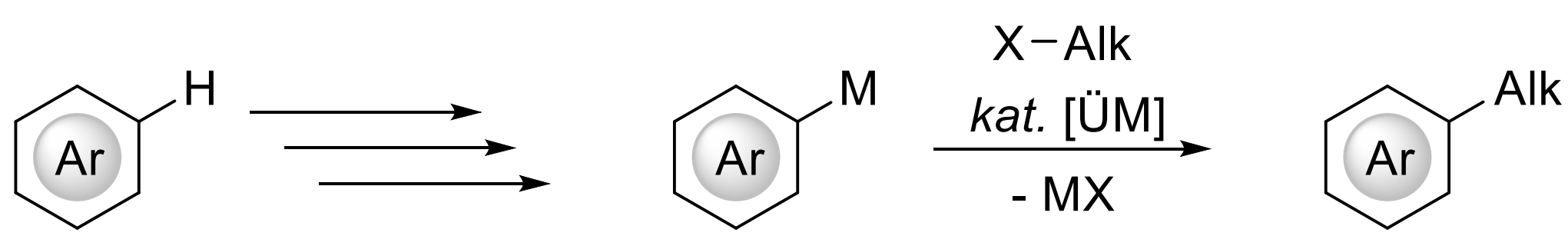


Green Chemistry

C–H-Aktivierung unter die Lupe genommen

Motivation und Fragestellung

Traditionelle Funktionalisierung:



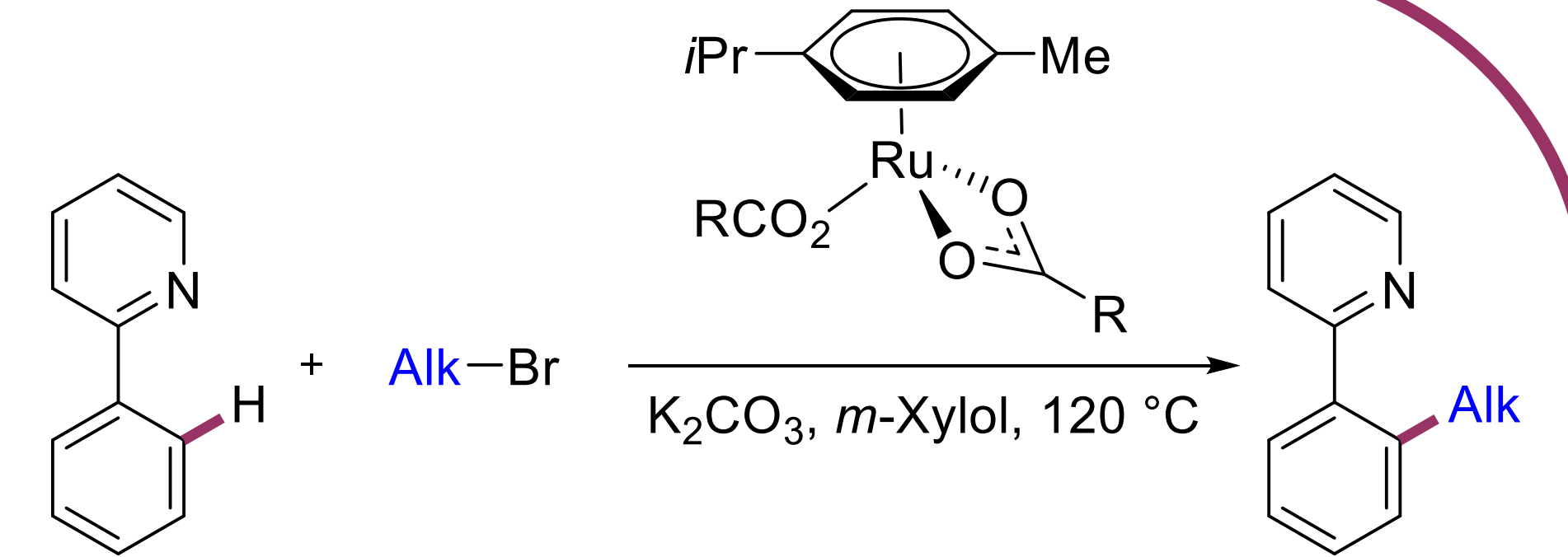
- Wichtiger Syntheseweg unter anderem in der Arzneimittelherstellung
- ➔ Traditionelle Funktionalisierung: Kreuzkupplung mit vielen Reaktionsschritten

