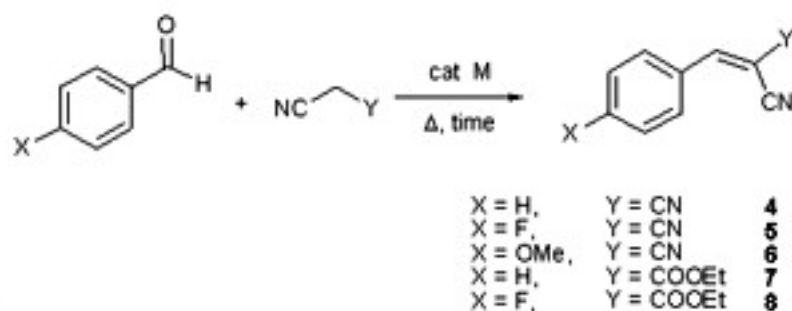


Organocatalitzadors híbrids reciclables per a la condensació de Knoevenagel

04/2010 - Química.

L'organocatàlisi i l'ús de catalitzadors heterogenis presenten certs avantatges des del punt de vista econòmic i ambiental. S'han preparat materials híbrids orgànic-inorgànics a partir de sals d'imidazoli i de dihidroimidazoli que han resultat ser organocatalitzadors actius i reciclables en la condensació de Knoevenagel d'aldehids aromàtics amb malononitril i cianoacetat d'etil en absència de dissolvent.

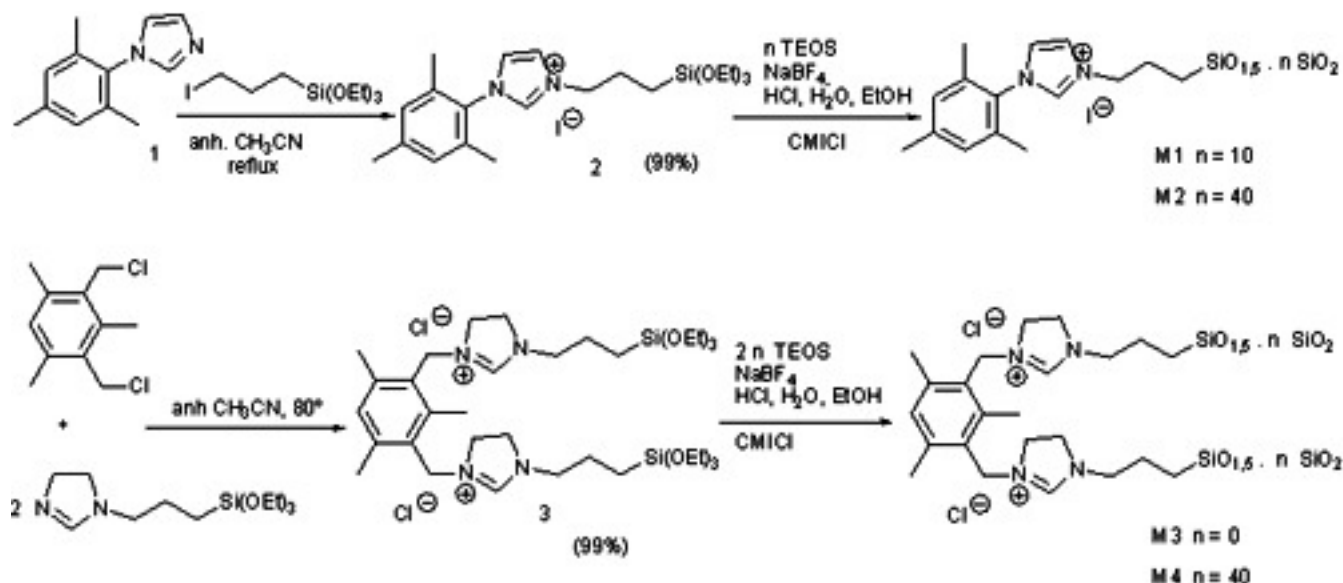


Condensació de Knoevenagel.- Aquesta reacció és catalitzada pels nous materials híbrids preparats en aquesta recerca.

La condensació de Knoevenagel és un dels mètodes més utilitzats per preparar alquens substituïts. Permet formar dobles enllaços carboni-carboni a partir d'un compost carbonílic o heterocarbonílic i un compost amb un grup metilènic activat. Tradicionalment, s'han utilitzat com a catalitzadors amines primàries o secundàries o sistemes tampó formats per amoníac o amines i l'àcid conjugat corresponent.

Les sals d'imidazoli i de dihidroimidazoli són bons organocatalitzadors en aquest tipus de reaccions. En l'organocatàlisi, on el responsable de l'augment de la velocitat d'una reacció química és un compost orgànic, es prescindeix d'espècies metàl·liques. Podem dir que l'organocatàlisi és un tipus de catàlisi respectuosa amb el medi ambient.

En el nostre cas hem preparat materials híbrids orgànic-inorgànics derivats de silici amb sals d'imidazoli i de dihidroimidazoli convenientment funcionalitzades (veure esquema). La immobilització dels catalitzadors en un suport sòlid ofereix certs avantatges. Es poden separar fàcilment del cru de reacció per filtració permetent la recuperació i reutilització del catalitzador.



S'ha estudiat l'activitat catalítica dels materials preparats i el seu reciclatge envers la condensació de Knoevenagel del malononitril i el cianoacetat d'etil amb aldehids aromàtics en absència de dissolvent. Els nostres catalitzadors heterogenis

(0.4-1.2% molar) presenten una major activitat que sals d'imidazoli similars utilitzades com a catalitzadors homogenis. Els millors resultats s'han obtingut amb el material preparat per policondensació de la sal de dihidroimidazoli bisililada en absència de tetraetoxisilà (TEOS). En alguns casos els catalitzadors s'han reutilitzar fins a 5 vegades sense observar una disminució en la seva activitat.

Montserrat Trilla Castaño, Roser Pleixats Rovira

Departament de Química

"Organic-inorganic hybrid silica materials containing imidazolium and dihydroimidazolium salts as recyclable organocatalysts for Knoevenagel condensations". Trilla, M.; Pleixats, R.; Wong Chi Man, M.; Bied, C. Green Chem. 2009, 11, 1815-1820.