

Posudek bakalářské práce

Autor: Elena Shcherbachenko

Oponent: Mgr. Jiří Míšek, PhD.

Název bakalářské práce: **Charakterizace organozlatných sloučenin**

Předložená práce s názvem Charakterizace organozlatných sloučenin se zabývá, jak je patrné z názvu, charakterizací geminálních diaurovaných sloučenin pomocí metod hmotnostní spektroskopie. Katalýza zlatem prožívá v posledních deseti letech velký rozkvět. Nově připravené homogenní katalyzátory na bázi jedno a trojmocných zlatých komplexů umožňují složité transformace a přípravu strukturně bohatých sloučenin. Detailní porozumění reakčním mechanismům těchto přeměn je proto klíčovým úkolem umožňujícím vývoj nových efektivnějších katalyzátorů a nových reaktivit. Autorka se rozhodla charakterizovat geminální dizlatné komplexy, které byly v nedávné době objeveny jako důležité reakční intermediáty. Hmotnostní spektroskopie může nabídnout unikátní vhled do mechanismů chemických přeměn a laboratoř, ve které autorka vykonala svoji práci, patří k předním pracovištím zabývajících se těmito úkoly.

Samotná práce má přehledně formulovaný úvod do problematiky dizlatných katalytických intermediátů a použití hmotnostní spektroskopie k odhalování strukturních a reakčních mechanismů. Zejména oceňuji, že autorka velmi kriticky a nezaujatě zhodnocuje výhody a omezení hmotnostní spektroskopie pro výzkum reakčních mechanismů. Nasledují jasně definované cíle práce. Třetí část se sestává ze samotných výsledků a jejich diskuze. Autorka v rámci své bakalářské práce připravila sérii organozlatných komplexů reakcí zlatného prekurzoru s *ortho*, *meta* a *para* substituovanými boronovými kyselinami. Přítomnost dizlatných komplexů byla potvrzena pomocí hmotnostní spektroskopie s ionizací elektrosprejem. Následná selekce dizlatných iontů a jejich fragmentace v kolizní cele při různých kolizních energiích umožnila autorce stanovit relativní stability dizlatných komplexů. Tyto hodnoty použila autorka pro korelaci s Hammetovými substituentovými konstantami. Výsledné korelace byly použity k racionalizaci experimentálních pozorování. V sérii s *para* substituenty je zřetelná výrazná korelace stability komplexů s *para* sigma konstantami, což autorka velmi rozumně interpretuje tím, že elektrondonorní substituenty stabilizují mezomerním efektem dizlatné kationické struktury. Dále autorka porovnává *para* sérii s *ortho* sérií, kde je pozorován stejný trend, nicméně stabilita komplexů je celkově nižší. Autorka argumentuje sterickým efektem *ortho* substituentů, což je opět velmi přijatelné vysvětlení. Z téměř všech sérií vyčnívá kyano substituent, který nepodléhá hammetovským korelacím. Tento efekt je vysvětlován rozdílnou strukturou dizlatného komplexu. Toto tvrzení by nicméně mohlo být podpořeno dalšími experimenty. V práci dále následuje přehledná experimentální část, výstižný závěr a úplný seznam literatury.

Práce nicméně obsahuje některé drobné nedostatky. Na stránce 7 bych raději volil výraz “tyto sloučeniny” místo “tyhle sloučeniny”. Na stránce 9 je v textu odkaz na enantioselektivitu reakce popsané ve schématu 1, ten však neobsahuje data o enantioselektivitě. Na straně 10 ve schématu 3 se objevuje transmutace prvků, kdy uhlík v intermediátu E se stane dusíkem v intermediátu F a na straně 13 jsou v textu zmíněny meziprodukty G a H, ke kterým by se zřejmě hodilo nějaké schéma.

Celkově lze říci, že se jedná o velmi kvalitní práci. Autorka velmi systematicky a důkladně prozkoumala strukturu a reaktivitu dizlatných komplexů v plynné fázi a tím podstatně přispěla k poznání těchto důležitých reakčních intermediátů. Závěry této práce mohou posloužit jako výchozí bod pro navržení nových katalyzátorů a reakcí.

Z formálního hlediska práce splňuje všechny předpoklady a doporučuji ji tímto k obhajobě.

Dotazy:

Zkoumané komplexy byly připraveny v dichlormethanu a před samotným hmotníkovým experimentem zředěny acetonem. Jaký je vliv acetonu popř. jiných rozpouštědel na složení reakční směsi a stability dizlatných komplexů?

Jaký experiment byste navrhovala pro prokázání hypotézy, že kyano substituované komplexy nemají geminální dizlatnou strukturu?

V Praze dne 15.6.2014

Mgr. Jiří Míšek, PhD.