
异相铜纳米线催化剂攻克脂肪胺“易毒化”难题

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/37279.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

异相铜纳米线催化剂攻克脂肪胺“易毒化”难题。华东理工大学费林加诺贝尔奖科学家联合研究中心副教授赵杰课题组联合清华大学化工系副教授牛志强课题组，通过自主设计的异相铜纳米线催化剂，攻克了强配位脂肪胺易毒化催化剂这一长期存在的技术难题，展现了异相金属催化剂在有机转化反应中的应用潜力。相关研究成果近日发表于《德国应用化学》。

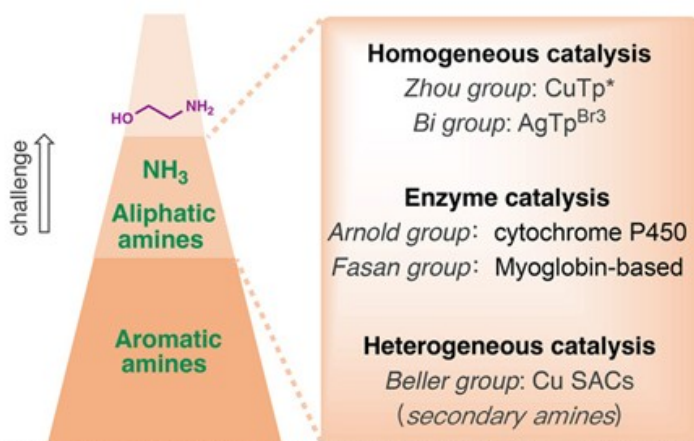
卡宾N-H键插入反应是构建C-N键的重要策略，可在多种胺类底物中实现高产率与高选择性转化。然而，脂肪胺因具备强配位能力，易导致金属催化剂失活。目前的应对策略主要依赖于大位阻配体的引入或工程酶提供的多重结合环境，在催化剂回收利用等方面仍存在一定局限性。

近年来，异相金属催化逐渐在卡宾N-H键插入反应领域展现出一定的应用潜力，且已在芳香胺的催化中取得良好效果，但针对脂肪胺的催化研究仍十分有限。课题组在前期研究中发现，胺基N-H键与催化剂表面磷(P)原子的有效配位可促进卡宾N-H键协同插入反应的进行，由此推断脂肪胺与多金属表面的强配位特性，有望为提升反应活性开辟新路径。

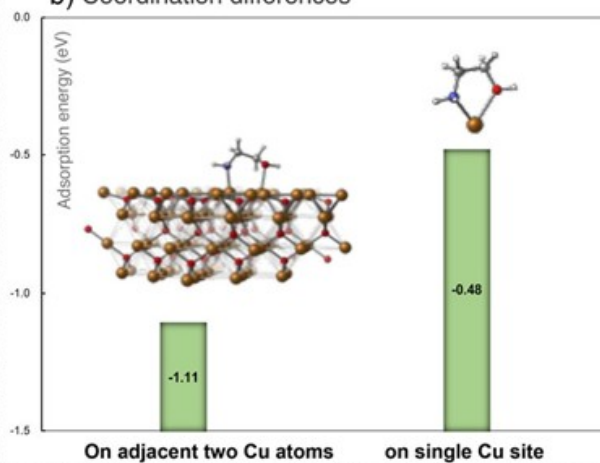
在此基础上，研究团队设计并制备了结构明确的异相铜纳米线催化剂。催化实验结果表明，该异相铜纳米线催化剂可高效催化不同类型 α -芳基重氮酯与脂肪胺的N-H键插入反应，产物收率可达中等至高水平。

研究团队分析发现，单乙醇胺与异相铜纳米线催化剂之间存在强配位作用。反应过程中，重氮酯与单乙醇胺这两种底物，以及异相铜纳米线催化剂均参与了反应的决速步。值得注意的是，反应速率对异相铜纳米线催化剂表现出二级依赖关系，表明有两个铜中心参与了决速步，其中一个铜中心与卡宾C配位，另一个铜中心与胺N结合。此外，带有给电子基团的胺反应速率显著慢于带吸电子基团的胺，该实验结果进一步佐证了卡宾N-H键协同插入的反应机理。（来源：中国科学报 江庆龄）

a) Carbene N-H bond insertion



b) Coordination differences



c) Design of this work

Carbene insertion with high coordinative aliphatic amines



卡宾N-H键插入反应研究背景、单乙醇胺配位理论研究及研究设计思路。图片由研究团队提供

相关论文信息：<https://doi.org/10.1002/anie.202517764>

作者：赵杰等 来源：《德国应用化学》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发