

Väitöstiedote

Väitös 27.11.2020

Kuparikatalyyttiset alkoholien hapetukset synteisiin ja ligniinin biojalostamiseen

Väitöskirjan nimi	Development of Aerobic Copper-Catalyzed Alcohol Oxidations for Synthesis and Lignin Valorization
Väiskirjan sisältö	<p>Kestävä kemia ja uusiutuvat luonnonvarat ovat yhä tärkeämpiä kynnyskysymyksiä kemian teollisuudessa. Koska tutkimustyö luo perustan teknologian kehitykselle, on näihin kysymyksiin syytä paneutua erityisesti jo tutkimuksessa. Kemian teollisuuden keskeisimpiin reaktioihin lukeutuvat alkoholien hapetukset karbonyyli-yhdisteiksi. Siksi on tärkeä kehittää näistä entistä kestävämpiä menetelmiä, mukaan lukien uudet sovellukset uusiutuvien luonnonvarojen hyödyntämisessä. Selluloosan jälkeen luonnon toiseksi yleisin polymeeri on ligniini. Niin ikään puubiomassasta saatava, aromaatti- ja alkoholirikas ligniini on lupaava, mutta haastava raaka-aine, jolle etsitään kuumeisesti ratkaisuja biokemikaalien, polttoaineiden ja materiaalien tuotantoon. Tässä väitöskirjatyössä paneudutaan aerobisten kuparikatalyyttien kehitykseen ja hyödyntämiseen paitsi pienmolekyylien hapetuksessa myös ligniinin jalostamisessa aromaattisiksi biokemikaaleiksi.</p> <p>Aluksi työssä keskityttiin haastavien alkoholien selektiivisiin hapetuksiin sekä ominaisuuksiltaan erilaisten aldehydien synteisiin, joihin kehitettiin monin paikoin aiempaa tehokkaammat kuparikatalyyttisysteemit. Menetelmää sovellettiin onnistuneesti myös erään luonnonaine-lohkon synteessissä. Tämän jälkeen pääosassa väitöstutkimusta tarkasteltiin aerobisen kuparikatalyyysin soveltuvuutta ligniinin pilkkomiseen. Ligniinin malliaineita hyödyntäen menetelmänkehitys mahdollisti samalla aiempaa laajemman ja varmemman käsityksen erilaisten tuotteiden syntymekanismeista. Havaintojen ja haasteiden pohjalta pystyttiin lopulta kehittämään katalyyttisesti tehokas aerobinen reaktiosysteemi koivupuusta saatavan ligniinin konversioon aromaattisiksi aldehydeiksi ja karboksyylihapoiksi.</p> <p>Lopuksi raaka-aineina tutkittiin kotimaisia koivu- ja mäntysahanpuruja suoraan ilman ligniinin eristämistä ja lopputuloksena syntyi jopa entistä tuottavammin vastaavia biotuotteita, kuten vanilliinia ja vanilliinihappoa. Prosessit ovat tiittävästi tähän asti tehokkaimmat aerobiseen kuparikatalyyysiin perustuvista menetelmistä. Katalyyttisysteemi voi tarjota kilpailukykyisen menetelmän ligniinin jalostamiseen sekä potentiaalisen teknologiapohjan puun kokonaisvaltaiseen hyödyntämiseen yhdistettynä tunnettuihin selluloosan ja hemiselluloosan biojalostusprosesseihin.</p>
Väitöskirjan ala	Orgaaninen Kemia
Väittelijä ja väittelijän yhteystiedot	Diplomi-insinööri Eemil Salonen eemil.salonen@aalto.fi
Väitöksen ajankohta	27.11.2020 klo 12
Paikka ja ZOOM linkki	Aalto-yliopiston kemian tekniikan korkeakoulu, https://aalto.zoom.us/j/64271118582 Sali Ke2 (Komppa-Sali), Kemistintie 1, Espoo
Vastaväittäjä(t)	Professori Yngve Stenstrøm, Norwegian University of Life Sciences, Norja
Valvoja	Professori Ari Koskinen, Aalto-yliopiston kemian tekniikan korkeakoulu
Väitöskirjan verkko-osoite	https://aaltodoc.aalto.fi/handle/123456789/51
Avainsanat	aerobinen hapetus, kuparikatalyyysi, selektiivinen synteesi, uusiutuvat luonnonvarat, ligniini

Press release

Defence on 27 November 2020

Copper-Catalyzed Alcohol Oxidations for Synthesis and Lignin Biorefining

Title of the doctoral thesis	Development of Aerobic Copper-Catalyzed Alcohol Oxidations for Synthesis and Lignin Valorization
Content of the doctoral thesis	<p>Sustainable chemistry and renewable resources are becoming more and more crucial factors in chemical industry. As research forms the fundament for technology development, these factors should be addressed already in research work. One of the cornerstone reactions in chemical industry is alcohol oxidation to carbonyls. Thus, continuous development of this field is an essential goal including applications utilizing renewables. Lignin is the second most abundant polymer after cellulose on our planet. However, this renewable aromatic and alcohol rich polymer found in wood biomass is still facing major challenges towards its valorization to biochemicals, fuels or materials. This thesis focuses on the development of aerobic copper-catalyzed oxidations designed for small molecules and for the valorization of lignin to aromatic biochemicals.</p> <p>In the first part of the studies, focus was on challenging selective alcohol oxidations to various kind of aldehydes. Here, two different copper-based systems offered catalytically competitive methods compared to those previously reported. This protocol found also application in the synthesis of a natural product moiety. In the following and major part of the thesis, the aerobic copper-based oxidation was studied and developed for the catalytic lignin depolymerization. With the help of lignin model compounds, the oxidative process revealed new important information about the formation of chemical products. Based on the challenges and the gathered knowledge, an improved catalyst system was successfully developed for the conversion of birch lignin into value-added aromatic aldehydes and acids.</p> <p>Finally, the protocol was also suitable for the direct catalytic processing of birch and pine sawdust to afford similar bioproducts, such as vanillin and vanillic acid. Compared to other aerobic copper-based methods, the present processes appear the most catalytically efficient to date. They can offer a competitive methodology for lignin valorization and a potential technology basis for the complete valorization of wood combined with well-established cellulose and hemicellulose processes.</p>
Field of the doctoral thesis	Organic Chemistry
Doctoral candidate and contact information	M.Sc. (Tech.) Eemil Salonen eemil.salonen@aalto.fi
Defence date and time	27 November 2020 at 12
Place of defence	Aalto University School of Chemical Engineering, https://aalto.zoom.us/j/64271118582 Lecture hall Ke2 (Komppa-Sali), Kemistintie 1, (main door at Biologinkuja) 02150 Espoo
Opponent(s)	Professor Yngve Stenstrøm, Norwegian University of Life Sciences, Norway
Custos	Professor Ari Koskinen, Aalto University School of Chemical Engineering
Link to electronic thesis	https://aaltodoc.aalto.fi/handle/123456789/51
Keywords	aerobic oxidation, copper catalysis, selective synthesis, renewables, lignin