

A bírálóbizottság értékelése

Kégl Tamás doktori munkájának célja karbonilezési reakciókhoz használható hatékony katalizátorok hatásmechanizmusának megértése, és új katalizátorok tervezése, melyhez jelentős mértékben alkalmazta a számítógépes kémiát.

Kísérleti munkákkal jó összhangban lévő eredményei az alábbiak szerint foglalhatók össze:

(A) A dikobalt-oktakarbonil katalizálta diazokarbonilezés mechanizmusát vizsgálva előállította és jellemezte a reakció köztitermékeit, és vizsgálta különböző szubsztrátok, továbbá karbonil ligandumok cseréjének hatását. A reakciók kinetikai leírása mellett feltérképezte azok mechanizmusát, valamint összehasonlította a nikkel-tetrakarbonil által katalizált reakciók mechanizmusával.

(B) Jellemezte kumulált kettős kötésű ligandumokat tartalmazó átmenetifém-komplexek koordinációját. Igazolta, hogy a karbén hidas kobalt-komplexek fluxionális viselkedést mutatnak.

(C) Kimutatta, hogy a platina-katalizált hidroformilezés sebességmeghatározó lépése az olefin beékelődése. Megállapította, hogy a számított és a kísérleti regio- és enantioszelektivitás jó egyezést mutat, valamint, hogy az abszolút konfiguráció megváltozásának hőmérséklete a 4-szubsztituált sztirol szubsztituensének Hammett-konstans értékétől függ és a korreláció lineáris a platina körüli atomok elektronsűrűségével. Bemutatta, hogy a platina és a triklorosztannát ligandumok között szigma-donor kölcsönhatás valószínűsíthető, valamint hogy a ligandum a transz-helyzetű csoportok aktiválásában gyengébb hatású a ciano ligandumnál.

(D) A palládium-katalizált karbonilatív kapcsolási reakciókban igazolta, hogy a cserereakciókban a legstabilabb az egyetlen PPh_3 ligandumot tartalmazó származék. Megállapította, hogy a 4-szubsztituált jódbenzolok aminokarbonilezésének sebessége az elektronvonzó szubsztituens hatására megnő.

(E) A foszfor-donor ligandumok elektronikus hatásait tanulmányozva megállapította, hogy különböző karbonil-komplexekben a karbonilcsoport vegyértékrezgése lineárisan korrelál számos molekuláris paraméterrel.

A bírálóbizottság Kégl Tamás valamennyi tézisét elfogadta és az azokban lefektetett tudományos eredményeket eredetinek és értékesnek ítélte. Eredményei közül kiemelendő az acetoxi szubsztituensre eddig hibás Hammett konstans korrekciója, valamint a foszfor-donor ligandumok elektronikus hatásai során kapott lineáris korrelációk.