

面向世界科技前沿，面向国家重大需求，面向国民经济主战场，率先实现科学技术跨越发展，率先建成国家创新人才高地，率先建成国家高水平科技智库，率先建设国际一流科研机构。

——中国科学院新时期办院方针

当前位置：首页>新闻动态>科研动态

兰州化物所在可见光促进的羰基合成研究方面取得新进展

2017-09-11 | 【大 中 小】【打印】【关闭】

羰基合成化学是把石油化工基础分子转化成大宗化学品的支柱性技术，是资源、能源和环境领域的重要研究课题。以绿色合成与清洁转化为导向，发展含羰基化合物高值化转化的新体系是实现社会可持续发展的需要。

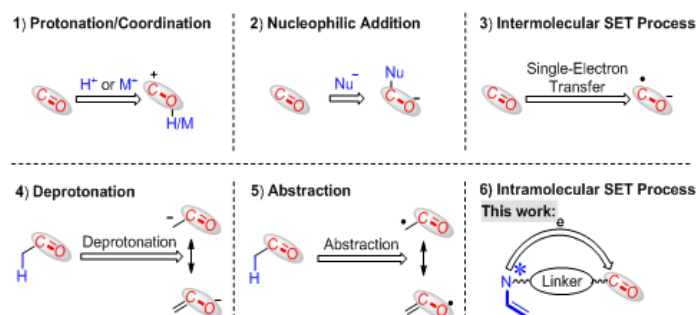


图1: 传统的羰基活化模式

建立含羰基化合物的新型转化反应的关键是基于现代合成化学和催化化学的概念，设计出新型羰基活化模式。图1展示了常见的羰基活化模式：1) 与质子和金属阳离子结合，得到碳正离子活性中间体；2) 经亲核加成，得到氧负离子活性中间体；3) 经单电子转移过程，得到碳自由基活性中间体；4) 经去质子化，得到 α -碳负离子活性中间体；5) 经氢原子攫取，得到 α -碳自由基活性中间体；6) 有别于上述五种传统的羰基活化模式。中国科学院兰州化学物理研究所羰基合成与选择氧化国家重点实验室苏毅进团队希望通过分子内单电子转移过程，产生活性有机双自由基中间体，用于介导新型羰基合成反应。

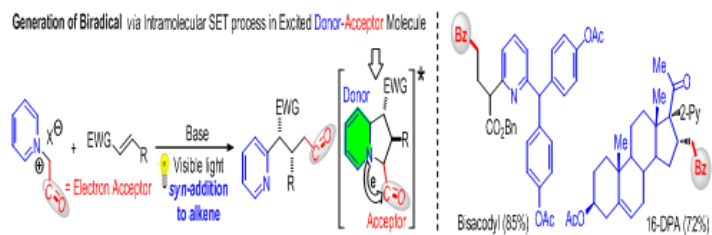


图2: 可见光促进的缺电子烯烃双羰基化反应

对上述多种羰基活化模式进行串联结合，可实现一系列的成键和断键过程，简洁合成出结构相对复杂的有机功能分子。图2所示，该团队最近使用N-芳基甲酰胺基溴化吡啶季铵盐作为目标含羰基化合物，通过结合去质子和分子内电子转移两种羰基活化模式，在可见光照射下，高区域和立体选择性地为基础化学分子——缺电子烯烃提供芳基乙酰基和2-吡啶基修饰。初步的机理研究表明，原位生成可见光敏的Donor-Acceptor Molecule（以光敏的1,2-二氢吡啶作为Donor，羰基作为Acceptor）是反应得以实现的关键步骤。

上述新型羰基合成反应为无金属参与的高效合成技术提供了一种新手段，用于药物分子研发过程可避免重金属污染问题。该反应适用于绝大部分的缺电子烯烃和N-芳基甲酰胺基溴化吡啶季铵盐，可用于药物分子的多样化衍生，为药物研发的高通量筛选环节提供物质基础，例如该反应可用于药物分子Bisacodyl和甾体类药物分子中间体16-DPA的后期高效羰基化修饰（图2）。该研究结果近期发表在《德国应用化学》上（Angew. Chem. Int. Ed., 2017, 56, 10877）。

以上工作得到了国家自然科学基金、中国科学院“百人计划”、兰州化物所人才项目和羰基合成与选择氧化国家重点实验室的长期支持。

来源：羰基合成与选择氧化国家重点实验室

» 评论



Copyright (©) 中国科学院兰州化学物理研究所*办公室 承制 版权所有
未经中国科学院兰州化学物理研究所书面授权，请勿转载或建立镜像，违者依法必究
地址 Add: 中国·兰州天水中路18号 邮编 P.C.: 730000
E-Mail: webeditor@licp.cas.cn 陇ICP备05000312号 Best view 1024*768 IE6.0

