

DISSERTATION DER MATHEMATISCH-NATURWISSENSCHAFTLICHEN FAKULTÄT

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät

Institut für Chemie

Fachgebiet: Chemie

Betreuer: Prof. Dr. Johannes de Vries

M.Sc. Ronald Alvaro Farrar Tobar

(e-mail: ronaldfarrar@gmail.com)

Selective Hydrogenation and Transfer-Hydrogenation reactions

This dissertation describes the research on catalysts active for the selective transfer hydrogenation (TH) of α,β -unsaturated carbonyl compounds using EtOH as H_2 source as alternative to commonly used iPrOH. A handy protocol for reducing α,β -unsaturated ketone and aldehyde compounds using a commercially available homogeneous ruthenium catalyst is described and applied in the reduction of interesting renewable substrates. Furthermore, a base-free iron based protocol is designed and optimized for the novel TH of ester compounds using EtOH as H_2 source. With this protocol, very relevant substrates in renewable chemistry are smoothly reduced. The scope includes substrates like adipic acid dimethyl ester and even a polyester. In addition, the chemical activity of new single rhodium atoms on Al_2O_3 was explored. Using limonene as a model compound, only the terminal olefin was hydrogenated highlighting the selective character of the catalyst.

Selektive Hydrierungen und Transfer-Hydrierungen

Diese Dissertation beschreibt Untersuchungen an Katalysatoren zur selektiven Transferhydrierung (TH) von α,β -ungesättigten Carbonylverbindungen. Insbesondere wird die Anwendbarkeit von Ethanol als alternative Wasserstoffquelle zu dem weitverbreiteten iPrOH beschrieben und diskutiert. Weiterhin wird ein effizientes Protokoll für die Reduktion von α,β -ungesättigten Ketonen und Aldehyden mit einem kommerziell verfügbaren homogenen Ruthenium-Katalysator beschrieben und auf bio-basierte Substrate angewendet. Weiterhin wurde auf einen Homogenen Eisen-Katalysator beruhendes Basen-freies Protokoll für die bis dahin unbekannte TH von Carbonsäureestern entwickelt, das ebenfalls Ethanol als Wasserstoffquelle einsetzt. Mit diesem Protokoll können relevante Substrate aus erneuerbaren Ressourcen reduziert werden. Darüberhinaus war es möglich auch einen Polyester zu den korrespondierenden Diolen zu depolymerisieren. Zusätzlich beschreibt die vorliegende Arbeit, die katalytische Aktivität von Rhodium-Single-Atom Katalysatoren, in der Reduktion von Olefinen. Es war möglich bei der Modellverbindung Limonen nur die terminale Olefinbindung zu hydrogenieren, was den Selektiven Charakter des Katalysators unterstreicht.