

CAPÍTOL 8

Conclusions finals

En aquest capítol es presenten de forma resumida les principals conclusions extretes en cadascun dels capítols que formen part d'aquesta tesi. Finalment s'exposen les conclusions generals de la mateixa.

(I) Carbonilació

Estudi de l'últim pas del cicle catalític del procés Monsanto

- 1) Els resultats obtinguts mostren com, a part dels intermedis hexacoordinats, els intermedis pentacoordinats formats a partir de la dissociació de CO o I, s'han de tenir en compte com a possibles punts de partida de l'eliminació reductora.

Estudi teòric del cicle catalític de la carbonilació del propenol catalitzada pel complex Monsanto

- 2) S'han caracteritzat els intermedis i estats de transició del cicle catalític i s'ha trobat el camí de reacció més favorable energèticament.
- 3) S'ha caracteritzat l'intermedi π -alil·lic i s'ha vist com la interacció π -alil és de donació π de l'alil al metall i no hi ha

retrodonació degut a la gran diferència energètica que existeix entre els orbitals buits de l'alil i els *d* plens del metall.

Estudi del paper dels promotors en la carbonilació del metanol catalitzada per complexos d'iridi

- 4) S'han caracteritzat les estructures dels dímers ruteni-iridi, osmi-iridi i indi-iridi i els càlculs de RMN de ^{13}C realitzats, estan en bon acord amb els resultats experimentals.
- 5) S'ha vist com el carbonil de ruteni és el que s'activa més fàcilment i per això és el més actiu, mentre que el carbonil de tungstè és el que presenta una barrera d'activació més alta. Per aquest fet, aquest últim presenta molt poca o nul.la activitat.
- 6) Els resultats teòrics expliquen el diferent comportament del promotor d'indi en funció de si la reacció es dona de forma estequiomètrica o bé sota condicions catalítiques.

Importància dels efectes estèrics i electrònics en la inserció migratòria de CO de la carbonilació del metanol catalitzada per complexos rodi-difosfina

- 7) La diferència entre les velocitats de reacció dels dos complexos destacats amb dppms o bé amb dppe com a lligands, té un origen clarament electrònic.
- 8) Els efectes estèrics modulen la barrera i la disminueixen, més en el cas del sistema amb dppe que en el sistema amb dppms.
- 9) Els lligands electrodonadors com el dppms no sempre retarden la inserció migratòria de CO. Aquesta afirmació només

és vàlida si s'aplica a un mateix tipus de lligands electrodonadors, no en la comparativa entre dppms i dppe.

(II) Hidroboració

Origen de la regio- i l'estereoselectivitat en la hidroboració de vinilarens catalitzada per complexos de rodi

10) Els resultats obtinguts justifiquen l'origen de la regio- i l'enantioselectivitat. La diferència en l'estabilitat dels intermedis clau B1 i B2 quan es comparen els lligands BINAP, QUINAP i PYPHOS està totalment d'acord amb els valors d'e.e. observats experimentalment.

11) La naturalesa electrònica dels alquens substituïts exerceix la seva influència sobre l'enantioselectivitat. Les tendències observades han estat reproduïdes pels càlculs realitzats i s'han reflexat també en l'estabilitat relativa dels isòmers B1 i B2.

12) Els resultats presentats en aquest capítol permeten estendre aquestes conclusions a diferents tipus d'agents d'hidroboració i diferents metalls.

De forma general:

13) Aquest treball, tot fent ús de les eines de la química computacional, aporta el seu gra de sorra a millorar el coneixement d'aspectes relacionats amb la reactivitat de reaccions tant representatives de la catàlisi homogènia com són la carbonilació i la hidroboració.