## メソポーラスシリカに固定化した錯体触媒における疎水的反応場の効果

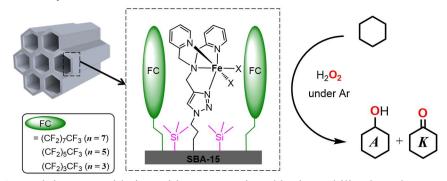
(神奈川大工¹) ○岡村 将也¹・桑本 航¹・坂倉 星哉¹・鮎澤 七南¹・引地 史郎¹ Effect of hydrophobic interaction field on catalysis of metal complexes immobilized on mesoporous silica (¹*Graduate School of Engineering, Kanagawa University*) ○ Masaya Okamura¹, Kou Kuwamoto¹, Seiya Sakakura¹, Nana Aizawa¹, Shiro Hikichi¹

In this work, metal complexes were immobilized on mesoporous silica (SBA-15) and the surface of the silica support was modified with hydrophobic substituents to investigate the effect of the hydrophobic interaction field on the catalytic properties in alkane oxidation and alkene epoxidation reactions. In the immobilized iron complex catalyst shown in Scheme 1, the silica surface was doubly modified with two kinds of hydrophobic groups (long-chain fluoroalkyl and trimethylsilyl (TMS)), and the oxidation of cyclohexane was examined using  $H_2O_2$  as an oxidant. The results showed that the alcohol selectivity was improved compared with that of the hydrophobic modification only TMS, and the selectivity increased with the length of the fluoroalkyl chain.

Keywords: Oxidation reaction; Catalyst; Hydrogen Peroxide; Mesoporous silica

生体内における酵素の触媒機能は、中心となる金属錯体の性質と共に、その周囲を取り囲む反応場(親水性/疎水性)にも依存している。本研究では、メソポーラスシリカ (SBA-15)の細孔内を反応場として捉え、シリカ担体表面のシラノール基 (Si-OH)を疎水性の置換基で修飾した固定化金属錯体触媒を開発し、アルカン酸化反応やアルケンのエポキシ化反応における疎水的反応場の効果を検証した。

Schemel に示す tris(2-pyridylmethyl)amine(TPA)類似配位子による固定化鉄錯体触媒では、シリカ表面を二種類の疎水基(長鎖フルオロアルキル基、及びトリメチルシリル(TMS)基)で二重に修飾し、 $H_2O_2$ を酸化剤としたシクロヘキサンの酸化反応を行った。その結果、TMS 基のみで疎水化した場合と比べて、アルコールの選択性が向上し、疎水基の長さが長くなるほど選択性が高くなることが分かった。これは、疎水基によって錯体触媒が安定化させると共に、酸化生成物の分離を促進する働きがあるためだと考えられる。



Scheme 1. Cyclohexane oxidation with H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> catalyzed by immobilized catalysts.