

Fe-OIPh katalizát oxidációs reakciók (CH-aktiválás, oxigénatom transzfer)

Catalytic oxidation reactions of Fe-OIPh (CH-activation, oxygen atom transfer)

Dr. KAIZER József¹, Dr. LAKK-BOGÁTH Dóra¹, PINTARICS Dénes¹, TÖRÖK Patrik¹

PANNON EGYETEM, Mérnöki Kar, Természettudományi Központ,
Bioszerves és Biokoordinációs Kémia Kutatócsoport¹
H-8200 Veszprém, Wartha V. utca 1.
E-mail: pintarics.denes@gmail.com

ABSTRACT

The field of bioorganic chemistry has a rich history of investigating synthetic reactive intermediates that replicate the active centers found in enzymes. These biomimetic models are typically created by utilizing oxidizing agents with heme or non-heme iron-containing complexes. Various non-heme iron-oxygen intermediates had already been unveiled by scientists both in natural and synthetic enzymes. The behavior of these intermediates are different, and in some cases it even shows a dual so-called ambiphilic nature, since electrophilic (such as oxygen atom transfer) and nucleophilic reactions can be interpreted through them.

In our research, we examined the catalytic oxidation reactions of the Fe(III)-PhIO adduct formed in situ using $[\text{Fe}^{\text{II}}(\text{PBI})_3](\text{CF}_3\text{SO}_3)_2$ precursor complex (where PBI is 2-(2-pyridyl)-benzimidazole and PhIO is iodosylbenzene), with various substrates such as thioanisole and triphenylmethane, in combination with co-ligands like pyridine and 4-pyridine derivatives. We identified the products of these catalytic reactions using GC-MS and calculated the corresponding yield values, and proposed plausible mechanisms for these reactions.

Keywords: catalysis, oxidation, PhIO, oxygen atom transfer, bioinspired reactions

ÖSSZEFOGLALÓ

A bioszerves kémia tudományterülete már régóta kutatja az enzimek aktív centrumát leutánzó szintetikus reaktív intermediereket. Ilyen modelleket állíthatunk elő hem vagy nem-hem vastartalmú komplexekből, oxidálószerrel felhasználásával. Különböző nem-hem típusú vas-oxigén szerkezetű intermediereket azonosítottak már természetes és szintetikus enzimekben. Ezen intermedierek viselkedése eltérő, némely esetben pedig akár még kettős ambifil jellegűt is mutat, mivel értelmezhetőek rajtuk keresztül elektrofil (ilyen az oxigénatom transzfer is), és nukleofil reakciók is.

Munkánk során a $[\text{Fe}^{\text{II}}(\text{PBI})_3](\text{CF}_3\text{SO}_3)_2$ (PBI=2-(2-piridil)-benzimidazol) komplexből in situ körülmények között generált jodozil-benzol addukt katalitikus oxidációs reakcióit vizsgáltuk, különböző szubsztrátumokkal (tioanizol, trifenilmetán) és koligandumokkal (piridin és 4-piridin származékokkal). A katalitikus reakciók termékeit GC-MS-sel azonosítottuk és a hozam értékeket kiszámoltuk és javaslatot tettünk a lehetséges reakciómechanizmusra.

Kulcsszavak: katalízis, oxidáció, PhIO, oxigénatomtranszfer, bioutánzó reakció

Köszönetnyilvánítás: Köszönjük a támogatást a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatalnak (OTKA K142212 (K. J.) és TKP2021-NKTA-21).