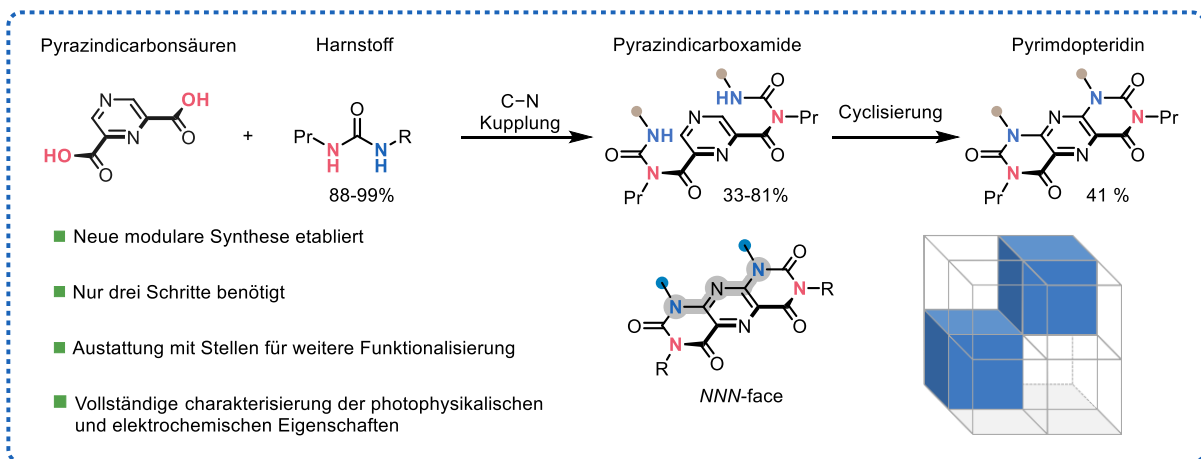


Synthese und Charakterisierung von modularen Pyrimdopteridin Photoredox-Katalysatoren

Photoredoxkatalysatoren sind Moleküle, die lediglich durch Lichtbestrahlung chemische Reaktionen beschleunigen, ohne dabei selbst verbraucht zu werden. Aufgrund dieser Eigenschaften wird die Photoredoxkatalyse als eines der vielversprechenden grünen Forschungsgebiete der Chemie angesehen. Eines der noch weniger erforschten Gebiete der Photoredoxkatalyse ist die asymmetrische Photoredoxkatalyse.

Der Arbeitskreis von Dr. Pospesch hat bereits gezeigt, dass Pyrimdopteridine (PPTs) ausgezeichnete Photoredox-Katalysatoren sind und verschiedene Reaktionen wie C–C, C–N C–O, und C–H Bindungsbildung ermöglichen. Es wurde angenommen, dass durch eine strategische Modifizierung der PPTs mit abstoßenden oder attraktiven Wechselwirkungen asymmetrische Synthese ermöglicht werden kann. Um die Modifizierbarkeit zu gewährleisten, musste die bestehende Syntheseroute für PPTs grundlegend überarbeitet werden.

Im ersten Schritt wurden dafür 1,3-disubstituierte Harnstoffe als zentrale Bausteine synthetisiert. Diese wurden daraufhin mit Pyrazindicarbonsäuren zu Pyrazindicarboxamiden gekoppelt. Eine abschließende Cyclisierung lieferte die modularen PPTs. Dieser neue Syntheseweg ermöglicht den Zugang zu modifizierbaren PPTs in nur drei Schritten und eröffnet damit die Möglichkeit, PPTs für asymmetrische Synthesen einzusetzen.



Schema 1: Überblick der Synthese.

Durch die Optimierung der Reaktionsbedingungen der einzelnen Schritte konnte ein tiefes Verständnis der zugrundeliegenden Mechanismen gewonnen werden. Darüber hinaus wurden die photophysikalischen und elektrochemischen Eigenschaften dieser neuen Klasse von PPTs mittels UV-VIS-Spektroskopie und Cyclovoltmetrie bestimmt. Daraufhin konnte festgestellt werden, dass die für die Photokatalyse notwendigen Eigenschaften durch die Funktionalisierung nicht beeinträchtigt werden. Die Ergebnisse dieser Arbeit bieten Einsichten zur Weiterentwicklung der Photoredoxkatalyse und öffnen die Möglichkeiten für die Verwendung von PPTs in asymmetrischen Synthesen.