Forschung:

- Forschungsansatz: C–H-Aktivierung als Alternative

➔ Umfasst nur einen Reaktionsschritt

➔ Vorteilhafter hinsichtlich Wirtschafts- und Umweltaspekten



- Forschungsfrage: *Wie sieht der Mechanismus dieser Reaktion aus?*
- ➔ Fördert Verständnis des Reaktionstyps

Praktischer Ansatz - kinetische Studien

Vorgehensweise:

- Durchführung der Reaktion unter Stickstoff-Atmosphäre
- Variation der eingesetzten Stoffmengen des Katalysators und der Ausgangsstoffe
- Regelmäßige Probeentnahme aus dem Reaktionsgefäß zur Analyse



- Isolation des Produktes
- Chromatographische Analyse zur Umsatzbestimmung
- NMR-spektroskopische Analyse zur Strukturaufklärung

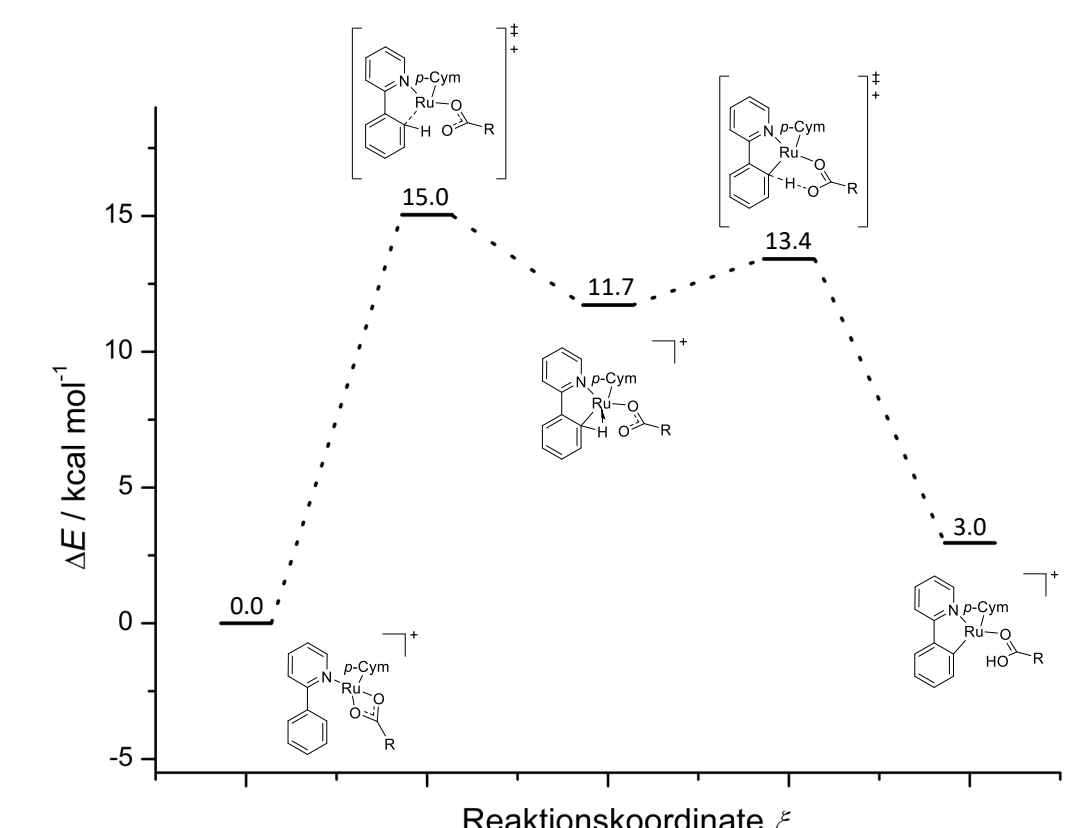
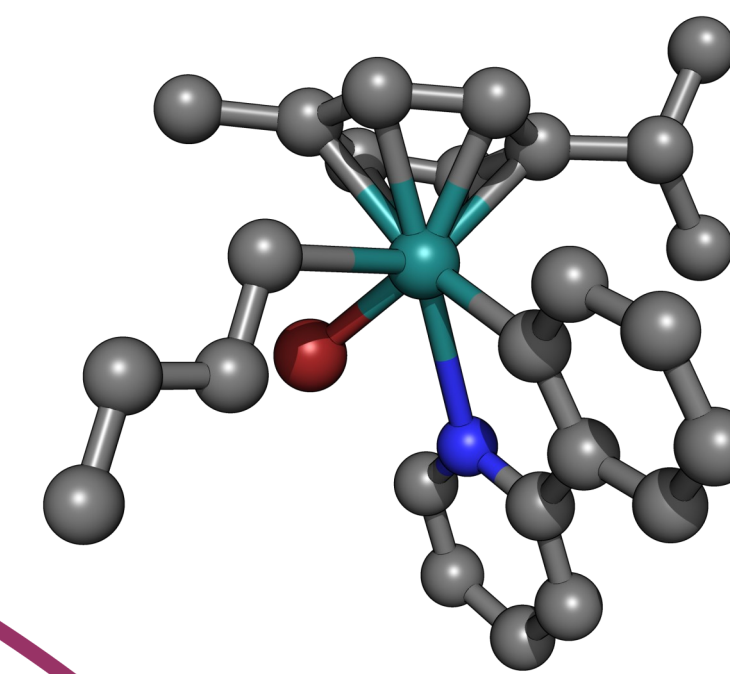
Auswertung:

