащими различные функциональные группы, а также кластер, моделирующий строение графитоподобной части АУ, из которого путем замены атомов углерода и/или водорода на функциональные группы получали различные кислородсодержащие кластеры.

3. Результаты эксперимента

Элементный анализ образцов, получаемых на всех стадиях процесса (табл. 2), показывает, что исходные и окисленные КАУ первоначально не содержат азот, а процесс окисления увеличивает общее содержание кислорода в углях от 7,0 до 10,5 %. После импрегнирования как ис-

ходный, так и окисленные до различных степеней угли удерживают на развитой поверхности меламина, причем, для образцов с окисленной поверхностью прирост массы оказывается большим в среднем в 1,5 раза (табл. 3).

Таблица 2. Элементный состав исходного и окисленных углей КАУ на различных стадиях синтеза

№	Тип угля	Содержание элементов, % масс.			
		С	Н	N	O
1	Исходный	92.0	1.0	0.0	7.0
2	Окисленный	87.7	1.8	0.0	10.5
3	Исходный модиф. (450 ⁰ С)	88.3	0.9	8.0	2.8
4	Окисленный модиф. (450 ⁰ С)	82.0	0.8	8.6	8.6
5	Исходный модиф. (850 ⁰ С)	96.0	0.3	1.3	2.4
6	Окисленный модиф. (850 ⁰ С)	94.8	0.5	2.5	2.2

Таким образом, из представленных данных следует, что предварительное окисление исходных активных углей позволяет по описанной методике вводить в окисленные угли КАУ повышенное (по сравнению с неокисленными) и регулируемое количество азота.

Таблица 3. “Привес” исходного и окисленных углей КАУ после импрегнирования

Тип угля	СОЕ, мг-экв/г	Прирост массы, %
Исходный	0.32	13.1
Окисленный	1.00	19.7
Окисленный	1.32	20.1
Окисленный	1.50	17.0

Поведение этих АУ существенно отличается и при высокотемпературной обработке. Так был проведен термический анализ чистого меламина, а также импрегнированных, термообработанных при 600⁰С и 800⁰С КАУ, результаты которого представлены на рис. 1. Исследование чистого меламина (кривая 1) показывает, что он полностью разлагается уже при температурах ниже 500⁰С, тогда как в адсорбированном на окисленных углях состоянии ведет себя иначе: даже при температурах выше 600⁰С он удаляется не полностью (кривые 2 и 3). Импрегнированный меламинам, а затем термообработанный при 800⁰С, исходный КАУ (кривая 4) обнаруживает меньшую потерю веса, чем предварительно окисленный (кривая 3), что согласуется с данными элементного анализа (см. табл. 2). Отличие в поведении этих углей проявляется также и в том, что остаточное содержание азота в исходных и окисленных КАУ после высокотемпературной обработки составляет: в предварительно окисленных АУ – 2.5 % и выше, в исходных же – не превышает 1.3 % (табл. 2).

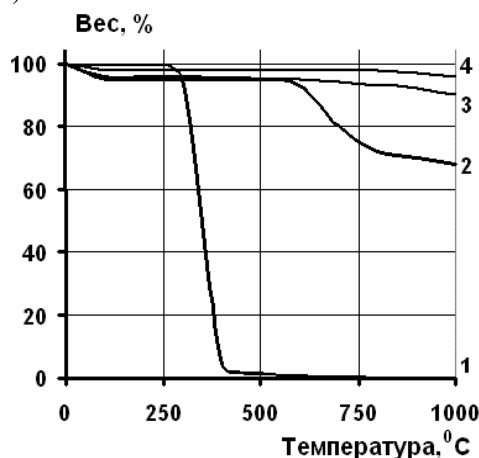


Рис. 1. Термический анализ меламина (1) и КАУ: 2 – окисленного, импрегнированного, термообработанного при 600⁰С; 3 – окисленного, импрегнированного, термообработанного при 800⁰С; 4 – исходного, импрегнированного, термообработанного при 800⁰С.

