

山下 誠

名古屋大学大学院工学研究科
教授

超臨界メタンを基質兼媒質とした均一系・不均一系触媒プロセスの開発

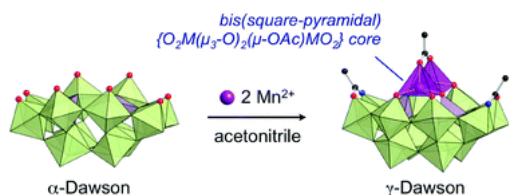
§ 1. 研究成果の概要

平成 30 年度、山下グループでは計算化学を基礎に置いた NHPI 誘導体の合成とこれを触媒としたメタンの酸素酸化を行い、一部は少しだけ反応が進行することを確認した。合わせて、バナジウムオキソ錯体を用いたメタンの酸化反応においてごく少量の MeOH が生成することを確認した。また、高圧流通反応装置のセットアップを完了、次年度へ向けたさらなる準備態勢を整えた。山口グループでは γ -Dawson 型の二核 POM の合成に成功(原著論文 1)すると共に、類似の POM を触媒とした系にてごく少量の MeOH が生成することを確認した。また、二層系の反応を行うためのパーフルオロ系カチオンを合成、POM とのイオン対形成が可能なことを見いだした。菅原グループでは山下グループ、山口グループで作成したオキソ錯体およびパーフルオロ POM 誘導体の高圧メタン条件下での顕微鏡観察を行い、いくつかの錯体に関してメタン雰囲気下での結晶形成や融解挙動を見いだした。

【代表的な原著論文】

1. Hexavacant γ -Dawson-type phosphotungstates supporting an edge-sharing bis(square-pyramidal) $\{O_2M(\mu^3-O)_2(\mu-OAc)MO_2\}$ core ($M = Mn^{2+}, Co^{2+}, Ni^{2+}, Cu^{2+},$ or Zn^{2+})

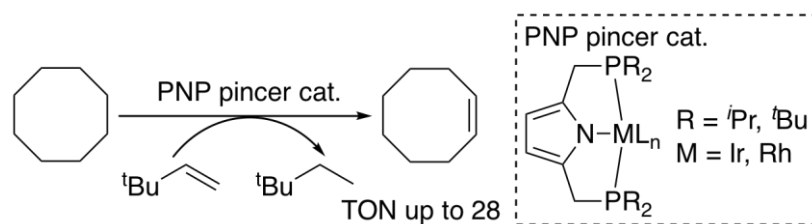
K. Suzuki, T. Minato, N. Tominaga, I. Okumo, K. Yonesato, N. Mizuno, K. Yamaguchi, *Dalton Trans.*, **2019**, *48*, 7281–7289. DOI: 10.1039/C8DT04850A



2. Synthesis and Application of Pyrrole-Based PNP-Ir Complexes to Catalytic Transfer Dehydrogenation of Cyclooctane

Nakayama, S.; Morisako, S.; Yamashita, M.

Organometallics **2018**, *37*, 1304–1313. DOI: 10.1021/acs.organomet.8b00072



§ 2. 研究実施体制

(1) 山下グループ

① 研究代表者: 山下 誠 (名古屋大学大学院工学研究科 教授)

② 研究項目

- バッチ反応による均一系触媒と超臨界メタンの反応の生成物解析
脱水素カップリング触媒検討
酸化反応触媒検討
- フロー反応による不均一系触媒と超臨界メタンの反応の生成物解析
超臨界フロー反応装置開発
脱水素カップリング触媒を用いた超臨界フロー反応
酸化触媒を用いた超臨界フロー反応
- 新規触媒ライブラリの構築
アルカン脱水素に活性な触媒群の合成

(2) 山口グループ

① 主たる共同研究者: 山口 和也 (東京大学大学院工学系研究科 教授)

② 研究項目

- フロー反応による不均一系触媒と超臨界メタンの反応の生成物解析
超臨界フロー反応装置開発
酸化触媒を用いた超臨界フロー反応
- 新規触媒ライブラリの構築
酸化反応に活性な触媒群、特に POM 系触媒の合成

(3) 菅原グループ

① 主たる共同研究者: 菅原 武 (大阪大学大学院基礎工学研究科 助教)

② 研究項目

- 超臨界メタン中での均一系触媒の状態解析