

令和 6 年 6 月 20 日現在

機関番号：82626

研究種目：学術変革領域研究(B)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H05082

研究課題名(和文)不均一系触媒および複雑触媒系に即した低エントロピー反応空間の設計理論

研究課題名(英文) Theory for construction of low entropy reaction space toward heterogeneous catalysts and complicated catalysts

研究代表者

宮村 浩之 (Miyamura, Hiroyuki)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員

研究者番号：00548943

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 25,200,000円

研究成果の概要(和文)：二種類の触媒を用いることで相乗的に活性化エネルギーを低減させ、反応促進が可能な協調触媒系に着目し、不均一系触媒であるRh-Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と均一系触媒であるSc(OTf)<sub>3</sub>の協調触媒系を用いる核水添反応を開発した。キノザリンのロイコキノザリンへの選択的水素化を実現する不均一系触媒を新たに開発し、基質溶液と水素を同時に流通させ反応を行う連続フロー合成を達成した。さらに、連続合成プロセスで気液分離や溶媒条件を可能とするFlow-Batch-Separator一体型反応器を開発し、ロイコキノザリンの連続フロー合成と2段階目の誘導化反応を完全に連続システム化することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、環境負荷の低い有機合成法や機能性化学品の生産プロセスが注目される中、省物質消費、省エネルギー社会の実現に高機能触媒や高効率化学プロセスの実現が望まれている。本研究では、半永久的に使用可能な不均一系触媒の開発と、それを用いる連続フロー有機合成反応の開発に焦点を当てた。特に、新たに開発した不均一系触媒を用い、クリーンな原料である水素を原料に、機能性化学品として有用な様々な化合物の連続フロー合成を達成した。今後は本研究で開発した連続フロー合成のスケールアップによる機能性化学品の大量合成の実証や、実生産による社会実装への展開が期待される。

研究成果の概要(英文)：We focused on cooperative catalytic systems which enabled lowering activation energy by synergistic effect. We developed cooperative catalytic systems of Rh-Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Sc(OTf)<sub>3</sub> for hydrogenation of aromatic compounds.

We developed heterogeneous catalysts for selective hydrogenation of quinizarins to leuco-quinizarins under continuous-flow conditions. We also developed Flow-Batch-Separator unified reactor systems to integrate flow synthesis of leuco-quinizarins and derivatization of leuco-quinizarins.

研究分野：有機合成化学

キーワード：低エントロピー反応空間 連続フロー合成 不均一系触媒 協調触媒 水素化反応 核水添反応 アントラキノン化合物

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 近年、有機合成化学において従来のバッチ法に比べ、連続フロー合成法が、環境調和型合成、高い対空間生産性、単離生成プロセスの省略や自動合成への応用といった点から注目されている。しかし現状では、バッチ系で最適化された均一系触媒を液相のままフロー系に展開する、もしくはその触媒を固相に担持することで連続合成に用いるという手法がほぼ全てである(P. H. Seeberger *et al. Chem. Rev.* **2017**, *117*, 11796.)。そのため前者では、触媒活性は均一系触媒とほぼ同等だが、生成物と触媒の除去過程が必要となり、反応系が複雑化し精製過程も煩雑化する。一方、固相に担持した触媒をカラムに充填し、反応基質を通過させるだけで反応を行うフロー系は、精製過程の省略と、連結による効率的な多段階合成も可能にする。また、本手法では生成物に触媒が混入しないことから、その均質性が保たれ高秩序状態が維持される。つまり、本研究領域で定義する「低エントロピー反応空間」の視点から、不均一系触媒を用いる反応系は、低エントロピー保持に最も適した反応系である。

(2) しかし、このような不均一系触媒の場合、担体のかさ高さゆえの活性や選択性の低下がしばしば問題となる。また、不均一系触媒の活性がバッチ系に対し、フロー系で大幅に増大するという例は、これまでほとんど存在しなかった。また、不均一系触媒反応の分子レベルでのメカニズムに即した反応空間を理論的に設計し、触媒活性の向上を行う試みは、世界的に見ても行われていなかった。

