

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	同一固体表面に固定した金属錯体と有機塩基による協同触媒作用
Title(English)	Heterogeneous Concerted Catalysis by Metal Complex and Organic Base Immobilized on Same Solid Surface
著者(和文)	野田寛人
Author(English)	Hiroto Noda
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10214号, 授与年月日:2016年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:本倉 健,稲田 宗隆,小坂田 耕太郎,馬場 俊秀,穴戸 厚
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10214号, Conferred date:2016/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	野田 寛人
論文審査 審査員		氏 名	職 名	
	主査	本倉 健	講師	氏 名
	審査員	穂田 宗隆	教授	職 名
		小坂田 耕太郎	教授	
		馬場 俊秀	教授	

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文は「Heterogeneous Concerted Catalysis by Metal Complex and Organic Base Immobilized on Same Solid Surface (同一固体表面に固定した金属錯体と有機塩基による協同触媒作用)」と題して、同一表面に金属錯体と有機塩基を固定した不均一系触媒の調製・構造解析と有機反応における協同触媒作用に関する研究成果が英文で記されており、5 章より構成されている。

第 1 章「General Introduction (序論)」では、均一系、及び不均一系協同触媒作用について、過去の研究例を挙げて、特に本論文と関連が深い“Synergistic Catalysis”及び“Double-Activation Catalysis”について説明している。加えて、固体表面における金属錯体と有機塩基による協同触媒作用へと展開した本研究の目的が述べられている。

第 2 章「Heterogeneous Synergistic Catalysis: Pd Complex and Tertiary Amine on Same Solid Surface for the Tsuji-Trost Reaction (同一表面に固定した Pd 錯体と第三級アミンの Synergistic Catalysis による Tsuji-Trost 反応)」では、不均一系協同触媒作用を金属錯体と有機塩基の組み合わせへ展開することを目的としている。Pd 錯体と第三級アミンをシリカ表面に固定した触媒を考案・調製し、得られた触媒が Tsuji-Trost 反応 (求核剤のアリル化反応) に高活性を示すことが述べられている。この触媒反応機構の解析を行い、Pd 錯体がアリル化剤を、アミンが求核剤をそれぞれ活性化する Synergistic Catalysis によって反応が促進されることを明らかにしている。

第 3 章「Heterogeneous Double-Activation Catalysis: Rh Complex and Tertiary Amine on Same Solid Surface for 1,4-Addition Reaction (同一表面に固定した Rh 錯体と第三級アミンの Double-Activation Catalysis による 1,4-付加反応)」では、固体表面上における金属錯体と有機塩基の協同触媒作用を、2 つの活性点が 1 つの基質を同時に活性化する Double-Activation Catalysis へと応用している。シリカ表面に Rh 錯体と第三級アミンを固定した触媒を用いて、フェニルホウ酸の 1,4-付加反応を行い、Rh 錯体とアミンがフェニルホウ酸を同時に活性化する Double-Activation Catalysis によって 1,4-付加反応が促進されることを明らかにしている。

第 4 章「Direct Estimation of Surface Location of Immobilized Functional Groups for Concerted Catalysis Using a Probe Molecule (固体表面での有機官能基位置のプローブ分子を用いる直接見積もり)」では、第 2、3 章で用いた触媒表面の活性点間距離と触媒活性の関係を明らかにするため、プローブ分子を用いて有機官能基間の距離を見積もっている。プローブ分子と表面官能基との相互作用を解析し、高活性な触媒表面の錯体と有機塩基は、低活性な触媒と比べ、近傍に位置することを明らかにしている。

第 5 章「General Conclusion (総括)」では、本論文の各章で得られた結果を総括し、その結果を踏まえて今後の研究展開が記述されている。

以上を要するに、本論文では金属錯体と有機塩基の協同作用を利用して高活性触媒の開発を達成するとともに、表面活性種の位置関係が触媒活性に与える影響を解明しており、工学上貢献するところが大きい。よって本論文は、博士（工学）の学位論文として十分な価値があるものと認められる。