

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät

Institut für Chemie

Fachgebiet: Heterogeneous catalysis for organic synthesis

Betreuer: Prof. Dr. Matthias Beller

Master Zhuang Ma

(e-mail: Zhuang.Ma@catalysis.de)

Development of Cobalt- and Nickel-based Nanocatalysts for Hydrogenations and Related Reactions

This dissertation reports the applicability of non-noble metal-based heterogeneous catalysts for hydrogenation and borrowing hydrogen reactions. In particular, supported Co- and Ni-based nanoparticles have been prepared and applied for the hydrogenation of nitriles and N- and C-alkylation reactions. Silica supported Ni-NPs are prepared by pyrolysis method and applied for the hydrogenation of functionalized and structurally diverse benzylic, heterocyclic and aliphatic primary amines. Next, Co-based nanoparticles were prepared by the immobilization and pyrolysis of a Co-nitrogen complex on silica and subsequent removal silica template. These cobalt nanoparticles showed excellent activity and selectivity for the N-alkylation by borrowing hydrogen methodology that enabled for the synthesis of primary, secondary, and tertiary amines including N-methoxylated products. Finally Co-nanostructured catalysts were prepared and applied for the CH-alkylation of indoles with alcohols. Reported catalytic materials were characterizations using XRD, TEM, XPS and other analytical techniques. Organic products were analyzed and characterized by GC, GCM and NMR spectroscopy. To design suitable catalysts and to perform these synthetic reactions, a number of optimization studies and control experiments including kinetic and mechanistic investigations have been performed.

Diese Dissertation berichtet über die Anwendbarkeit von Nichtedelmetall-basierten heterogenen Katalysatoren für Hydrierungs- und Browsing-Wasserstoff-Reaktionen. Insbesondere wurden Nanopartikel auf Co- und Ni-Basis auf Co- und Ni-Basis hergestellt und für die Hydrierung von Nitrilen und N- und C-Alkylierungsreaktionen eingesetzt. Silica-gestützte Ni-NPs werden durch Pyrolyseverfahren hergestellt und für die Hydrierung von funktionalisierten und strukturellen Nanopartikeln verwendet diverse benzylic, heterocyclische und aliphatische primäre Amine. Als nächstes wurden Nanopartikel auf Co-Basis durch Immobilisierung und Pyrolyse eines Co-Stickstoffkomplexes auf Silica und anschließende Entfernung des Silica-Templates hergestellt. Diese Cobalt-Nanopartikel zeigten eine hervorragende Aktivität und Selektivität für die N-Alkylierung durch Browsing-Hydrogen-Methodik, die die Synthese von primären, sekundären und tertiären Aminen einschließlich N-methylierter Produkte ermöglichte. Schließlich wurden Co-nanostrukturierte Katalysatoren hergestellt und für die CH-Alkylierung von Indolent mit Alkoholen eingesetzt. Die gemeldeten katalytischen Materialien waren Charakterisierungen unter Verwendung von XRD, TEM, XPS und anderen Analysetechniken. Organische Produkte wurden analysiert und durch GC-, GCM- und NMR-Spektroskopie charakterisiert. Um geeignete Katalysatoren zu entwerfen und diese Synthesereaktionen durchzuführen, wurden eine Reihe von Optimierungsstudien und Kontrollexperimenten einschließlich kinetischer und mechanistischer Untersuchungen durchgeführt