(3) そのような中、研究代表者らは、不均一系金属ナノ粒子触媒 (Rh-Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) をカラムに充填し、芳香族化合物と水を同時に流通させることで反応を行う、フロー核水素化反応を開発した。本触媒はフロー系において、触媒回転速度 (TOF/h) が 3000 を超え、バッチ系に比べ最大 27 倍と大幅に向上することを見出した(*J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 11325.)。また、かさ高さや、電子的環境が異なる芳香族化合物の基質によって、バッチ系に対するフロー系での反応加速の度合いが大きく異なった。

(4) 以上のことから、反応空間の違いに由来する物質移動過程のメカニズムの変化と、基質の特性に由来する触媒表面への吸着力の違いを、それぞれ整理して解析することで、不均一系触媒の分子レベルでの反応メカニズムを、これまでにない視点から解明できると考えた。

(5) 近年、環境負荷の低い有機合成法や機能性化学品の生産プロセスが注目される中、省物質消費、省エネルギー社会の実現には高機能触媒や高効率化学プロセスの技術が望まれている。なかでも、医薬品や有機電子材料などの機能性化学品の合成において還元反応は必要不可欠で、化学両論量の金属を含む無機還元剤の消費を必要とする手法が多くある。しかし、このような従来型の反応では、金属を含む廃棄物や有害な廃棄物が大量に発生し、また、目的物の分離・精製にもエネルギーや物質消費を必要であるという課題があった。

### 2. 研究の目的

(1) 本研究においては、核心をなす問として「バッチ系やフロー系といった異なる反応空間で制御される分子集団の動きや、その均質性 (反応空間のエントロピー) がどのようにしてナノから分子レベルの不均一系触媒反応や複雑触媒系のメカニズムに影響を与えるのか?」を設定し、その間に対し、多相系の混合における物質移動過程の可視化と、その分子レベルでの触媒反応メカニズムへの影響の解明、理想的な反応経路の実現を可能とする低エントロピー反応空間設計理論の構築を行う。

(2) また、低エントロピー反応空間設計理論に基づく触媒系の開発を通して、環境負荷の低い有機合成法や機能性化学品の生産プロセスを実現する。

### 3. 研究の方法

(1) 不均一系金属ナノ粒子触媒と均一系 Lewis 酸触媒の協調作用による核水添反応の加速効果

研究代表者らが 2018 年に開発した、不均一系金属ナノ粒子触媒 (Rh-Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) を用いる芳香族化合物の核水添反応では、アニリン誘導体のような電子豊富な芳香環や、複数の置換基を有する芳香環を基質に用いた場合高温高圧条件が必要である、といった課題があった (図 1)。そこで、このような反応性の乏しい基質でも円滑に反応を進行させるべく、研究代表者らは、二種類の触媒を用いることで相乗的に活性化エネルギーを低減化させ、反応促進が可能な協調触媒系に着目した。特に、均一系の Lewis 酸触媒で、芳香環の電子密度を低下させることで、不均一系触媒による核水添