Нужно подчеркнуть также, что в работе [19] была отмечена подобная тенденция накопления азота на различных стадиях синтеза азотсодержащих АУ из углей природного происхождения методом их пропитки растворами мочевины с последующей термообработкой.

Таким образом, на основании данных термического и элементного анализов образцов АУ установлено, что на всех стадиях синтеза (импрегнирование и термообработка) исходные неокисленные КАУ содержат меньше азота, чем предварительно окисленные пероксидом водорода образцы. Установлено также, что, изменяя степень окисления исходных КАУ, в конечных модифицированных образцах можно регулировать содержание азота.

Исследование химического состояния азота в модифицированных углях методом РФЭС (рис. 2) после их высокотемпературной обработки в инертной атмосфере показывает наличие азота пиридинового (398.3 эВ) и четвертичного типов (401.1 эВ), а также пиридин-N-оксида (402.1 эВ) и хемосорбированных оксидов азота (405.8 эВ).

Таким образом, данные РФЭС-спектроскопии доказывают присутствие азота пиридинового, четвертичного и N-оксидного типов, а данные ИК-спектроскопии служат дополнительным подтверждением присутствия азота в разных химических состояниях в структуре синтезированных углей (рис. 3). Следует отметить, что эти результаты согласуются и с имеющимися в литературе данными [20-22].

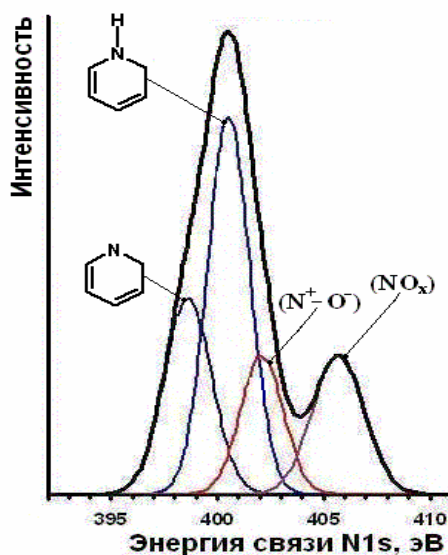


Рис. 2. РФЭС-спектры КАУ, модифицированного азотом.

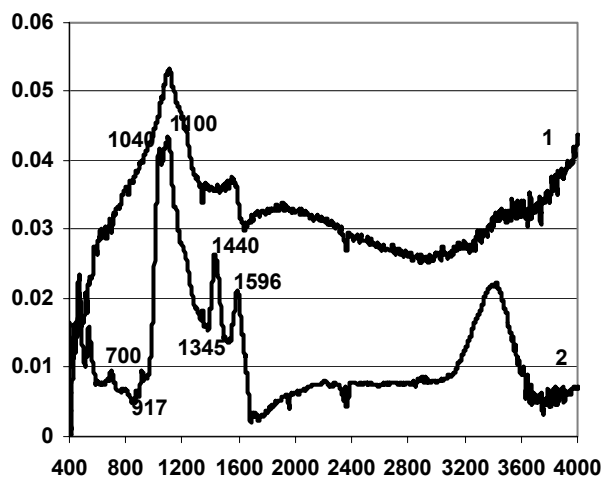


Рис. 3. ИК-спектры исходного (1) и модифицированного азотом (2) КАУ.

4. Квантово-химическое моделирование

Квантово-химические расчеты процесса допирования азота в углеродную матрицу начинались с предварительной оценки возможных типов взаимодействия аммиака с простыми органическими молекулами (анилин, пиридин, толуол, бензиловый спирт, фенол, бензойная, салициловая и пиромеллитовая кислоты).

