

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät

Institut für Chemie

Fachgebiet: Homogeneous Catalysis

Betreuer: Prof. Dr. Matthias Beller

M. Sc. Thomas Leischner

(e-mail: Thomas.Leischner@catalysis.de)

Molybdenum Pincer Complexes: Synthesis and Application in Catalytic Hydrogenations

The thesis in hand describes the synthesis of novel molybdenum pincer complexes and their application as catalysts for the homogeneous hydrogenation of unsaturated organic molecules. PNP-type pincer ligands with aliphatic backbones were a focal point in this respect, as related molybdenum complexes and their catalytic properties were previously only scarcely explored. A synthetic methodology for the preparation of such organometallic compounds was developed, giving access to diverse Mo(0), Mo(I) and Mo(II) compounds. In a first catalytic protocol, the reduction of acetophenones and styrenes to the corresponding alcohols and alkanes, catalyzed by a Mo(I) complex, is described. Subsequently, employing the same catalyst, we developed a highly selective hydrogenolysis of N-methylated formanilides to amines and alcohols via C–N bond cleavage. Finally, we reported a selective hydrogenation of aromatic and aliphatic nitriles to the respective primary amines, catalyzed by a Mo(0) complex.

Die vorliegende Arbeit beschreibt die Synthese neuartiger Molybdän-Pincer Komplexe sowie deren Anwendung als Katalysatoren für die homogenkatalytische Hydrierung ungesättigter organischer Verbindungen. Der Einsatz von PNP Pincerliganden mit aliphatischem Ligandenrückgrat stand hierbei im Vordergrund, da entsprechende Molybdänverbindungen sowie deren katalytische Eigenschaften bisher nur wenig untersucht wurden. Zunächst wurde eine Synthesestrategie zur Herstellung solcher Komplexverbindungen entwickelt und so Zugang zu verschiedenen Mo(0)-, Mo(I)- und Mo(II)-Komplexen erhalten. In einer ersten Publikation wurde die Hydrierung verschiedener Acetophenone und Styrole zu den korrespondierenden Alkoholen und Ethylbenzolen mittels eines Mo(I)-Katalysators beschrieben. Nachfolgend, unter Verwendung des gleichen Mo-Komplexes, wurde eine hochselektive Hydrogenolyse N-methylierter Formanilide via C–N Bindungsspaltung entwickelt. Abschließend konnten wir die Eignung eines auf Molybdän(0) basierenden Katalysatorsystems für die selektive Hydrierung aromatischer und aliphatischer Nitrile zu den entsprechenden primären Aminen demonstrieren.