

Povzetek

V doktorskem delu smo razvili sintezne metodologije za pripravo novih 1,2-, 1,3- in 1,4-diaminskih kiralnih gradnikov na osnovi kafe. Iz teh diaminskih gradnikov smo v eni stopnji pripravili ustrezne bifunkcionalne tiosečninske in skvaramidne organokatalizatorje. V tako pripravljenih organokatalizatorjih je kafrin skelet edino kiralno ogrodje. Učinkovitost organokatalizatorjev smo preverili v asimetrični *Michaelovi* adiciji 1,3-dikarbonilnih nukleofilov na *trans*- β -nitrostirene. Kot najboljši organokatalizator se je izkazala spojina 3-((3,5-bis(trifluorometil)benzil)amino)-4-(((1*R*,2*S*,4*R*)-7,7-dimetil-1-(pirolidin-1-ilmetil)biciklo[2.2.1]heptan-2-il)amino)ciklobut-3-en-1,2-dion. S tem 1,3-diaminskim skvaramidnim bifunkcionalnim nekovalentnim organokatalizatorjem so reakcije odlično potekale, tako v organskih nepolarnih topilih, kot tudi v vodnem mediju z raznolikimi 1,3-diketoni in β -keto estri in z različno substituiranimi *trans*- β -nitrostireni. Produkti so večinoma nastali s 100% konverzijo po 24 h pri 25°C in z odličnimi enantiomernimi presežki ($\geq 96\%$). Posebej visoko enantioselektivnost ($\geq 99\%$ ee) smo opazili pri reakcijah z *orto*-monosubstituiranimi derivati *trans*- β -nitrostirena. Pri asimetrični reakciji med acetilacetonom in 2-Br-*trans*- β -nitrostirenom v toluenu-*d*₈ pri 302 K v prisotnosti 0.50 mol% katalizatorja je ustrezen produkt nastal kvantitativno v 80 min in z 99% enantiomernim presežkom. Ta katalizator odlikuje kratka petstopenjska sintezna pot iz komercialno dostopnih kemikalij ter njegova neobčutljivost na vodo in zrak. Osnovan je na 1,3-diaminskem kafrinem ogrodju, katerega sinteza omogoča pripravo velikega števila njegovih analogov. To ogrodje predstavlja nov privilegiran 1,3-diaminski kiralni gradnik na osnovi kafe, kar je zelo pomembno saj je velika večina uspešnih bifunkcionalnih organokatalizatorjev osnovanih na 1,2-diaminskih gradnikih.