

Kurzzusammenfassung

Diese Arbeit beschreibt eine kurze und effiziente Synthese des marinen Naturstoffs Pestalon, einem hochsubstituierten Benzophenon mit starker antibiotischer Aktivität. Darüber hinaus wurden einige Strukturanaloga hergestellt, welche nun für detaillierte biologische Untersuchungen zur Verfügung stehen. Die Totalsynthese dieses Naturstoffes gab Einblicke in die überraschende Neigung dieses und verwandter Moleküle, intramolekulare (photo- oder nucleophilinduzierte) Cannizzaro-Tishchenko-Reaktionen sowie intramolekulare Carbonyl-Olefin-Metathesen einzugehen, welche durch die intensiven Wechselwirkungen ihrer benachbarten funktionellen Gruppen und ihre verdrillten Strukturen verursacht wurden. Eine interessante Entdeckung war die direkte Umwandlung von Pestalon mit Ammoniak bei pH 8 in Pestalachlorid A, einen stark antimykotischen Metaboliten eines endophytischen Pilzes.

Abstract

This work describes a concise and efficient synthesis of the marine natural product pestalone, a highly substituted benzophenone with strong antibiotic activity. Moreover, some structural analogs were obtained additionally, which will now be entered into detailed biological studies. This total synthesis provided insights into the surprising tendency of this and related molecules to undergo intramolecular (photo- or nucleophile-induced) Cannizzaro-Tishchenko-type reactions and intramolecular carbonyl-olefin-metathesis, which were caused by the intense interaction of their functional substituents and their twisted structures. An interesting discovery was the direct conversion of pestalone by simple treatment with ammonia at pH 8 into pestalachloride A, a strongly antifungal metabolite isolated from an endophytic fungus.