

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ルテニウム錯体を用いるエチレンと二酸化炭素からのアクリル酸合成法の開発
Title(English)	
著者(和文)	伊藤龍好
Author(English)	Tatsuyoshi Ito
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11027号, 授与年月日:2019年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:岩澤 伸治,鷹谷 絢,鈴木 啓介,後藤 敬,川口 博之
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11027号, Conferred date:2019/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

ルテニウム錯体を用いるエチレンと二酸化炭素からのアクリル酸合成法の開発

伊藤 龍好

論文の要約

本論文は「ルテニウム錯体を用いるエチレンと二酸化炭素からのアクリル酸合成法の開発」に関する研究について述べたものである。安価なエチレンと二酸化炭素とから化成品の原料となるアクリル酸を触媒的に合成する手法の開発が注目を集めているなか、ごく最近になってニッケルまたはパラジウム錯体を用いた触媒反応が開発された。しかしこれまでの研究は10族金属ニッケル・パラジウム錯体を用いた検討がほとんどであり、より効率の良いアクリル酸合成を実現するためには、これまでとは異なる金属触媒系を開拓する必要がある。

このような背景のもと、本研究においてエチレンと二酸化炭素との反応がほとんど検討されていない8族金属であるルテニウム錯体に着目し、触媒的アクリル酸合成法の開発を目的に研究を行った。その結果、電子豊富な低原子価ルテニウム錯体がエチレン・二酸化炭素と酸化的環化を起こし5員環ルテナラクトンを形成することを見出した。本錯体の反応性について種々検討を行ったところ、加熱により可逆的な β 水素脱離が進行し、ヒドリド（アクリラト）錯体を与えることがわかった。更に、生成したヒドリド（アクリラト）錯体に対しエチレン雰囲気下塩基を作用させると、目的とするアクリル酸塩が得られるとともに低原子価ルテニウムエチレン錯体が再生することを明らかにした。これら化学量論反応の知見をもとに各種検討を行った結果、エチレン・二酸化炭素加圧条件下低原子価ルテニウム錯体を塩基と共に加熱することで触媒的にアクリル酸塩を得ることに成功した。本反応は現在のところ触媒回転数は未だ低く十分なものではないが、ニッケルまたはパラジウム錯体以外の金属錯体を用いて触媒的にアクリル酸を合成した初めての例である。本結果は、ルテニウム錯体がエチレンと二酸化炭素を原料とするアクリル酸合成における新たな触媒となる可能性を示すものである。