На перечисленных моделях был получен качественный результат, свидетельствующий, что с анилином, пиридином и толуолом, как и ожидалось, заметного взаимодействия аммиака не происходит. С бензиловым спиртом имеет место образование слабой водородной связи. Взаимодействие аммиака с фенольной группой сопровождается образованием водородной связи без переноса протона от фенольного гидроксила к азоту аммиака (подтверждено данными пространственного строения комплекса, согласно которым расчетное расстояние $1.75 \pm 0.1 \text{ \AA}$ соответствует длине водородной связи). С карбоновыми кислотами происходит образование солеобразных аддуктов:



Таким образом, в перечисленных системах термодинамически наиболее выгодным является кислотно-основное взаимодействие с образованием ионизированной системы.

Поскольку на поверхности окисленных АУ в достаточно большом количестве содержатся карбоксильные группы, следующий этап расчетов касался взаимодействия меламина с бензойной кислотой (как модельного соединения). Схема этого процесса, завершающегося образованием азотсодержащих гетероциклических структур, представлена на рис. 4 (этапы I-V).

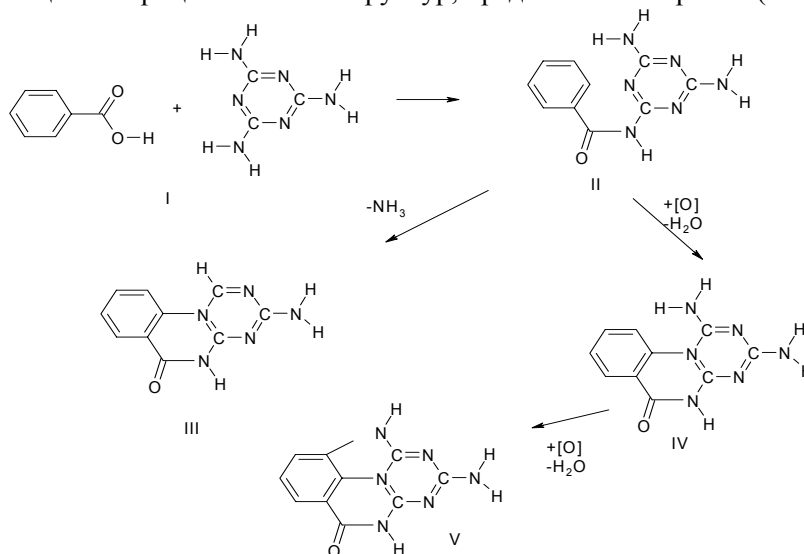


Рис. 4. Схема взаимодействия меламина и бензойной кислоты с образованием гетероциклических структур.

Были рассчитаны теплоты образования и термических превращений кластеров на каждом этапе (табл. 4), а также их пространственное строение. По этой схеме (рис. 4) меламина, как достаточно основной первичный амин, взаимодействует, в первую очередь, с кислотными (а именно карбоксильными) группами с образованием продукта присоединения.

Таблица 4. Теплоты образования кластеров, возникающих в результате взаимодействия меламина с бензойной кислотой (рис. 4).

Кластер	ΔH , ккал/моль
I	-43
II	22
III	46
IV	46
V	71

Расчет пространственного строения кластера (II) показывает (рис. 4), что такой амид, полученный из меламина и бензойной кислоты, является непланарной системой из-за стерических затруднений, возникающих от близости атомов водорода бензольного кольца и атомов азота триазинового цикла. В такой системе (особенно при повышенных температурах) возможно протекание двух процессов: перенос атома водорода от бензольного кольца на первичную аминогруппу меламина с отщеплением аммиака, что типично для реакций, сопровождающихся замыканием гетероциклов с образованием комплекса (III), или окислительное замыкание гетероцикла с отщеплением двух атомов водорода (комплекс IV). Наличие значительного количества аммиака в отходящих газах процесса термообработки импрегнированных меламинами окисленных АУ свидетельствует о преимущественном прохождении процесса с образованием комплекса (III).

