

Kurzzusammenfassung

Die vorliegende Dissertation befasst sich mit der chemischen Synthese terpenoider Naturstoffe und neuen aminofunktionalisierten Analoga, die gemäß einer Arbeit von *Hergenrother* als potentielle Breitband-Antibiotika von Interesse waren. Neben der Entwicklung geeigneter Methoden zur Aminofunktionalisierung phenolischer Verbindungen, die zunächst an den Mono- bzw. Sesquiterpenen Carvacrol, Xanthorrhizol sowie 7-Hydroxycalamenen erprobt wurden, wurde eine effiziente, enantioselektive Total-synthese des Serrulatans 7-Hydroxyerogorgiaen sowie des Amphilectans 9-Desoxy-pseudopterosin Aglykon ausgearbeitet (8 bzw. 9 Stufen ausgehend von 3-Methoxy-4-methyl-styrol; 29% bzw. 30% Gesamtausbeute). Als C-C-verknüpfende Schlüsselschritte dienen hierbei eine Cobalt-katalysierte asymmetrische Hydrovinylierung, eine Pd-katalysierte *Suzuki*-Kreuzkupplung sowie diastereoselektive *Lewis*-Säure-vermittelte (kationische) Cyclisierungsreaktionen. Insgesamt wurden 15 neue Naturstoffderivate (Amine) hergestellt (z.T. als Mischung von Stereoisomeren), die dann bezüglich ihrer antibakteriellen Eigenschaften getestet wurden. Tatsächlich zeigten einige der Verbindungen eine sehr hohe Wirksamkeit, und zwar nicht nur gegen *Gram*-positive sondern insbesondere auch gegen *Gram*-negative Bakterienstämme. Hierdurch wurde die zugrundeliegende Arbeitshypothese eindeutig belegt.

Abstract

The present dissertation deals with the chemical synthesis of terpenoid natural products and new amino-functionalized analogues, which were of interest as potential broad-spectrum antibiotics according to a work by *Hergenrother*. In addition to the development of suitable methods for aminofunctionalization of phenolic compounds, which were initially carried out on the mono- or sesquiterpenes carvacrol, xanthorrhizol, and 7-hydroxycalamene, an efficient, enantioselective total synthesis of the serrulatane 7-hydroxyerogorgiaene and the amphilectane 9-deoxypseudopterosine aglycone was elaborated (8 and 9 steps, respectively, starting from 3-methoxy-4-methyl-styrene; 29% and 30% overall yield, respectively). Cobalt-catalyzed asymmetric hydrovinylation, Pd-catalyzed *Suzuki* cross-coupling, and diastereoselective *Lewis* acid-mediated (cationic) cyclization reactions serve as key C-C bond-forming steps here. A total of 15 new natural product derivatives (amines) were prepared (some as a mixture of stereoisomers), which were then tested for their antibacterial properties. Indeed, some of the compounds showed very high efficacy, not only against *Gram*-positive but especially also against *Gram*-negative bacterial strains. This clearly proved the underlying working hypothesis.