連続フロー条件下での芳香族化合物の水素化に高活性を示す担持 貴金属触媒の調製

(東大院理¹・東大院理GSC社会連携講座²) 〇降矢裕一¹・石谷暖郎²・小林修^{1,2}

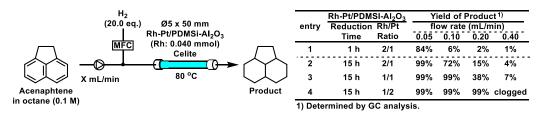
Supported Noble Metal Catalysts Possessing High Activities in Hydrogenation of Aromatic Rings under Continuous-flow Conditions

(School of Science¹ and GSC Social Cooperation Laboratory², The Univ. of Tokyo) OYuichi FURIYA¹, Haruro ISHITANI², Shū KOBAYASHI^{1,2}

Selective hydrogenation of aromatic and heteroaromatic rings is an important game-changing technology for producing fine/commodity chemicals. We have previously reported that Rh–Pt bimetallic catalyst supported on polydimethyl-silane (PDMSi)/Al₂O₃ had high activity for aromatic ring hydrogenation under atmospheric pressure. In order to tune catalytic activity finely for achieving selective hydrogenation with sufficient efficiency, more detail information concerning relationship among catalysts' activities, preparation conditions, and reaction conditions are demanded with suitable evaluation methods. For this purpose, we reinvestigated the preparation step of the catalyst and found a suitable procedure to maximize bimetallic nanoparticle uptake. We also found that catalytic activity was strongly affected by solvent, and partial hydrogenation was also possible by using an appropriate solvent. Further careful investigations on activity-SVmol relationship supplied a highly active catalyst for full-hydrogenation of acenaphthene with good productivity.

Keywords: Aromatic Ring Hydrogenation, Continuous-flow Reaction, Bimetallic Catalyst

芳香環やヘテロ芳香環の温和な条件での選択的な水素化は、医薬品原体や基礎化学品の製造概念を変える重要な技術である。当研究室では常圧下で高い活性を示す核水添触媒として、RhーPt二元貴金属触媒¹⁾を報告しているが、官能基選択性や部分水素化を実現するためには、触媒活性に関する詳細な情報を基にした還元特性の制御が必要である。本研究では、多環式芳香族化合物であるアセナフテンの水素化をモデル反応とし、ポリジメチルシランを後添加する手法により種々の条件下でRhーPt担持アルミナ触媒(PDMSiーRh-Pt/Al₂O₃)を調製、常圧・溶液系でフロー水素活性を評価した。核水素化活性は溶媒の影響を強く受け、最適溶媒では迅速な核水素化が進行するが、条件によっては部分水素化が選択的となることを明らかにした。基質処理量/Rhが収率に与える影響を基に、金属比率や担持量、還元法等の触媒調製条件を系統的に検討し、安定した金属導入量と活性を有する触媒を得ることができた。



1) Kobayashi, S. et al. J. Am. Chem. Soc. 2018, 140, 11325.