

| | |
|--------------|---|
| Title | Study on Highly Efficient One-Pot Organic Syntheses Using Hydrotalcite and Montmorillonite Catalysts |
| Author(s) | 本倉, 健 |
| Citation | 大阪大学, 2006, 博士論文 |
| Version Type | |
| URL | https://hdl.handle.net/11094/46749 |
| rights | |
| Note | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。 |

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

| | |
|------------|--|
| 氏名 | もと くら けん 本 倉 健 |
| 博士の専攻分野の名称 | 博 士 (工 学) |
| 学位記番号 | 第 20408 号 |
| 学位授与年月日 | 平成 18 年 3 月 24 日 |
| 学位授与の要件 | 学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科物質創成専攻 |
| 学位論文名 | Study on Highly Efficient One-Pot Organic Syntheses Using Hydrotalcite and Montmorillonite Catalysts (ハイドロタルサイトおよびモンモリロナイト触媒を用いる高効率ワンポット有機合成に関する研究) |
| 論文審査委員 | (主査) 教授 金田 清臣 (副査) 教授 久保井亮一 教授 笹井 宏明 教授 松村 道雄 助教授 海老谷幸喜 |

論 文 内 容 の 要 旨

環境調和型化学プロセスの構築において、複数の反応を同一反応器内で進行させて目的生成物を得る one-pot 合成は必要不可欠な研究課題である。本研究では、層状粘土鉱物ハイドロタルサイトおよびモンモリロナイトの特徴を活かした触媒設計により、回収・再使用が容易な固体触媒を開発し、それらが従来の均一系試剤では不可能な one-pot 有機合成反応を可能とすることを見出した。

第一章では、研究の背景として、“Green & Sustainable Chemistry”を指向した環境調和型有機合成の取り組みと固体酸塩基触媒開発の重要性について記述した。

第二章では、高効率 one-pot 合成を達成するための鍵となる反応として、mont および HT から調製した固体酸塩基触媒を用いた、炭素-炭素結合形成反応について述べた。Na-mont を塩酸処理して得られた H-mont は 1,3-ジカルボニル化合物のオレフィンへの付加反応を進行させる固体 Brønsted 酸触媒となる。一方、HT を焼成・水和処理して得られる自己組織化 HT は、アルデヒド類のアルドール反応を迅速に進行させる固体塩基触媒となることを見出した。

第三章では、HT 表面に単核 Ru 種 (Ru/HT) および Pd ナノ粒子を固定した触媒を用いる種々の one-pot 合成について記述した。Ru/HT を用いると Ru 種による水素移行反応と塩基点によるアルドール反応によって、アルコールから水のみを副生成物として α -アルキル化ニトリルを one-pot で合成できる。

第四章では、固体酸 Ti-mont と固体塩基 HT を触媒に用いる酸塩基連続反応について述べた。均一系の酸・塩基触媒は同一反応器内で使用すると速やかに中和するが、mont 層間に生成した Brønsted 酸点と、HT 粒子表面の塩基点とは相互作用することなく機能し、酸・塩基反応を one-pot で進行させ、目的生成物を高収率で与えた。

以上、本研究では HT および mont の特性に基づいて開発した種々の新規不均一系触媒を用いることで、環境に調和した高効率 one-pot 有機合成を可能とした。

論文審査の結果の要旨

環境調和型化学プロセスの構築において、複数の反応を同一反応器内で進行させて目的生成物を得る one-pot 合成は必要不可欠な研究課題である。本研究では、層状粘土鉱物ハイドロタルサイトおよびモンモリロナイトの特徴を活かした触媒設計により、回収・再使用が容易な固体触媒を開発し、それらが従来の均一系試剤では不可能な one-pot 有機合成反応を可能とすることを見出した。

第一章では、研究の背景として、“Green & Sustainable Chemistry”を指向した環境調和型有機合成の取り組みと固体酸塩基触媒開発の重要性について記述した。

第二章では、高効率 one-pot 合成を達成するための鍵となる反応として、mont および HT から調製した固体酸塩基触媒を用いた、炭素-炭素結合形成反応について述べた。Na-mont を塩酸処理して得られた H-mont は 1,3-ジカルボニル化合物のオレフィンへの付加反応を進行させる固体 Brønsted 酸触媒となる。一方、HT を焼成・水和処理して得られる自己組織化 HT は、アルデヒド類のアルドール反応を迅速に進行させる固体塩基触媒となることを見出した。

第三章では、HT 表面に単核 Ru 種 (Ru/HT) および Pd ナノ粒子を固定した触媒を用いる種々の one-pot 合成について記述した。Ru/HT を用いると Ru 種による水素移行反応と塩基点によるアルドール反応によって、アルコールから水のみを副生成物として α -アルキル化ニトリルを one-pot で合成できる。

第四章では、固体酸 Ti-mont と固体塩基 HT を触媒に用いる酸塩基連続反応について述べた。均一系の酸・塩基触媒は同一反応器内で使用すると速やかに中和するが、mont 層間に生成した Brønsted 酸点と、HT 粒子表面の塩基点とは相互作用することなく機能し、酸・塩基反応を one-pot で進行させ、目的生成物を高収率で与えた。

以上、本研究では HT および mont の特性に基づいて開発した種々の新規不均一系触媒を用いることで、環境に調和した高効率 one-pot 有機合成を可能とした。よって、博士 (工学) の学位論文として価値のあるものと認める。