**自然科学奖公示**

**项目名称：分子集群的自分类原理在构建碳/杂环合成中的应用研究**

**主要完成人：**吴安心、殷国栋、曹利平、佘能芳、髙蒙、祝艳平

**完成单位：**华中师范大学

**推荐单位：**华中师范大学

**项目简介：**该项目属“有机化学”学科中的“有机合成化学”与“超分子化学”领域。如何理性构建新的反应和实现天然产物分子的自组织全合成，这是化学研究领域中两个挑战性的课题。项目完成人在国家自然科学基金3个面上和1个重点项目的连续支撑下，历经十余年研究积累，从所揭示的分子集群自分类行为发端，到自分类反应网络新合成策略的提出，再到依据该原理指导碳/杂环结构体的理性构建与天然产物的自组织全合成，取得了一系列原创性成果。

**科学发现一**：新颖分子集群行为的揭示是开创新的学术生长点和新的学科分支的重要发端，也是了解微观分子自组织水平的重要媒介！小分子集群的自分类行为“self-sorting”是近年来继分子组装（self-assembly）、分子识别（self-recognition）等分子行为之后又一获得学术界广泛认可的新型分子自组织行为。有学者指出自组装、模板合成、自分类是近二十年来指导超分子化学研究的三个重要原理和概念（*Chem. Soc. Rev.* 2015, 44, 779），自分类集成原理已经成为实现复杂超分子结构体合成的广泛策略！项目完成人是最早明确提出并定义“自分类”概念的研究者之一（*Angew. Chem. Int. Ed.* 2002, 41, 4028；第一作者并署名合作单位兰州大学功能有机国家重点实验室），自2003年归国后，又相继揭示了多种分子自分类行为的新型表达形式：自分类识别、自分类重组、自分类等级组装、自分类串级反应！至今自分类行为的研究已成为超分子化学、表面化学、高分子化学、材料化学、生物化学及物理学等学科领域中新的生长点和出现频度极高的科学术语，项目完成人相关的论文也成为国际同行广泛引证的基础性文献，并被认为在自分类研究领域中做出了具有标志性的研究贡献(a landmark paper)和前瞻性的工作（*Org. Biomol. Chem*. 2012, 10, 4652）.

**科学发现二**：基于分子自分类原理提出了自分类多米诺反应网络的理论模式，揭示了一系列自分类反应网络的例证，实现了众多新反应的理性设计与构建。该成果被国际相关学者评论为揭示了一种新颖合成策略：“**MPCD合成策略**”（Multi-pathway Coupled Domino Strategy），或“**SSD合成策略**”（Self-Sorting Domino Strategy），认为是设计和构建新型有机反应的有效工具（*Chem. Commun.* 2014, 50, 13517；*RSC Adv.* 2015, 5, 46163）。

**科学发现三**：基于自分类构建原理，发现了以乙酰甲基二聚偶联成烯为**主干**的多样性导向反应系统，为数十种碳/杂环结构体建立了新颖的合成方法，所构建的I2/DMSO协同氧化偶联试剂系统其原创性和实用性得到业界学者的广泛肯定，被公认为是有机合成中构建碳碳键（C-C）和合成含N杂环化合物一个强有力的工具性反应。此外，进一步将该原理拓展到天然产物自组织合成的应用中，成功实现了6类40余个天然产物的一锅全合成，对解决“天然产物自组织全合成”难题提出了新思路。

整个研究历经15年（2002至2017），共发表包括1篇*Angew. Chem. Int. Ed.*，3篇*J. Am. Chem. Soc.*, 40篇*Org. Lett.*，11篇*Chem. Commun.*，3篇*Adv. Synth. Catal*.，2篇*Chem. Eur. J.*，11篇*J. Org. Chem.*等共计一百余篇论文，被国际专业评述刊物亮点推介93篇次，获得众多文章大篇幅引证和正面评价，部分研究结果被一些国际学者选编入十余部专著，得到国内外一百五十余个研究组的引证和借鉴。10篇代表性论文他引512次，被SCI源期刊他引491次，单篇最高他引66次。

