

Abstrakt:

Pomocí výpočetních metod byly zkoumány mechanismy tří chemických reakcí: Friedländerovy a Knoevenagelovy reakce katalyzované organokovovým materiálem (tzv. „metal-organic framework“) Cu_3BTC_2 a intramolekulární cyklizace nesaturovaných alkoholů katalyzovaná zeolitem H-ZSM-5. Bylo zjištěno, že reakční mechanismus všech tří reakcí je ovlivňován vysokou koncentrací aktivních míst v použitých katalyzátorech. Vysoká koncentrace adsorpčních míst dovoluje interakci reakčních intermediátů s více aktivními místy zároveň. V případě Friedländerovy a Knoevenagelovy reakce dochází ke snížení aktivačních bariér v důsledku interakce reakčních intermediátů se dvěma katalyticky aktivními místy současně. Opačný efekt byl nalezen pro cyklizaci alkoholů v zeolitu, pro kterou bylo zjištěno, že současná interakce s dvěma aktivními místy zvedne aktivační bariéru reakce a zároveň omezí difúzi uvnitř zeolitu. Studie reakčního mechanismu Knoevenagelovy reakce odhalila (doposud nepopsanou) dynamickou tvorbu defektů v mříži organokovového materiálu. Tento defekt následně katalyzuje Knoevenagelovu reakci. Oba nově popsané efekty nabízí interpretaci dalších vlastností mikroporézních katalyzátorů s vysokou koncentrací aktivních míst.