Благодаря присутствию в триазиновом кольце меламина других первичных аминогрупп, возможно также протекание еще одного процесса: отрыв NH_3 и замыкание другого (уже пятичленного) гетероцикла, т.е. превращение комплекса (IV) в комплекс (V). Из расчетных данных следует, что меламина способен реагировать с карбоксильными группами не только с получением солеобразных продуктов и амида, но и с образованием при нагревании термически устойчивых азотсодержащих гетероциклических соединений.

Следующим этапом моделирования было изучение взаимодействия угольного кластера с меламином. В качестве исходного кластера, моделирующего поверхность АУ, был выбран кластер, содержащий различные поверхностные кислородсодержащие группы: карбоксильные, фенольные, карбонильные и пириновые группы (рис. 5). Для поиска наиболее оптимальной позиции для взаимодействия с функциональными группами данного кластера рассчитывали теплоты образования, используя различные "стартовые" положения молекулы меламина (эти позиции соответствуют локальным минимумам на гиперповерхности потенциальной энергии системы [23]) относительно выбранного угольного кластера (позиции *1, *2, *3, *4, *5 на рис. 5). Результаты расчетов представлены в табл. 5.

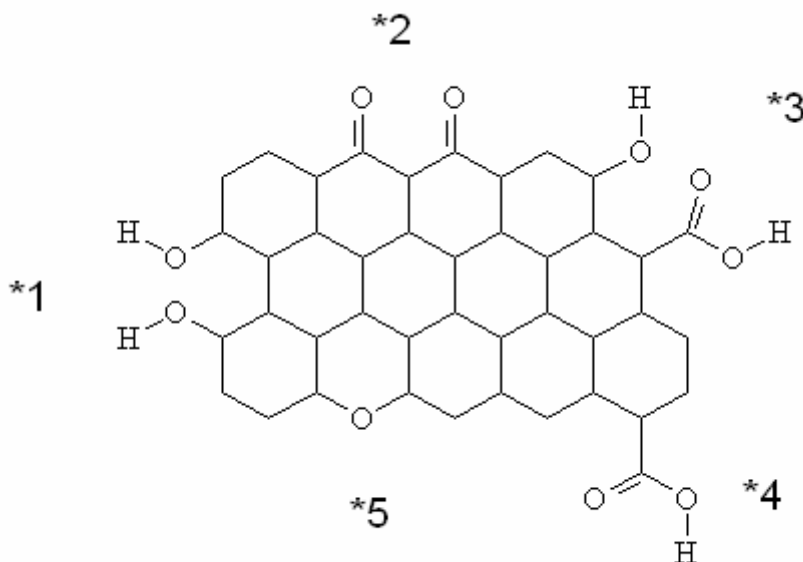


Рис. 5. Базовая модель угольного кластера для определения наиболее активных участков по отношению к меламину: *1, *2, *3, *4, *5 – "стартовые" положения тестовой молекулы меламина по отношению к различным реакционным центрам кластера.

Таблица 5. Теплоты образования кластеров, возникающих в результате взаимодействия меламина с реакционными группами угольного кластера.

Кластер	ΔH , ккал/моль
Кластер	-772
Кластер + меламина в положении *1	-677
Кластер + меламина в положении *2	-669
Кластер + меламина в положении *3	-708
Кластер + меламина в положении *4	-695
Кластер + меламина в положении *5	-673

Полученные результаты свидетельствуют, что меламина наиболее прочно связывается с угольным кластером в тех местах, где расположены карбоксильные группы, что подтверждается простейшими моделями взаимодействия аммиака и меламина с органическими молекулами (см. табл. 4).

Для окончательного решения вопроса о первичном связывании меламина в процессе обработки угля были рассчитаны несколько серий аналогичных моделей с модифицированной азотом углеродной матрицей (рис.6). Проведенные расчеты показывают, что преимущественным способом удерживания меламина на поверхности окисленного угля является его взаимодействие с COOH-группами.

