



科研之窗

通知公告

学院新闻

科研之窗

学术活动

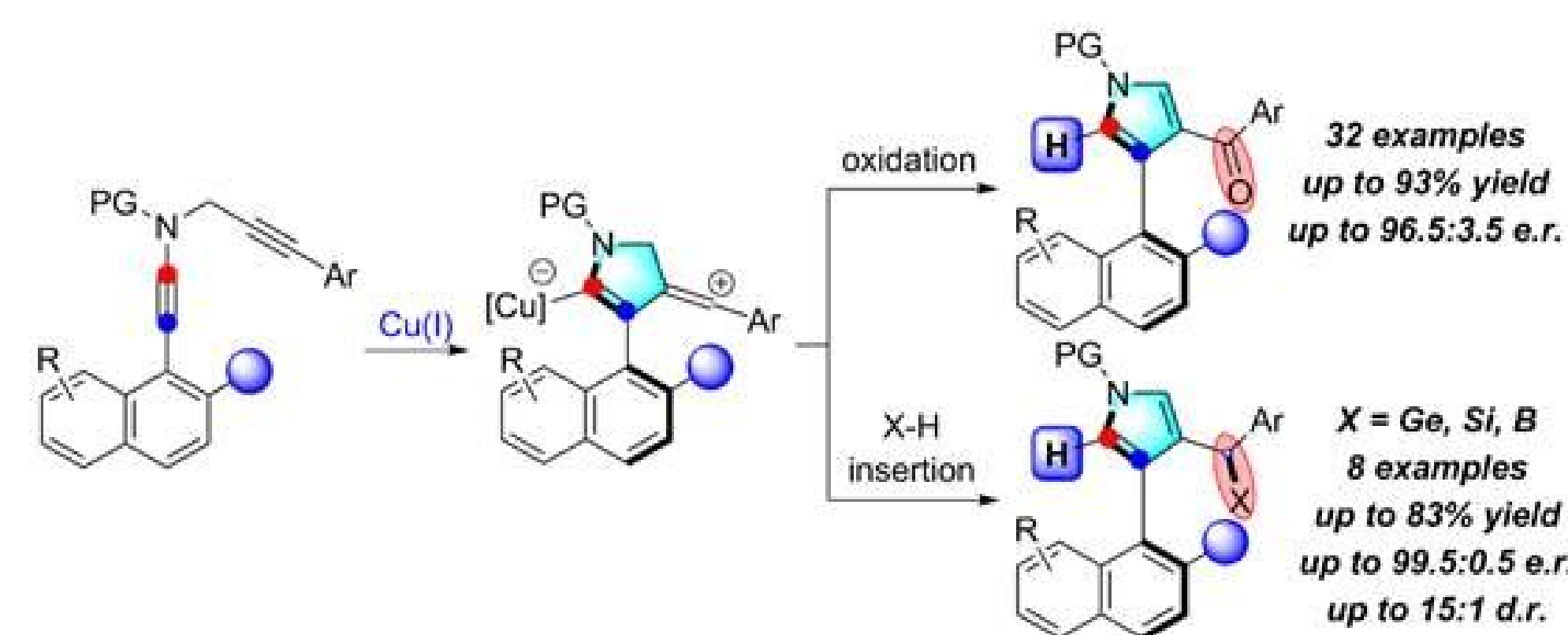
物资共享

首页 · 科研之窗 · 正文

## 基于炔酰胺的杂环合成方法学研究进展

发布日期:2023-05-04 浏览次数:636次

我院叶龙武和吕鑫教授课题组在基于炔酰胺的杂环合成方法学研究方面取得重要进展，相关成果以“Construction of Axially Chiral Arylpyrroles via Atroposelective Diyne Cyclization”为题于近日在线发表于 *Angew. Chem. Int. Ed.* (DOI: 10.1002/anie.202303670)，文章被选为VIP。



联芳基轴手性骨架广泛存在于天然产物与药物分子中，并被作为手性配体或催化剂应用于不对称催化领域。高效、高对映选择性地构建联芳基轴手性骨架是近年来轴手性化学的研究热点之一，但是目前的研究主要集中在六元环/六元环轴手性骨架的构建，其主要原因在于该类结构轴邻位阻基团的距离较近，从而有利于其手性结构的稳定保持。而对于更小环系的联芳基轴手性骨架，由于环系减小造成轴邻位阻基团的距离增大，从而使得这类结构具有更小的旋转能垒，不利于其手性的稳定保持。因此，高对映选择性地构建该类轴手性骨架极具挑战。

近日，叶龙武教授课题组基于先前课题组有关铜催化1,5-二炔不对称环化反应 (*J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, 16961; *J. Am. Chem. Soc.* **2020**, *142*, 7618; *Chem. Sci.* **2021**, *12*, 9466; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2022**, *61*, e202115554; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2022**, *61*, e202210637; *Chem. Sci.* **2023**, *14*, 3493) 的研究基础，通过配体控制的远程手性诱导策略，从萘基取代的1,5-二炔底物出发，以廉价金属Cu(I)作为催化剂，结合各类商业可得的手性双膦配体，通过串联氧化反应、X-H插入反应，高效高对映选择性地构建系列吡咯/萘基轴手性骨架。该反应具有以下特点：1) 首次实现了单取代3-吡咯/萘基轴手性骨架的高对映选择性构建；2) 首次通过二炔环化的模式构建轴手性骨架；3) 首次基于烯基阳离子中间体构建轴手性骨架；4) 具有良好的底物普适性，除发生串联氧化反应之外，也可发生串联Si-H, Ge-H, B-H插入反应，实现了包含多种手性中心的有机硅、有机锗、有机硼轴手性骨架构建；5) 通过密度泛函理论 (DFT) 计算，进一步明晰了该类环化反应的机理和不对称控制模式。

该研究工作在我院周波副教授、吕鑫教授和叶龙武教授的指导下，主要由叶龙武教授课题组2021级博士生陈阳波完成，并得到课题组其他研究生和本科生协助。理论计算部分由吕鑫教授课题组硕士生刘立高完成。特别感谢魏赞斌工程师协助完成单晶测试。研究工作得到国家自然科学基金委 (22125108, 22121001, 92056104)、厦门大学校长基金 (20720210002)、广东省催化重点实验室基金 (2020B121201002)、国家基础科学人才培养基金 (J1310024) 等资助。

论文链接: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/anie.202303670>

上一条: [编码多组分多肽纳米纤维的分...](#) 下一条: [光驱动铁离子诱导甲烷无氧偶...](#)