

# HODNOCENÍ DIPLOMOVÉ PRÁCE Bc. LUCIE PALOUŠOVÉ

## "Recyklovatelný katalyzátor pro asymetrickou Henryho reakci na bázi derivátu imidazol-imidazolidinonu"

Diplomová práce Bc. Lucie Paloušové zabývající se studiem chirálních systémů s heterocyklickými motivy a jejich aplikace při asymetrické nitroaldolové kondenzaci a imobilizace na vhodný pevný nosič je zpracována ve standardním formátu Univerzity Pardubice. Úvod a teoretická část obsahují srozumitelně formulované cíle diplomové práce s návazností na předchozí bakalářskou práci/výzkum na ÚOCHT, přičemž samotná literární rešerše je zacílena na přípravu měďnatých komplexů 2-(pyridin-2-yl)imidazolidin-4-onů, jejich využití při asymetrické Henryho reakci a různých způsobech ukotvení na vhodný nosič.

V experimentální části a diskusi se autorka zabývala nejprve přípravou výchozích imidazol-2-karbalddehydů a jejich následnou kondenzací se stericky náročným chirálním amidem. Výsledkem pak byl vznik nového stereogenního centra, což vyžadovalo následnou separaci připravených diastereoizomerů pomocí sloupcové chromatografie (úspěšná pouze v případě sloučeniny **4a/4b**, pro které byla pomocí NOESY určena absolutní konfigurace). Takto získané imidazol-imidazolidinony byly dále úspěšně testovány jako katalyzátory při asymetrické Henryho reakci. Při porovnání ligandu **4a** a **4b** je patrné, že *trans* forma je daleko aktivnější jak z pohledu výtěžku, tak i enantiomerního přebytku připravených nitroethanolů, přičemž u **4a** bylo dosaženo vynikajících výsledků (výtěžky a ee až na výjimky kolem 90 %). Velkým přínosem je porovnání dosažených výsledků nejen s literaturou, ale i s výsledky předchozí bakalářské práce, ve které se autorka věnovala přípravě a katalytickým vlastnostem obdobných sloučenin. Poslední část syntetických prací pak byla věnována modifikaci funkčních skupin dvou vybraných kopolymerů - Merrifield<sup>TM</sup> a ST-VBC-TEG, které měly posléze sloužit jako vhodné nosiče pro ukotvení studovaného katalyzátoru **4a** pomocí thiol-enové "click reakce". Experimentální část a diskuse působí přehledným dojmem a veškeré připravené sloučeniny jsou dostatečně charakterizovány pomocí NMR, IR, MS či elementární analýzy; ve většině případů pak kombinací zmíněných metod. Oceňuji především použití různých syntetických postupů jak při modifikaci funkčních skupin používaných kopolymerů, tak i samotném ukotvení připravených imidazol-imidazolidinonů na takto modifikované nosiče.

K samotnému hodnocení bych si dovilil připojit pár připomínek a otázek:

- str. 18 - dvěma by mělo být nahrazeno dvěma
- str. 34 (a jinde) - co si autorka představuje pod pojmem "extra suchý DMF" a jak toho bylo dosaženo?
- při separaci diastereoizomerů **2a/2b** byla použita neúspěšně sloupcová chromatografie s více jak 30 druhy mob. fází. Byly použity i jiné metody dělení diastereoizomerů, pokud ne, tak proč?
- str. 50 a str. 62 - odkud se v produktu **9** bere síra, popř. jak by měl skutečně vypadat produkt reakce?
- str. 59 - výtěžek prvního kroku Metody A při modifikaci funkční skupiny u Merrifield<sup>TM</sup> a ST-VBC-TEG je v diskusi 95 resp. 93 %, avšak v experimentální části jen 63 resp. 79 %
- počet a typ donorů zapojených do koordinace k Cu(II) hraje do značné míry důležitou roli při studovaných katalytických aplikacích. Oproti známým Cu(II) komplexům s pyridinyl-

imidazolidinony (molekulové struktury, Obrázek 6, str. 22) jsou připravené sloučeniny **2a/2b** resp. **4a/4b** obohaceny o další donorní centrum. Má autorka představu jaké a kolik donorových atomů ze sloučenin **4a/4b** se tvorby komplexů účastní, popř. jaké je koordinační číslo či okolí Cu(II)? A co možnost tvorby hydrátu(ů) (Henryho reakce sice s bezvodým CuOAc, ale nesusušené prostředí a komponenty)? Proč nebyly provedeny pokusy o přípravu a charakterizaci samotných Cu(II) komplexů, které by poskytly souhrnné informace o struktuře a lepší možnost srovnání?

- vidí diplomantka uplatněné sloučenin **4a/4b** jako katalyzátorů i při jiných reakcích?

Celkově je předkládaná diplomová práce zpracována velmi kvalitně, neobsahuje prakticky žádné gramatické chyby či překlepy a působí uceleným a přehledným dojmem. Je patrné, že se diplomantka v tomto multioborovém tématu dobře orientuje a při jeho zpracování vynaložila nemalé úsilí (značné množství experimentů a rozličnost použitých analýz). Zároveň je nutno zmínit, že stanovené cíle byly (pokud to bylo možné) splněny a dozajista poskytly nové poznatky na poli imobilizace imidazol-imidazolidinonů, které se odrazí v dalším výzkumu.

Diplomovou práci hodnotím jako **VÝBORNOU** a **DOPORUČUJI** dále k obhajobě.

V Pardubicích dne 29.5.2017



Ing. Tomáš Chlupatý, Ph.D.  
Katedra obecné a anorganické chemie  
Fakulta chemicko-technologická  
Univerzita Pardubice