В связи со специфичностью взаимодействия меламина именно с карбоксильными группами АУ дальнейшее моделирование процессов превращения связанного окисленной угольной матрицей меламина проводили с использованием реакционных центров *3 и *4 (см рис. 5 и табл. 5), как исходных, аналогично процессу образования гетероциклов в системе "меламина – бензойная кислота" (см рис. 4 и табл. 4).

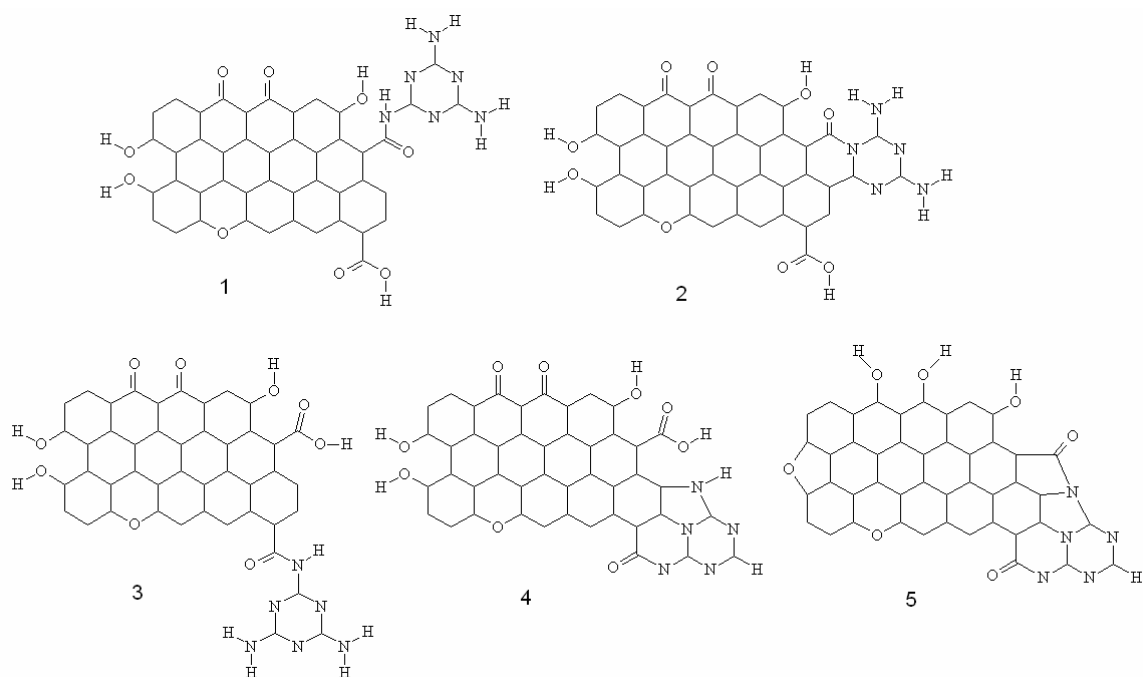


Рис. 6. Схема взаимодействия окисленной угольной матрицы и меламина с образованием азотсодержащих угольных кластеров (1-5).

Карбоксильная группа реагирует с меламином, образуя амид (1), который может превращаться в гетероцикл (2) с отщеплением аммиака, аналогично схеме, представленной на рис.4. Амид (3) образуется в результате взаимодействия меламина со второй карбоксильной группой исходного угля. Он также может подвергаться окислительной циклизации через кластер (4) с образованием кластера (5) и отщеплением аммиака. Из строения кластера (5) видно, каким образом молекула меламина “встраивается” в систему сопряженных связей графеновой структуры, существенно повышая его термическую стабильность.

5. Обсуждение результатов

Предложенная схема связывания меламина с активными углями при их импрегнировании с последующей термообработкой позволяет объяснить основные особенности этих процессов. Прежде всего, это наблюдаемый меньший “унос” импрегнированного меламина с поверхности предварительно окисленного АУ по сравнению с неокисленным при прочих равных условиях, а также меньшее содержание азота в исходном неокисленном АУ по сравнению с предварительно окисленными образцами на всех стадиях синтеза.

