Oponentský posudek diplomové práce Bc Jaroslava Vacka

Theoretical Study of Influence of Silanol Nest Defects on Hydrolysis of Zeolite Chabazite

Teoretická studie vlivu defektů silanolového hnízda na hydrolýzu zeolitu chabazitu

Nedávné experimentální i teoretické studie prokázaly, že zeolity jsou při kontaktu s vodou nestabilní a podléhají různým strukturním změnám. V předložené diplomové práci se autor zabývá teoretickým výzkumem hydrolýzy zeolitu chabazitu za vysokých teplot se zřetelem na vliv defektů silanolového hnízda. Teoretická studie byla provedena metodami výpočetní chemie. Reakce vody se zeolitem byly modelovány s použitím teorie funkcionálu hustoty a periodického modelu, v němž byl čistě křemičitý chabazit reprezentován periodicky se opakující supercelou sestávající z 36 resp. 35 tetraedrů. Autor spočítal několik různých reakčních cest hydrolýzy zahrnujících několik kroků v rámci dvou modelů: referenčního („nedefektního“) modelu s idealizovanou jednotkovou celou a modelu zahrnujícího vliv defektů silanolového hnízda a určil optimální reakční cesty hydrolýzy.

Práce je vhodně členěna, cíl práce je jasně formulován. V teoretické části jsou shrnuty podstatné rysy metody DFT (funkcionálu elektronové hustoty) včetně její verze uzpůsobené pro výpočty periodických systémů. Dále autor uvádí důležité charakteristiky hyperploch potenciální energie a stručně se věnuje některým metodám výpočtu reakčních cest.

Diplomová práce Jaroslava Vacka je sepsána v angličtině vcelku přehledně a přináší některé cenné a zajímavé výsledky. Získaná data a závěry potvrzují, že silanolové hnízdo usnadňuje a urychluje hydrolýzu zeolitu. V práci však chybí oddíl věnovaný předchozím studiím hydrolýzy zeolitů. Autor se nezmiňuje ani o výsledcích experimentálního výzkumu hydrolýzy chabazitu, např. o NMR v pevné fázi (^{29}Si MAS NMR), ani o publikovaných teoretických pracech zabývajících se touto problematikou. Jde například o práci z autorova pracoviště [C.J. Heard et al., Nature Commun. (2019)], v níž byly studovány procesy izotopické výměny atomu kyslíku molekuly vody a určitých mřížkových kyslíkových atomů zeolitu, přitom to jsou reakce kompetitivní s hydrolýzou. Obdobnou problematikou se zabývala i bakalářská práce T. Benešové, jejíž výsledky rovněž nebere autor v potaz. Diplomová práce obsahuje řadu překlepů a drobných nedopatření, což je patrné zejména v seznamu použité literatury. Dále uvedu pouze několik připomínek či dotazů:

1) K výkladu pojmu silanolové hnízdo a jeho defektů by bylo, myslím, vhodné zařadit obr. 3.9 nebo podobný už v úvodní kapitole.
2) Bylo by vhodné upřesnit popis používaného programu VASP, např. doplnit kritérium konvergence pro změnu energie, pro změnu sil působících na každý atom a pro nalezení stacionárních bodů na hyperplochách potenciální energie.
3) Autor počítá i aritmetické průměry některých strukturních charakteristik všech reakčních cest. Jaká je výpovědní hodnota takové informace?

Závěrem mohu konstatovat, že posuzovaná diplomová práce Jaroslava Vacka má i přes uvedené nedostatky dobrou odbornou úroveň a přináší některé cenné výsledky. Doporučuji ji proto k obhajobě a navrhuji klasifikaci známkou dobře.

Doc. Jiří Fišer
KFMCh PřF UK

Praha, 2.9. 2020.