- Softwaregestützte Auftragung der Messpunkte
- ➔ Bestimmung der Produktbildungsraten
- ➔ Bestimmung der Reaktionsordnungen
- Rückschlüsse auf möglichen Reaktionsmechanismus

Theoretischer Ansatz - Computerchemie

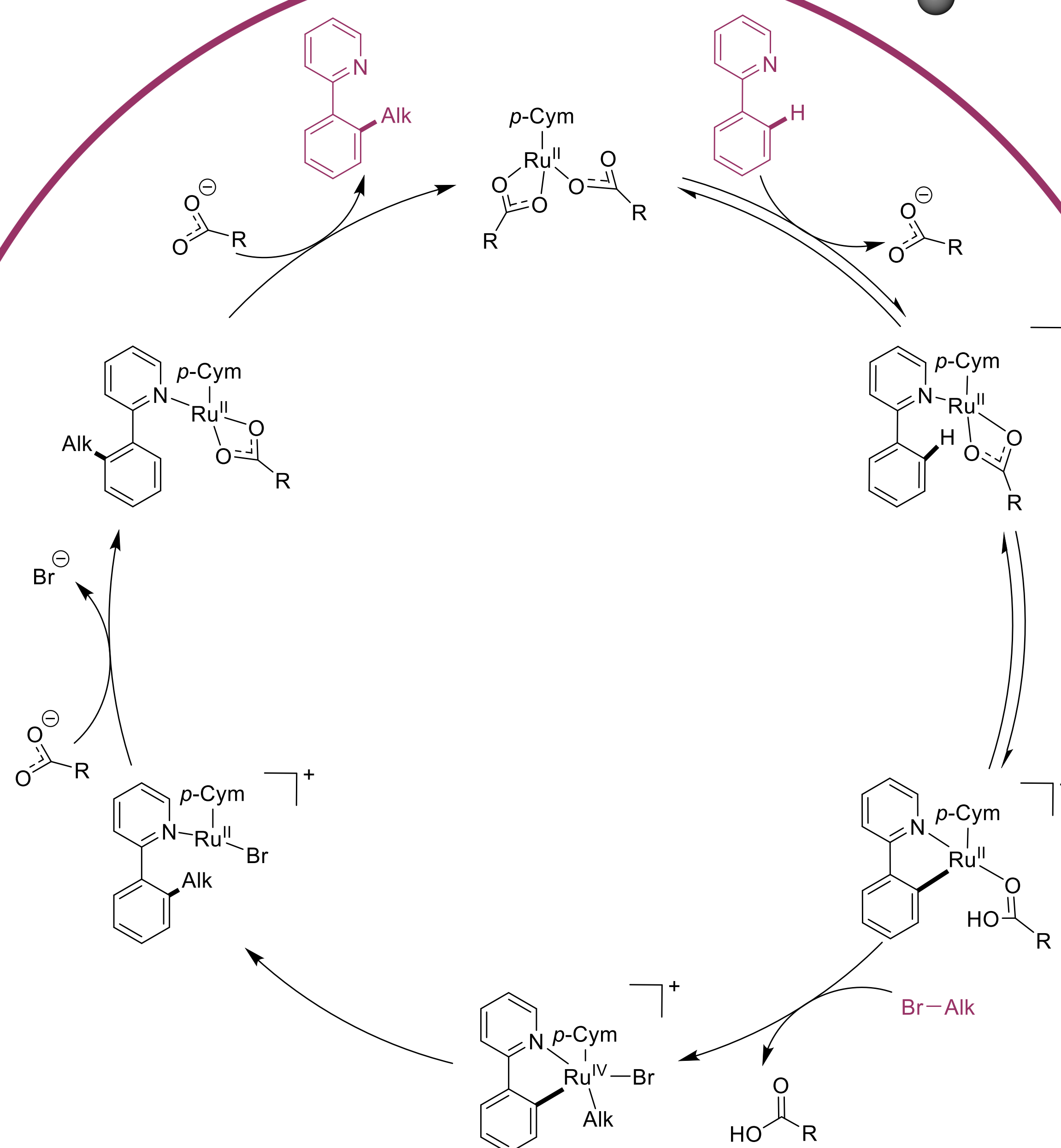
Vorgehensweise:

1. Aufstellung plausibler Reaktionsmechanismen
2. Modellierung und Strukturoptimierung der resultierenden Zwischenstufen (Intermediate)
3. Berechnung der jeweiligen Energie der Strukturen
4. Suche nach plausiblen Übergangszuständen zwischen den Intermediaten



Auswertung:

- Berechnung der Schwingungsfrequenzen des Moleküls
- ➔ Identifikation von Übergangszuständen
- Überprüfung der chemischen und physikalischen Plausibilität
- Validieren der relativen Energien der Strukturen



Ergebnisse & Ausblick

- Zusammenführung der praktischen und theoretischen Ergebnisse zum gezeigten Reaktionszyklus
- Teilschritte des Zyklus konnten mit Hilfe der durchgeführten Berechnungen untermauert werden
- Experimentell bestimmte Reaktionsordnungen sind mit dem oben dargestellten Mechanismus konform
- Zusätzlich zum erwarteten *ortho*-Produkt wurde im Verlauf der Reaktionsuntersuchungen auch das *meta*-Produkt identifiziert
- ➔ Zur Aufklärung des Bildungsverhältnisses beider Produkte sind weitere Analysen notwendig
- Die Ergebnisse schließen einen radikalischen Mechanismus nicht aus

Wir bedanken uns herzlich bei unseren Betreuern Prof. Dr. Ackermann, Michaela Bauer, Marc Moselage, Torben Rogge und Daniel Zell für die Ermöglichung des Projektes.

Unsere Forschungsgruppe: Laura Brinkmann, Jonas Dickmanns, Lara Dohmen, Hendrik Flegel, Matthieu Haake, Simon Karnbrock, Alexander Knoll, Isaac Maksoo, Simon Maroldt, Sotirios Pavlidis, Katharina Thien.