Квантово-химические расчеты кластерных моделей взаимодействия меламина с бензойной кислотой показывают, что при термических превращениях энергетически выгодным является процесс замыкания гетероциклических азотсодержащих колец.

Образование амидов при нагревании солей первичных аминов и карбоновых кислот – основной процесс при условии невысокой летучести обоих или одного из компонентов. Удаление при этом воды (см. рис. 4) является дополнительным фактором смещения равновесия в сторону образования амидной (пептидной) связи, т.е. химического связывания меламина с углеродной матрицей.

Представленная модель допирования азотом матрицы окисленных углей путем реакции с меламином, конечно, является упрощенной; она не исчерпывает всех возможных путей связывания меламина активными углями. В первую очередь, это касается неопределенности структуры кластера, моделирующего реальный АУ.

Процесс импрегнирования окисленного АУ, по результатам квантово-химических расчетов, преимущественно заключается в образовании солеподобных аддуктов между основным меламином и достаточно кислыми карбоксильными группами на поверхности АУ. При этом расположенные близко к карбоксильным группам ОН-группы фенольного типа могут также способствовать координации меламина с углеродной матрицей.

При термическом разложении меламина, находящегося в химически связанном или адсорбированном состояниях, происходит выделение аммиака, который, в свою очередь, может также связываться с углем.

Одним из упрощений в работе являлось то, что не учитывался факт взаимодействия продуктов гидролиза меламина в воде с функциональными группами окисленного АУ, что может приводить к дополнительному связыванию азота. Кроме того, находясь в порах АУ, мелиамин в процессе высокотемпературной обработки склонен образовывать полимеры, например, мелем, цианамид и другие продукты, что может также давать вклад в увеличение содержания азота в углях.

Тем не менее, несмотря на принятые упрощения, полученные экспериментальные данные и результаты квантово-химических расчетов дают достаточно полную картину процесса. В результате указанных превращений оказывается возможным образование прочно связанных с графеновой плоскостью азотсодержащих фрагментов, включенных в общую систему π -сопряжения, что существенно повышает их термическую стабильность и изменяет физико-химические характеристики активных углей. Такие прочные гетероциклические фрагменты позволяют атомам азота при высокотемпературной обработке удерживаться в углеродной матрице в виде различных функциональных азотсодержащих групп (рис. 7).

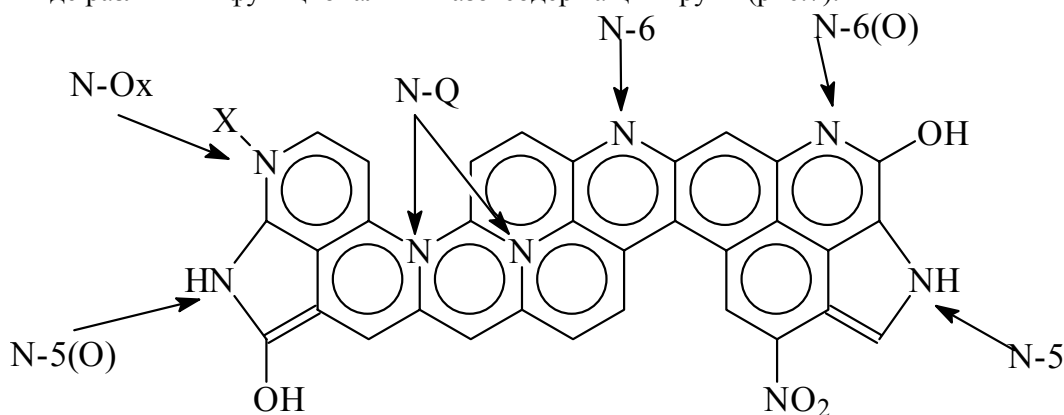


Рис. 7. Возможные формы нахождения азота в углеродной матрице.

