

## **Posudek oponenta na diplomovou práci Pavlína Křečkové „Palladiové katalyzátory deponované na nových silikátových materiálech,,**

Diplomová práce Pavlína Křečkové spadá svým zaměřením do oblasti vývoje, přípravy a aplikačního testování tzv. heterogenizovaných katalyzátorů využívajících anorganické porézní nosiče. Zadání práce zahrnovalo (i) přípravu delaminovaného dvoudimenzionálního zeolitu ITQ-2, (ii) dvoustupňovou povrchovou modifikaci tohoto zeolitu reakcí s (3-chloropropyl)triethoxysilanem a následně s 2-(*N,N*-diethylamino)ethylaminem, (iii) nanosení palladia (z roztoku octanu palladnatého) na povrch modifikovaného ITQ-2, (iv) aplikační testování katalyzátoru při Heckově reakci *n*-butyl akrylátu s brombenzenem, (v) studium mechanismu působení katalyzátoru v daném modelovém systému a (vi) charakterizaci použitého katalyzátoru s ohledem na možnost jeho recyklace.

Zadaný komplexní úkol autorka splnila. Byl připraven a v rámci možností charakterizován nový palladiový katalyzátor na bázi 2D zeolitu ITQ-2. Je zřejmé, že pro případnou publikaci výsledků by bylo třeba některé charakterizace doplnit (zejména adsorpční isotermy dusíku pro všechny materiály postupně rezultující při vícestupňové modifikaci ITQ-2), tak aby bylo možné lépe diskutovat např. výrazný pokles specifického povrchu doprovázející přechod od nemodifikovaného ITQ-2 k finálnímu katalyzátoru. Oponent si je nicméně vědom, že absence těchto dat v předkládané práci velmi pravděpodobně odráží nedostatek měřicího času na aparaturách pro měření adsorpce plynů. Připravený katalyzátor se ukázal jako aktivní při výše zmíněné Heckově reakci, přičemž optimalizací reakčního systému se podařilo dosáhnout jak vysokého výtěžku tak potlačení nežádoucí následné reakce. Analýza katalyzátoru po použití i test na katalytickou aktivitu filtrátu prokázaly, že v průběhu reakce dochází k částečnému vymývání palladia z nosiče a že sledovaná Heckova reakce probíhá zčásti jako homogenně katalyzovaný proces. Toto zjištění nikterak nesnižuje přínos presentované optimalizační studie.

Vlastní práce je ve své textové části přehledná a čtivá s minimem písařských překlepů a názvoslovných chyb (např. str. 20 struktura na Obr. 1.10 není derivátem dekalínu). V této souvislosti chci zejména ocenit úvodní část, kde se autorce velmi dobře podařilo seznámit čtenáře s důležitými aspekty mikro/mesoporézních materiálů a jejich aplikací v oboru heterogenizovaných katalyzátorů. Výhrady však mám k některým obrázkům a jejich popiskům:

1. IR spektra na Obr. 3.7 a 3.8 (str. 42 a 43) jsou nevhodně presentovaná (spektra splývají dohromady) Autorkou diskutovaná oblast  $680 - 730 \text{ cm}^{-1}$  není ve spektrech dostatečně čitelná.
2. Popisky pod jednotlivými soubory konverzních křivek jsou nepřesné (např. „stupeň konverze v modelové Heckově reakci“, na str. 47). Domnívám se, že Obr. 3.10, 3.11, 3.12 a 3.13 ukazují „stupeň konverze *n*-butyl akrylátu na *n*-butyl cynamát v závislosti na reakčním čase“ Obr. 3.14 pak ukazuje „stupeň konverze *n*-butyl akrylátu na *n*-butyl 3,3-difenylakrylát v závislosti na reakčním čase“. Specifikace konvertované složky a produktu je nezbytná z těchto důvodů: (i) reakční násada nekopírovala stechiometrii reakce a (ii) studovaný proces

představuje soubor následných reakcí při kterých autorka analyzovala časový nárůst zastoupení (žádaného) meziprojektu a (nežádoucího) finálního produktu. Navrhuji, aby autorka provedla opravu popisků ke konverzním křivkám na výše uvedených obrázcích formou opravného lístku.

### **Náměty do diskuse:**

- Autorka krátce zmiňuje že v případě ITQ-2 byla dosažena výrazně vyšší účinnost při modifikaci pomocí 2-(*N,N*-diethylamino)ethylaminu než v případě síta SBA-15. Jaká je příčina tohoto experimentálního zjištění?
- Při katalytických experimentech autorka pozorovala zhruba desetiprocentní výluh Pd do kapalné fáze reakční soustavy. Byla studována dlouhodobá stabilita katalyzátoru i v systémech bez reakčních složek (t.j. katalyzátor/rozpouštědlo)?

Přes výše uvedené spíše formální nedostatky práce Pavlíný Křečkové jednoznačně splňuje nároky kladené na diplomovou práci, a proto ji doporučuji k přijetí.

V Praze dne 28. 5. 2012

Doc. RNDr. Jan Sedláček, Dr.