

【基盤研究(S)】  
理工系(化学)



研究課題名 協奏機能分子触媒による遍在小分子の  
固定化技術の開拓

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授 いかりや たかお  
碓屋 隆雄

研究分野: 化学

キーワード: 錯体有機金属触媒、不斉合成反応、環境調和型反応

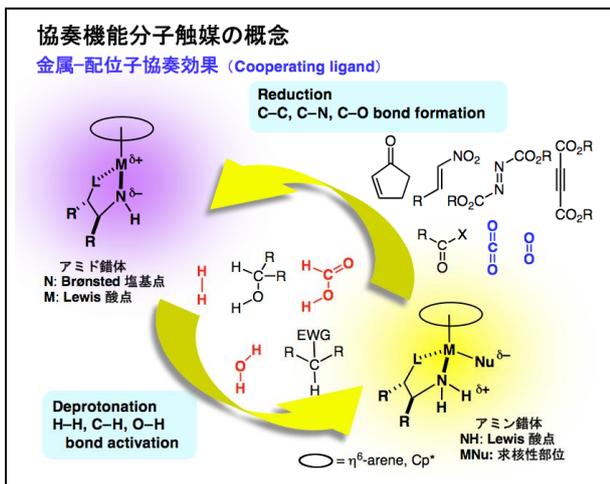
【研究の背景・目的】

環境への負荷を極力排除して資源やエネルギーを有効に利用した合成プロセス、すなわち、グリーンケミストリーに立脚した「ものづくり」技術の開発は喫緊の課題である。加えて、地球上に大量に存在する水、酸素、窒素、二酸化炭素分子など遍在小分子を炭素、水素、酸素、窒素源として元素を利活用する合成プロセスの確立は、化学者に課せられた責務といえる。

研究代表者がこれまでに取り組んできた協奏機能分子触媒は、還元-酸化、炭素結合形成など多様で高効率かつ高選択的な触媒反応を促進するとともに、水、水素、酸素、二酸化炭素など小分子との特異的な反応性を示す。本研究では、この協奏機能触媒がグリーンケミストリー実現に向けた重要戦略と考え、協奏機能分子触媒の作用原理の解明と一般性の実証とともに、グリーンケミストリーに資する完全化学反応の実現と遍在小分子の利用技術の開拓をめざす。

【研究の方法】

協奏機能分子触媒は酸塩基複合効果を有するアミド錯体とアミン錯体の相互変換を駆動力として、図に示すように、段階的に反応基質を活性化しつつ、結合形成を促進する。本研究では、まず触媒活性種の有機金属化学および理論化学研究により、協奏機能の作用原理と触媒機構の解明とともに、触媒設計の概念を非アミン-アミド系



錯体や多核触媒へ拡張し協奏機能触媒の体系化を試みる。次いで、協奏機能の原理を活用して酸素、二酸化炭素、窒素などの不飽和小分子や水、アンモニアなどのプロトン性小分子の錯体レベルでの活性化法を確立する。さらに、単核および多核協奏機能触媒を用いる遍在小分子の固定化法の開拓、具体的に不斉酸素酸化や触媒的水和反応、二酸化炭素の高付加価値品への固定プロセス、窒素と水素の同時活性化による窒素固定など、高難度分子変換システムの開発をめざす。

【期待される成果と意義】

金属-配位子協同効果に基づく協奏機能触媒の概念の確立とその化学の体系化により、1) 触媒設計の統一原理を提示する。また2) 化石資源によらない遍在小分子を炭素、窒素、酸素、水素元素源とする新たな元素戦略に基づく合成技術への展開が、加えて3) 水から水素と酸素の触媒的な生成法の確立によりエネルギー変換技術への貢献が期待される。

【当該研究課題と関連の深い論文・著書】

- ・ T. Ikariya, A. J. Blacker, Asymmetric transfer hydrogenation of ketones with bifunctional transition metal-based molecular catalysts. *Acc. Chem. Res.* 40, 1300–1308 (2007).
- ・ S. Kuwata, T. Ikariya, Hydrogen- and oxygen-driven interconversion between imido-bridged dirhodium(III) and amido-bridged dirhodium(II) complexes. *J. Am. Chem. Soc.* 131, 5001–5009 (2009).
- ・ M. Ito, T. Ikariya, Hydrogenation of *N*-acylcarbamates and -sulfonamides catalyzed by bifunctional Cp\**Ru*(PN) complex. *Angew. Chem. Int. Ed.* 48, 1324–1327 (2009).

【研究期間と研究経費】

平成22年度–25年度  
167,800千円

【ホームページ等】

<http://www.apc.titech.ac.jp/%7Etikariya/index.html>