При высоких температурах атомы в углеродной матрице становятся более подвижными, что позволяет атомам азота с граней графеновой плоскости частично встраиваться вглубь матрицы АУ с образованием групп типа N-Q.

6. Заключение

Проведено экспериментальное исследование и квантово-химическое моделирование процесса образования азотсодержащего АУ, полученного при взаимодействии окисленного угля КАУ с меламином. Показано, что импрегнирование окисленного угля происходит преимущественно за счет солеобразования между меламином и поверхностными карбоксильными группами АУ.

Экспериментально доказано и подтверждено расчетами, что предварительно окисленные угли содержат больше азота на всех стадиях синтеза. Предложена схема термических превращений адсорбированного и хемосорбированного меламина через стадии образования амидов с циклизацией и формированием азотсодержащих гетероциклов, что приводит к образованию допированных азотом АУ.

Список литературы

- 1) Strelko V.V., Kuts V.S., Thrower P.A. On the mechanism of possible influence of heteroatoms of nitrogen, boron and phosphorous in a carbon matrix on the catalytic activity of carbons in electron transfer reactions // Carbon 38 (2000), p. 1499 - 1524.
- 2) Biniak S., Szymansky G., Siedlewski J., Swiatkowski A. The characterization of activated carbons with oxygen and nitrogen surface groups // Carbon 35 (1997), p. 1799 - 1810.

- 3) Stanczyk K., Dziembaj R., Piwowarska Z., Witkowski S. Transformation of nitrogen structures in carbonization of model compounds determined by XPS // *Carbon* 33 (1995), p. 1383 - 1392.
- 4) Стрелко В.В. Механизм влияния гетероатомов на химию активных углей // В кн.: Селективная сорбция и катализ на активных углях и неорганических ионитах. – К.: Наук. думка, 2008, С. 5 – 44.
- 5) Куць В.С., Клименко В.Е., Стрелко В.В. Кластерные модели активного угля // В кн.: Селективная сорбция и катализ на активных углях и неорганических ионитах. – К.: Наук. думка, 2008, С. 45 – 64.
- 6) Tarasenko Yu.A., Bagreev A.A., Reznik G.V., Strelko V.V. Reductive sorption methods for noble metals extraction from solutions // Intern. symp. (conference) “Hydrometallurgy’94”. – Cambridge. 1994, p. 517 – 526.
- 7) Bagreev A., Menendez J.A., Kopyl S., Dukhno I., Zitsev Yu., Tarasenko Yu., Bandosz T.J. Bituminous coal based activated carbons modified with nitrogen as adsorbents of hydrogen sulfide // *Carbon* 42 (2004), p. 469-476.
- 8) Mikhalovsky S.V., Zaitsev Yu.P. Catalytic properties of activated carbons I. Gas-phase oxidation of hydrogen sulphide // *Carbon* 35 (1997), p. 1367-1374.
- 9) Пузий А.М., Михаловский С.В. Катализ и ингибирование активными углями в реакциях жидкофазного окисления углеводородов // *Нефтепереработка и нефтехимия*, 1986, 31, с. 36-39.
- 10) Boki K., Tanada S., Nobuhiro O., Tsutsui S., Yamasaki R., Nakamura M. Adsorption of polar and nonpolar gases of different sizes on nitrogen-containing activated carbon // *J.Coll. and Interf. Sci.* 1987, vol. 120., p. 286-288.
- 11) Turk A., Sakalis E., Lessuck J., Karamitos H., Rado O. Ammonia injection enhances capacity of activated carbon for hydrogen sulfide and methyl mercaptane // *Envir. Sci. Techn.* – 1989, vol.23, p. 1242-1250.
- 12) Stöhr B., Boehm H.P., Schlögl R. Enhancement of the catalytic activity of activated carbons in oxidation reactions by thermal treatment with ammonia or hydrogen cyanide and observation of a superoxide species as a possible intermediate // *Carbon* 26 (1991), p. 707-720.
- 13) Jurewicz K., Babel K., Ziolkowski A., Wachowska H. Ammoxidation of active carbons for improvement of supercapacitor characteristics // *Electrochim. Acta.* 2003, vol. 48, p. 1491-1498.
- 14) Киселев А.В., Яшин Я.Н. Газо-адсорбционная хроматография // М.: Наука, 1967. – 135с.
- 15) Климова В.А. Основные микрометоды анализа органических соединений // М.: Химия, 1967. – 208 с.
- 16) James J.P. Stewart. Optimization of Parameters for Semiempirical Methods II. Applications // *J.Comp. Chemistry*, 1989, vol.10, p. 221 – 264.
- 17) Пилипенко А.Т., Заец В.А., Хаврюченко В.Д. Фалендыш Е.Р. Программа, реализующая метод МПДП/ВС с аналитическим вычислением первых производных и расчетом колебательных спектров // *Ж.Структ.Химии*, 1987, т.28, с. 155–156.
- 18) Khavryuchenko V. Computation vibration spectroscopy as a tool for investigation of complicated system // *Eurasian ChemTech Journal*, 2004, vol.6, p. 157-170.
- 19) Журавский С.В., Картель Н.Т., Ласло К., Тарасенко Ю.А. Получение и пористая структура синтетических азотсодержащих углей на основе стиролдивинилбензольного сополимера // *Поверхность*. 2009. вып.1 (16), с. 78 – 86.
- 20) Kartheijn F., Moulijn J.A., Matzner S., Boehm H.-P. “The development of functionality in model chars during gasification in CO₂ and O₂” // *Carbon* 37 (1999), p. 1143-1150.
- 21) Schmiers H., Friebel J., Streubel P., Hesse R., Köpsel R. “Change of chemical bonding of nitrogen of polymeric N-heterocyclic compounds during pyrolysis” // *Carbon* (1999), p. 1965-1978.
- 22) Raymundo-Pinero E., Cazorla-Amoros D., Linares-Solano A., Find J., Wild U., Schlögl R. “Structural characterization of N-containing activated carbon fibers prepared from a low softening point petroleum pitch and a melamine resin” // *Carbon* (2002), p. 597-608.

