



Título: ORGANOCATÁLISIS ASIMÉTRICA EN AGUA. SÍNTESIS ORIENTADA A LA DIVERSIDAD ESTEREOQUÍMICA DE N-HIDROXIAMIDINAS CÍCLICAS. ESTUDIO DE SU REACTIVIDAD.

Nombre: Prieto Ramírez, Mary Cruz

Universidad: Universidad de La Laguna

Departamento: Química orgánica

Fecha de lectura: 19/09/2017

Programa de doctorado: Programa de Doctorado en Química e Ingeniería Química por la Universidad de La Laguna

Dirección:

> **Director:** FERNANDO GARCÍA TELLADO

> **Codirector:** Pedro de Armas González

Tribunal:

> **presidente:** VICTOR SOTERO MARTÍN GARCIA

> **secretario:** Uwe Pischel

> **vocal:** JOSÉ CARLOS MENENDEZ RAMOS

Descriptores:

> QUIMICA ORGANICA

> CATALISIS

> FOTOQUIMICA

> ESTEREOQUIMICA Y ANALISIS CONFORMACIONAL

El fichero de tesis ya ha sido incorporado al sistema

> 365598_1008266.pdf

Localización: ORGANOCATÁLISIS ASIMÉTRICA EN AGUA. SÍNTESIS ORIENTADA A LA DIVERSIDAD ESTEREOQUÍMICA DE N-HIDROXIAMIDINAS CÍCLICAS. ESTUDIO DE SU REACTIVIDAD.

Resumen: El uso de agua como disolvente ofrece, en potencia, muchas ventajas entre las que cabe destacar, su precio, abundancia y no toxicidad. Por otra parte, las reacciones multicomponente son procesos químicos muy apreciados debido a la alta eficiencia química que llevan asociada. Sin embargo, son muy pocas las reacciones multicomponente publicadas en la literatura, hasta ahora, llevadas a cabo en medio acuoso. Es por ello que el diseño y desarrollo de nuevos sistemas multicomponentes, catalíticos y compatibles con la presencia de agua, que permitan acceder a pequeñas moléculas con una alta diversidad estructural y que además sean fácilmente escalables, es un tópico importante en síntesis orgánica. Siguiendo esta idea, hemos diseñado, desarrollado e implementado una versión multicomponente, organocatalítica en presencia de agua para la síntesis de unidades de γ -nitroalcanoato de alquilo altamente funcionalizadas (se generan 3 centros



estereogénicos consecutivos), de manera rápida, económica y con posibilidad de escalar a nivel de multigramo sin pérdida de eficiencia. La síntesis de éstas unidades de γ -nitroalcanoato orientada a la obtención de amidinas cíclicas de 5 miembros, nos ha permitido acceder a éstas estructuras mediante una reacción de hidrogenación, con una ciclación quimioselectiva del nitrógeno sobre el grupo ciano. Finalmente se logró incrementar el grado de funcionalización de las amidinas cíclicas con la introducción de un centro cuaternario mediante una reacción de C-alkilación. Asimismo, estas amidinas cíclicas son capaces de llevar a cabo una hidroxilación oxidativa aeróbica, mediante un proceso radicalario, generando los correspondientes derivados 3 γ -hidroxilados en excelentes rendimientos.

Así pues, la metodología desarrollada nos permite obtener una quimioteca de amidinas y N-hidroxiamidinas con un patrón diverso de topologías (ciclos sencillos de 5 miembros, bicíclos fusionados del tipo biciclo[4,3,0]nonano), tridimensionalidad (centros carbogénicos cuaternarios, centros estereogénicos con sustitución aromática, alifática u oxigenada), sustitución (anillos aromáticos, cadenas alquílicas funcionalizadas, éster alquílico, grupos hidroxilos terciarios) que nos permitan la exploración de regiones del espacio químico aún desconocido para las amidinas y descubrir nuevas anotaciones biológicas/farmacológicas para estos farmacóforos.