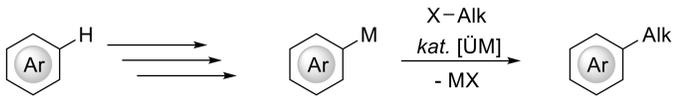


Green Chemistry

C–H-Aktivierung unter die Lupe genommen

Motivation und Fragestellung

Traditionelle Funktionalisierung:



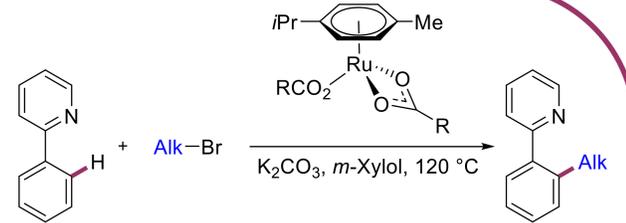
- Wichtiger Syntheseweg unter anderem in der Arzneimittelherstellung
- ➔ Traditionelle Funktionalisierung: Kreuzkupplung mit vielen Reaktionsschritten

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

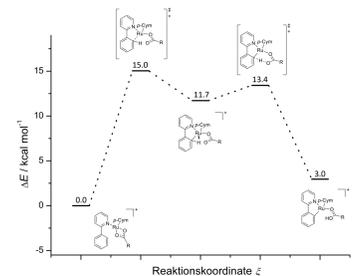
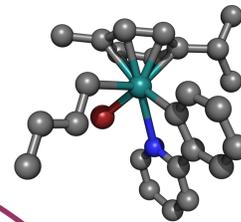
Auswertung:

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

Theoretischer Ansatz - Computerchemie

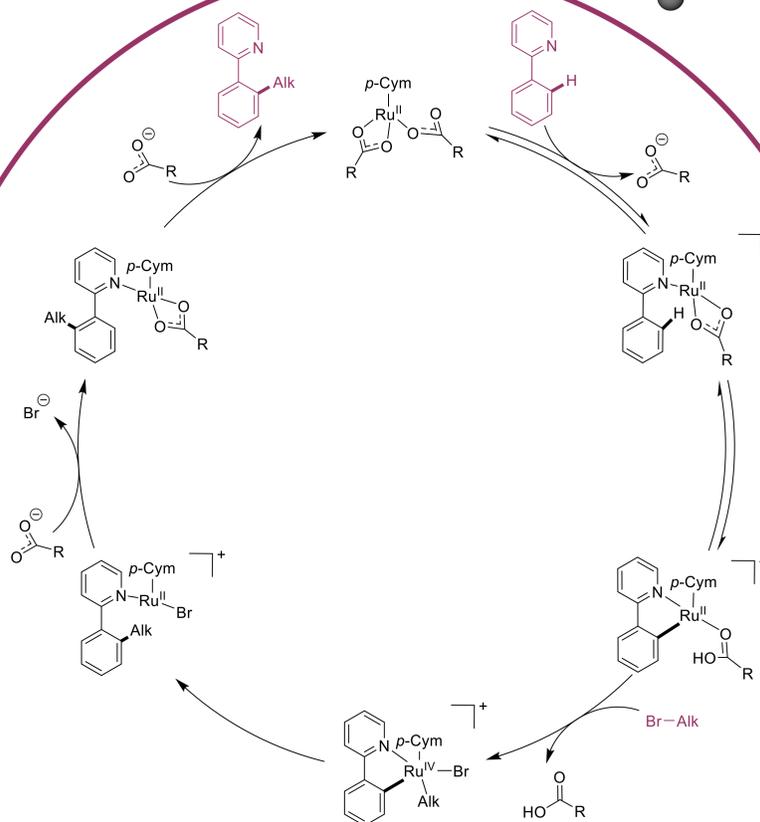
Vorgehensweise:

- Aufstellung plausibler Reaktionsmechanismen
- Modellierung und Strukturoptimierung der resultierenden Zwischenstufen (Intermediate)
- Berechnung der jeweiligen Energie der Strukturen
- 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