
化学所发展底物诱导组装大环超分子催化新策略

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/8386.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！

在酶催化过程中，当底物和酶相互接近时，能诱导酶的结构发生变化，使之与底物互相适应，进而促进相互结合。这种诱导-契合现象被认为是酶催化的重要特征之一，是酶催化具有高效率和高选择性的重要原因。与之相比，在人工催化体系中，对底物诱导-契合动态催化过程的研究较为少见。对上述过程的研究，可加深人们对催化过程及其本质的认识，为设计开发高效的人工催化体系提供重要思路。

最近，在国家自然科学基金委和中国科学院的支持下，中科院化学研究所分子识别与功能重点实验室研究员王其强团队，受酶催化诱导-契合机制启发，发展了底物诱导组装的仿酶协同不对称催化策略，实现了高效高选择性的脱羧曼尼希反应。他们设计合成了一系列四氨基双硫脲多功能手性大环，发现这些大环分子具有相对柔顺的构象，在硫酸根离子的诱导下能二聚组装。通过二聚组装，大环分子中的硫脲识别位点交互协同，同时形成一个手性开放口袋，多个叔胺位点位于口袋边缘。受此启发，他们将大环应用于催化环状醛亚胺与苯基 β -酮酸的脱羧曼尼希反应，设想经过亚胺底物原位诱导大环催化剂的二聚组装，触发形成高度互补的多重氢键活化网络，进而活化亚胺底物自身，实现高效高选择性催化。他们发现，对于一系列的亚胺和酮酸底物，仅需5 mol%的大环催化剂上载量，反应即可获得几乎定量的转化和高达95%ee值。一系列的键合研究、原位质谱监测、动力学实验、非线性效应、控制实验以及理论计算结果，为上述底物诱导组装的催化机制提供了有力支持。该策略为发展高效的协同不对称催化提供了新思路。

相关研究工作发表在近期的《德国应用化学》杂志上（[Angew. Chem. Int. Ed.](#) 2020, 59, 2623-2627），第一作者是博士生郭豪。

研究团队单位：化学研究所

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

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