

ABSTRAK

PEMBENTUKAN 4-HIDROKSI BUTANAL DARI ALIL ALKOHOL TERKATALISIS KOMPLEKS KOBALT KARBONIL: STUDI MEKANISME REAKSI MENGGUNAKAN TEORI FUNGSI RAPATAN

Studi komputasi untuk memprediksi mekanisme reaksi hidroformilasi alil alkohol terkatalis kompleks $\text{HCo}(\text{CO})_4$ menjadi 4-hidroksi butanal dilakukan untuk mendapatkan struktur molekul stabil dan energi setiap tahap dalam mekanisme reaksi tersebut. Optimasi geometri yang didapatkan dihitung dengan metode teori fungsi rapatan (DFT) B3LYP dengan basis set 6-31G(d,p) untuk semua atom. Mekanisme reaksi yang diusulkan terdiri dari enam tahap, yaitu pembentukan spesi aktif $\text{HCo}(\text{CO})_3$ dari $\text{HCo}(\text{CO})_4$, koordinasi alil alkohol, penyisipan ikatan rangkap alil alkohol, karbonilasi, adisi oksidatif, dan Eliminasi reduktif. Hasil perhitungan komputasi menunjukkan energi tertinggi terjadi pada tahap pembentukan kompleks $\text{HCo}(\text{CO})_4$ menjadi katalis aktif $\text{HCo}(\text{CO})_3$ sebesar 161,81 kJ/mol untuk hasil perhitungan firefly dan 161,53 kJ/mol untuk hasil perhitungan gaussian. Tahap koordinasi ikatan rangkap alil alkohol ke ikatan Co-H menentukan bentuk aldehid, yang selanjutnya terjadi penyisipan-1,2. Karbonilasi melalui penyisipan salah satu ligand CO ke ikatan Co-R ($R=\text{alkil}$) akan menghasilkan kompleks asil dengan adanya interaksi antara Co dengan β -H dari karbonil. Adisi oksidatif terjadi karena adanya adisi gas H_2 ke sisi ekuatorial atom kobalt yang di tinggalkan satu ligand CO karena mengalami penyisipan ke ikatan Co-R. Tahap akhir dari reaksi hidroformilasi alil alkohol ini adalah eliminasi reduktif. Tahap eliminasi reduktif terjadi karena adanya pemutusan ikatan antara atom pusat kobalt dengan alkil, dimana pemutusan tersebut menghasilkan kembali katalis aktif $\text{HCo}(\text{CO})_3$ dan produk target dari reaksi hidroformilasi alil alkohol ini berupa gugus aldehid, yaitu 4-hidroksi butanal.

Kata-kata kunci: teori fungsi rapatan, reaksi hidroformilasi, alil alkohol, kompleks kobalt

ABSTRACT

FORMATION OF 4-HYDROXY BUTANAL FROM ALLYL ALCOHOL CATALYZED CARBONYL COBALT COMPLEX: STUDY MECHANISM OF REACTION USING DENSITY FUNCTIONAL THEORY

Computational studies to predict a hydroformylation reaction mechanism of allyl alcohol catalyzed $HCo(CO)_4$ complex into 4-hydroxy butanal performed to obtain a stable molecular structure and energy of each stage in the reaction mechanism. Optimization of geometry obtained is calculated by the method of density functional theory (DFT) B3LYP with basis set 6-31G(d,p) for all atoms. The proposed reaction mechanism involves of six elementary steps, formation of the active species $HCo(CO)_3$ from $HCo(CO)_4$, coordination of allyl alcohol, allyl alcohol insertion of double bonds, carbonylation, oxidative addition and reductive elimination. Computational results show the highest energy occurs at the stage of formation of a complex $HCo(CO)_4$ into the active catalyst $HCo(CO)_3$ amounted to 161.81 kJ/mol for the calculation results firefly and 161.53 kJ/mol for gaussian calculation results. A reaction part of allyl alcohol coordination to the Co-H bond determine the shape of the aldehyde, which next step is insertion-1.2. Carbonylation through the insertion of one CO ligand to the Co-R bond ($R=alkyl$) will produce an acyl complex with the interaction between Co with β -H of carbonyl. Oxidative addition occurs because of the addition of H_2 gas to the cobalt atom equatorial side which leaved by one of CO ligand to insertion into bond CO-R. The final stage of hydroformylation reaction of allyl alcohol is reductive elimination. Stage reductive elimination occurs because of the termination of the bonds between the central cobalt atom with alkyl, which resulted in the termination is the active catalyst $HCo(CO)_3$ and the target product of allyl alcohol hydroformylation reaction is form of the aldehyde group, which is 4-hydroxy butanal.

Keywords: density functional theory, hydroformylation reaction, allyl alcohol, cobalt complex



UNIVERSITAS ISLAM NEGERI
SUNAN GUNUNG DJATI
BANDUNG