**代表性论文专著目录：**

|  |  |  |
| --- | --- | --- |
| 序号 | 论文名称/刊名/作者 | 年、卷、页码 |
| 1 | Supramolecular Rhombic Grids Formed from Bimolecular Building Blocks/J. Am. Chem. Soc./ Nengfang She, Meng Gao, Xianggao Meng, Guangfu Yang, Johannes A. A. W. Elemans,Anxin Wu,\* and Lyle Isaacs\* | 2009年131卷11695-11697页 |
| 2 | Efficient C-C Double-Bond Formation Reaction via a New Synthetic Strategy: A Self-Sorting Tandem Reaction/Org. Lett./ Guodong Yin, Baohan Zhou, Xianggao Meng, Anxin Wu,\* and Yuanjiang Pan\*. | 2006年8 卷2245-2248页 |
| 3 | A New Facile Approach to the Synthesis of 3-Methylthio- substituted Furans, Pyrroles, Thiophenes, and Related Derivatives /J. Org. Chem./ Guodong Yin, Zihua Wang, Aihua Chen, Meng Gao, Anxin Wu,\* and Yuanjiang Pan\* | 2008年73卷 3377-3383页 |
| 4 | Novel and Direct Transformation of Methyl Ketones or Carbinols to Primary Amides by Employing Aqueous Ammonia/Org. Lett./ Liping Cao, Jiaoyang Ding, Meng Gao, Zihua Wang, Juan Li, and Anxin Wu\* | 2009年11卷3810-3813页 |
| 5 | Metal-Free sp3 C-H Bond Dual- (Het)arylation: I2-Promoted Domino Process to Construct 2,2-Bisindolyl- 1-arylethanones/Org. Lett./Yanping Zhu, Meicai Liu, Fengcheng Jia, Jingjing Yuan, Qinghe Gao, Mi Lian, and Anxin Wu\* | 2012年14 卷3392-3395页 |
| 6 | I2-Promoted Domino Oxidative Cyclization for One-pot Synthesis of 2-Acylbenzothiazoles via Metal-free sp3 C-H Functionalization/Chem. Commun./ Yanping Zhu, Mi Lian, Fengcheng Jia, Meicai Liu, Jingjing Yuan, Qinghe Gao, and Anxin Wu\* | 2012年48卷9086-9088页 |
| 7 | A Multipathway Coupled Domino Strategy: Metal-free Oxidative Cyclization for One-Pot Synthesis of 2-Acylbenzothiazoles from Multiform Substrates/Org. Lett./ Yanping Zhu, Fengcheng Jia, Meicai Liu, and Anxin Wu\* | 2012年14 卷4414-4417页 |
| 8 | An Efficient Synthesis of Hydantoins via Sustainable Integration of Coupled Domino Processes /Org. Lett./Meng Gao, Yan Yang, Yandong Wu, Cong Deng, Wenming Shu, Dongxue Zhang, Liping Cao, Nengfang She and Anxin Wu\* | 2010年12卷4026-4029页 |
| 9 | I2‑Catalyzed Oxidative Cross-Coupling of Methyl Ketones and Benzamidines Hydrochloride: A Facile Access to α‑Ketoimides / Org. Lett./ Xia Wu, Qinghe Gao, Shan Liu, and Anxin Wu\* | 2014年16卷 2888-2891页 |
| 10 | Direct One-Pot Synthesis of Luotonin F and Analogues via Rational Logical Design / Org. Lett./Yanping Zhu, Zhuan Fei, Meicai Liu, Fengcheng Jia, and Anxin Wu\* | 2013年15卷378-381页 |

