

Autor diplomové práce: **Bc. Ondřej Duda**

Název diplomové práce: ***Příprava imobilizovaného enantioselektivního katalyzátoru pro Henryho reakci.***

Diplomová práce Ondřeje Dudy má jasně definovaný cíl, kterým je syntéza a studium vlastností předem navrženého imobilizovaného katalyzátoru. Jako testovací reakce katalytických vlastností byla vybrána nitroaldolová reakce. Mezi výhody imobilizovaných katalyzátorů obecně patří dobrá separovatelnost takového katalyzátoru od reakčních směsí a možnost opakovaného použití katalyzátoru pro daný účel. Mezi známé slabší stránky těchto katalyzátorů pak patří vedle horší komerční dostupnosti i ztráta katalytického účinku po několika cyklech použití a snížení katalytického účinku ve srovnání s homogenními analogy, což se projevuje prodlužováním reakčních dob. Studium imobilizovaných katalyzátorů tak může pomoci v lepším poznání vlastností těchto katalyzátorů a v ideálním případě může vést k jejich širšímu využití, zejména v průmyslovém měřítku, kde dosud hrají spíše okrajovou roli.

Experimentální práce diplomanta spočívala v přípravě nového polymerního nosiče, definovaného chirálního ligandu, jeho připojení na polymerní nosič a konečné vytvoření imobilizovaného katalyzátoru po přidavku dvojmocné mědi. Katalytické vlastnosti imobilizovaného katalyzátoru byly následně testovány na nitroaldolové reakci řady deseti aldehydů s nitromethanem. Výsledek tohoto testování je možné označit za vynikající, neboť bylo při katalýze imobilizovaným katalyzátorem dosaženo naprosto srovnatelných výsledků (výťažky, reakční doby i enantioselektivita, která je jen o něco málo horší) jako v případě použití dříve popsaného homogenního katalyzátoru. Zachování účinnosti katalyzátoru bylo prokázáno pro minimálně pět reakčních cyklů. Zajímavé by mohlo být i vyzkoušení jiných nitroalkanů, což by bylo doprovázeno vznikem dalšího stereogenního centra.

Práce je sepsána přehledným až úsporným způsobem, s minimem formálních chyb či překlepů, přesto jsem našel některé drobné chyby či nejasnosti, které však nesnižují celkovou úroveň diplomové práce. Namátkou uvádím následující:

Úvod V úvodu postrádám hlubší vysvětlení jednoznačného upřednostnění komplexů $\text{Cu}^{2+}/\text{Cu}^{1+}$ pro katalýzu testovací reakce. Proč jsou ionty mědi preferovány před ionty jiných kovů?

Str. 10 autor na tomto místě uvádí, cituji: „Asymetrická varianta Henryho reakce hraje významnou úlohu v organické syntéze 1,2- nitroalkoholů, které mohou být dále transformovány na 1,2-aminolcoholy, nitroketony α,β -nenasycené nitrosloucheniny.“ Je možné vysvětlit specifický význam asymetrické varianty Henryho reakce pro následné získání nitroketonů a α,β -nenasycených sloučenin?

Str. 12 nedává mi smysl termín „bazicky nabitý ligand“

Str. 26 hydrid sodný je v reakčním schématu popsán vzorcem „ NaH_2 “.

Str. 28 není zcela jasné, jakým způsobem byl stanovován enantiomerní přebytek příslušných (1S)-2-nitroethanolů, měl snad autor k dispozici standardy (1R)-2-nitroalkoholů pro nastavení metody separačního stanovení?

Za největší přínos diplomové práce považuji navržení a přípravu vlastní polymerní matrice, která naplnila a možná překonala očekávání ohledně přiměřené reakční doby, vysokých výtěžků reakce a celkem dobrých enantiomerních přebytků. Při užití imobilizovaného komplexu na komerčně dostupných nosičích probíhala testovací reakce výrazně pomaleji. Tím byl prokázán mimořádný vliv polymerního nosiče na celkové katalytické vlastnosti připraveného imobilizovaného katalyzátoru.

Cíl diplomové práce, tj. připravit a charakterizovat recyklovatelný katalyzátor využitelný pro asymetrickou Henryho syntézu, byl úspěšně splněn.

Diplomovou práci doporučuji k obhajobě a hodnotím ji jako výbornou.

V Pardubicích dne 28.5.2014

Posudek vypracoval:



Ing.Aleš Halama, Dr.

Zentiva k.s., R&D dep.