



Title	Study on Development of Organic Polymer-Bound Metal Complex Catalysts in Selective Reduction of Organic Compounds
Author(s)	水垣, 共雄
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3155466
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	水 垣 共 雄
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 14714 号
学位授与年月日	平成11年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 基礎工学研究科化学系専攻
学位論文名	Study on Development of Organic Polymer-Bound Metal Complex Catalysts in Selective Reduction of Organic Compounds (有機高分子固定化錯体を用いた還元反応触媒の開発に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 金田 清臣 (副査) 教授 東稔 節治 教授 駒沢 勲 教授 久保井亮一

論文内容の要旨

本研究は、環境に優しい試剤を用いる高活性、高選択性を示す不均一系還元触媒の開発を目的とし、有機高分子担体の機能化による新規な有機高分子固定化錯体の調製と、その官能基選択的還元反応における触媒作用について研究を行ったものである。

本論文は3部から構成され、第1部では固定化錯体触媒に関する従来の研究の総括を行い、固体表面を利用する触媒設計の重要性と本研究の意義について述べ、全体の構成を示した。

第2部は4章から構成され、新規な触媒作用を示すことが期待されるロジウムクラスター錯体を用いて、カルボニル基の選択的還元反応における、ポリスチレン固定化ロジウムクラスター錯体触媒の開発を行った。ポリスチレンに導入する官能基の種類で担体の親水性、塩基性を調節し、水、分子状水素あるいはギ酸を水素源とする、アルデヒドの選択的還元反応に高活性な固定化ロジウムクラスター錯体触媒を調製した。これらの固定化ロジウムクラスター錯体触媒は、取り扱いが容易であり高活性を維持したまま回収、再使用が可能であることを明らかにした。

第3部は4章から構成され、新規な高分子である dendrimer の特徴と触媒担体としての可能性について概説し、担体自身の持つ特性を利用した高活性な固定化触媒の開発について研究を行った。dendrimer の表面官能基を利用したパラジウム2価およびパラジウム0価錯体の固定化を行い、共役ジェンからモノエンへの選択的水素化、および炭素-炭素結合形成反応にそれぞれの固定化パラジウム錯体が高い触媒活性を示すことを明らかにした。また dendrimer 内部に固定化したロジウムクラスター錯体が、水を水素源とするニトロベンゼンの還元反応に高活性を示すことを見出した。

本研究にて開発した高分子固定化錯体触媒は、いずれも容易に反応系から分離、回収および再使用が可能で、温和な条件下で高活性を示す点から環境調和型の固定化触媒であることを本論文で明らかにした。

論文審査の結果の要旨

本研究は環境に優しい試剤を用いる高活性、高選択性を示す不均一系還元触媒の開発を目的とし、有機高分子担体の機能化による新規な有機高分子固定化錯体の調製と、その官能基選択的還元反応における触媒作用について研究を

行った。

まず、新規な触媒作用を示すことが期待されるロジウムクラスター錯体を用いて、カルボニル基の選択的還元反応における、ポリスチレン固定化ロジウムクラスター錯体触媒の開発を行った。ポリスチレンに導入する官能基の種類で担体の親水性、塩基性を調節し、水、分子状水素あるいはギ酸を水素源とする、アルデヒドの選択的還元反応に高活性な固定化ロジウムクラスター錯体触媒を開発している。また、これらの固定ロジウムクラスター錯体触媒は、取り扱いが容易であり高活性を維持したまま回収、再使用が可能であることを明らかにしている。

次に、新規な高分子である dendrimer を用い、担体自身の持つ特性を利用した高活性な固定化触媒の開発について研究を行った。Dendrimer の表面官能基を利用したパラジウム 2 価およびパラジウム 0 価錯体の固定化を行い、共役ジエンからモノエンへの選択的水素化、および炭素-炭素結合形成反応にそれぞれの固定化パラジウム錯体が高い触媒活性を示すことを明らかにしている。また、表面を長鎖のアルキル鎖で修飾した dendrimer の内部に固定化したロジウムクラスター錯体が、水を水素源とするニトロベンゼンの還元反応に高活性を示すことを見出している。

以上のように、本論文の成果は、環境に優しい試剤を用いる有機化合物の選択的還元反応において、新規な環境調和型の高分子固定化錯体触媒の設計に重要な知見を与えている。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。