**主要完成人情况表：**

|  |  |  |  |  |  |  |  |
| --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- | --- |
| 姓名 | 排名 | 行政职务 | 技术职称 | 工作单位 | 完成单位 | 对本项目技术创造性贡献 | 曾获科技奖励情况 |
| 吴安心 | 1 | 无 | 教授 | 华中师范大学 | 华中师范大学 | 在该项目中负责项目的总体设计和全面指导，是发现点1, 2, 3 的主要贡献者。揭示了新颖的分子行为自分类现象，提出了设计有机反应的新假说——自分类多米诺汇聚集成反应系统，证明了该理论的客观存在性，被国际学者誉为是有机合成中的一种新颖合成策略，成为开拓新型有机反应的有效工具。并据此创建了一个得到学术界广泛应用的多样性导向反应系统，成功实现天然产物的直接合成，对“如何实现天然产物的自组织合成”这一关键性的学术难题取得了重要的进展。在该项目研究工作中的工作量占本人工作量的80%。 | 《木脂素类天然产物的全合成研究》获甘肃省教委科技创新一等奖（2000年）和甘肃省科技进步二等奖（2001年），湖北省中青年突出贡献专家（2005年），国务院特殊津贴专家（2008年），武汉市优秀科技工作者（2009年），湖北省创新创业人才奖（2014年）等荣誉 。 |
| 殷国栋 | 2 | 无 | 教授 | 湖北师范大学 | 华中师范大学 | 发现了首例自分类的多米诺反应类型，成功地构建了芳基甲基酮二聚偶联成烯的新反应，从而合成了一系列的硫甲基1,4-烯二酮及其衍生物（代表性论文2），并完成多个类型的杂环结构体的合成方法的构建（代表性论文3），此外，在多样性导向反应系统的构建也有相关研究工作。殷国栋对重要科学发现点2、3做出了创造性贡献，在该项研究工作中的工作量占本人工作量的80%。 | 无 |
| 曹利平 | 3 | 无 | 教授 | 西北大学 | 华中师范大学 | 完成了超分子的自分类组装研究以及苯甲酰胺的合成新方法（代表性论文4）。构建出第一例具有晶体结构数据的非共价双层结构体，结构中表现出高度强强键与弱弱键之间的自分类自组装行为；这一原则在构筑高阶功能组装体方面具有理论指导意义。基于此发现，进一步发展了小分子集群自分类行为一种新形态——自分类重组现象，这为解释复杂分子行为创造了实例基础。曹利平对重要科学发现点1，3做出了创造性贡献，在该项研究工作中的工作量占本人工作量的80%。 | 获陕西省百人计划特聘教授 |
| 佘能芳 | 4 | 无 | 副教授 | 华中师范大学 | 华中师范大学 | 完成了超分子组装化学的研究。首先，通过C-H-π与经典氢键的自分类键合作用原理成功实现了四聚集态的超分子碗状结构体的组装，应用了经典氢键与π-π作用的自分类键合原理成功构筑了双层分子网状结构（代表性论文1）。佘能芳对重要科学发现点1做出了创造性贡献，在该项研究工作中的工作量占本人工作量的80%。 | 2009年湖北省优秀博士毕业论文，2011年湖北省自然科学优秀研究论文二等奖 |
| 高蒙 | 5 | 无 | 副教授 | 华南理工大学 | 华中师范大学 | 提出了两种新颖的自分类多米诺集成反应模式：聚焦的多米诺反应策略以及偶联的汇聚多米诺反应策略。完成了不对称的1,4-烯二酮类化合物的构建方法；成功将两个自序化的多米诺反应偶联起来并集成（代表性论文1、8）。高蒙对重要科学发现点2，3做出了创造性贡献，在该项研究工作中的工作量占本人工作量的80%。 | 无 |
| 祝艳平 | 6 | 无 | 讲师 | 南昌航空大学 | 华中师范大学 | 提出了多种新颖的自分类多米诺集成反应模式和MPCD合成策略，发展和完善了I2 /DMSO协同氧化偶联试剂系统（代表性论文5、6、7）。完成了天然产物一锅全合成构建方法（代表性论文10）；祝艳平对重要科学发现点2，3做出了创造性贡献，在该项研究工作中的工作量占本人工作量的80%。 | 获欧盟玛丽居里奖学金 |