

## Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Aktivität von Mangan-Guanidin-Komplexen in der Epoxidierung olefinischer Substrate eingehend untersucht. Neben literaturbekannten Liganden wurden 18 neue polyfunktionelle Guanidinliganden synthetisiert und der Einfluss der Ligandensubstituenten auf die katalytische Aktivität und Selektivität analysiert. Des Weiteren konnten mit den Guanidin-Chinolinliganden DMEGqu, TMGqu und TEGqu insgesamt 16 neue mono- und polynukleare Mangan- und Eisen-Komplexe synthetisiert und strukturell charakterisiert werden, die neue Einblicke in das koordinationschemische Potenzial dieser Ligandenklasse erlauben.

Für die Epoxidierungsuntersuchungen wurden zunächst die Reaktionsbedingungen bezüglich Oxidationsmittel, Lösungsmittel, Manganquelle und Katalysatorbeladung optimiert. Als effizientestes Oxidationsmittel wurde hierbei Peressigsäure identifiziert. Anschließend wurde der Einfluss der Ligandenstruktur anhand der Epoxidierung von 1-Octen systematisch untersucht: dazu wurden die Zähigkeit, der Bisswinkel, die Guanidinfunktion sowie die Aminfunktion variiert. Für das ausgewählte DMEGepy/ $\text{Mn}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ -System wurde das Substratspektrum auf eine Vielzahl an chemisch interessanten Olefinen erweitert, die unterschiedliche elektronische Anforderungen an den Katalysator stellen. Im nächsten Schritt wurde die Kinetik der Epoxidierung mit dem DMEGepy/ $\text{Mn}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ -System näher studiert, wobei für die Reaktionsrate eine Abhängigkeit 1. Ordnung bezüglich der Konzentration des Oxidationsmittels festgestellt wurde. Bezüglich der Katalysatormenge ergibt sich eine Reaktionsordnung von 0.5. Die Substratkonzentration hingegen hat keinen Einfluss auf die Reaktionsgeschwindigkeit. Erste Untersuchungen zum ablaufenden Mechanismus mithilfe von EPR-, ESI/MS- und UV/Vis-Spektroskopie führten zu dem hypothetischen Modell einer polynuklearen höhervalenten aktiven Spezies.

Mit der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, dass polyfunktionelle Guanidinliganden hervorragend Mangan-Komplexe stabilisieren, die auch unter oxidativen und sogar sauren Bedingungen Epoxidierungsaktivität zeigen, was als Ausgangspunkt für daran anschließende Studien dienen wird. Somit konnte dieser Ligandenklasse mit starken neutralen N-Donoren ein neues Anwendungsgebiet in einem industriell relevanten Feld eröffnet werden.