23) Минкин В.И., Симкин Б.Я., Миняев Р.М. Теория строения молекул // Ростов-на-Дону, “Феликс”, 1997, 560 с.

Поступила в редакцию 17 августа 2010 г.

Ю. О. Тарасенко, С. В. Жураковский, І. М. Духно, М. Т. Картель, В. Д. Хаврюченко. Моделювання взаємодії меламіну з поверхнею активного вугілля.

Проведене квантово-хімічне моделювання взаємодії молекули меламіну з різноманітними кисневмісними групами на поверхні вуглецевого кластера в процесі одержання азотвмісного активного вугілля. Синтезовано ряд допованих азотом зразків вугілля, властивості яких узгоджуються з результатами розрахунків.

Ключові слова: квантово-хімічне моделювання, азотвмісне активне вугілля, вуглецевий кластер, меламін.

Yu. O. Tarasenko, S. V. Zhurakvsky, I. N. Dukhno, M. T. Kartel, V. D. Khavryuchenko. Modelling of interaction of cyanotriamide with a surface of the active carbons.

Quantum-chemical modelling of interaction of a molecule of cyanotriamide with various oxygen-containing groups on a surface of carbon cluster in the process of obtaining nitrogen-containing active carbons has been undertaken. A number of modified by nitrogen samples of carbons which properties will to be coordinated with data of calculations are synthesized.

Key words: Quantum-chemical modelling, nitrogen-containing active carbon, carbon cluster, cyanotriamide.

Kharkov University Bulletin. 2010. № 932. Chemical Series. Issue 19(42).