

Исследование реакционной способности сульфатных комплексов золота по отношению к метану

Иванов Д.Т., Рыжова О.Н., Пичугина Д.А.

студент

МГУ им. М.В. Ломоносова, Химический факультет

nuder@mail.ru

В последнее время все чаще в качестве катализаторов используются соединения золота, которые отличаются высокой активностью и селективностью.

Данная работа посвящена исследованию реакционной способности сульфатных комплексов золота, а именно $[\text{Au}(\text{SO}_4)_2]^-$, $[\text{AuHSO}_4\text{SO}_4]$ и $[\text{Au}(\text{HSO}_4)_2]^+$, по отношению к простейшему из алканов – метану, изучению энергетического профиля процесса активации С–Н связи с помощью методов квантовой химии высокого уровня в рамках единого подхода (метод функционала плотности с неэмпирическим функционалом PBE при использовании расширенных базисных наборов, эффективно учитывающих релятивистские поправки); на этой основе выработке рекомендаций по поиску новых каталитических систем функционализации алканов.

На основании проведенных исследований были установлены механизмы активации метана вышеуказанными комплексами, рассчитаны кинетические характеристики соответствующих процессов: энергии активации и константы скорости.

Реакция метана с комплексом $[\text{Au}(\text{SO}_4)_2]^-$ проходит в одну стадию как электрофильное присоединение ($k = 0.2016 \text{ с}^{-1}$). Реакции метана с соединениями $[\text{AuHSO}_4\text{SO}_4]$ и $[\text{Au}(\text{HSO}_4)_2]^+$ соответствует двухстадийный механизм: на первой стадии происходит электрофильное присоединение метана с образованием метанового комплекса, на второй – миграция протона, константы скорости реакций составляют 0.1638 с^{-1} и 0.0066 с^{-1} соответственно.

Таким образом, на основе полученных данных можно сделать вывод об активности сульфатных комплексов золота(III) в реакции активации метана.