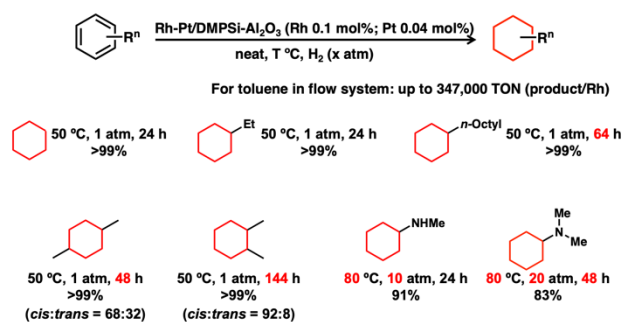


図 1. Rh-Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 触媒を用いる核水添反応

不均一系触媒による核水添

反応が促進できないかと考え、詳細な速度論解析を実施することで、Lewis 酸触媒添加による反応加速効果を解析した。

(2) ロイコキニザリン合成のための二元金属ナノ粒子触媒による連続フロー水素化反応：顔

料染料、医薬品、エネルギー材料など様々な機能性化学品合成において鍵となるロイコキニザリンは、これまで、化学両論量の金属を含む還元剤と酸や塩基を用いることで合成されていた (図 2-①)。しかし、その過程において、大量の金属含有廃棄物や毒性のある廃棄物を生じるとともに、中和が必要であるという課題があった。そこで今回、ロイコキニザリンを、環境負荷の低い水素を還元剤として用いる手法の開発を行った。そのために、高性能な固体触媒の開発、固体触媒を用い気体と液体の原料を直接反応させる連続フロー反応器の開発を行った (図 2-②)。さらに、反応系の低エントロピー性を保持するための、溶媒や水素を自動的に分離・回収可能な連続分離・回収装置の開発を並行して行った。

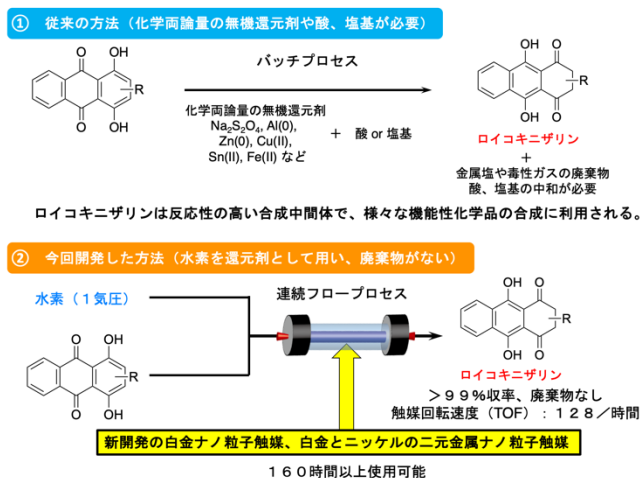


図 2. ロイコキニザリン合成における従来法と今回開発した水素を還元剤として用いる手法の比較

4. 研究成果

(1) 不均一系金属ナノ粒子触媒と均一系 Lewis 酸触媒の協調作用による核水添反応の加速効果 (a)

表 1. Lewis 酸添加による反応加速効果

entry	Lewis acid	x	T	solvent	yield (%)
1	none	0	40	methylcyclohexane	9
2	Yb(OTf) <sub>3</sub>	5	40	methylcyclohexane	89
3	Sc(OTf) <sub>3</sub>	5	40	methylcyclohexane	77
4	Zn(OTf) <sub>2</sub>	5	40	methylcyclohexane	36
5	In(OTf) <sub>3</sub>	5	40	methylcyclohexane	59
6	Cu(OTf) <sub>2</sub>	5	40	methylcyclohexane	0
7	Sc(OTf) <sub>3</sub>	2.5	50	EtOH	88

ジメチルアニリンの核水添反応をモデル反応として、不均一系触媒である Rh-Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と協調作用を示す Lewis 酸触媒の検討を行った。その結果、Sc(OTf)<sub>3</sub> や Yb(OTf)<sub>3</sub> を共触媒として用いることで、大幅な反応加速が発現した (表 1)。

(2) 次に、ジメチルアニリンおよびオルトキシレンを基質として用いた際に、添加する Sc(OTf)<sub>3</sub> の量に対して、反応速度定数をプロットした。その結果、オルトキシレンの核水添反応においては、1mol%の添加で、およそ 30 倍の反応加速が起きていることがわかった (図 3)。

(3) 不均一系触媒である Rh-Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と均一系触媒である Sc(OTf)<sub>3</sub> の協調触媒系を用いる核水添反応における基質一般性の検討を行った (図 4)。その結果、電子豊富で高い置換基や、複数の高い置換基を有する芳香族化合物、ヘテロ芳香族化合物いずれの場合も円滑に反応が進行し、目的の飽和脂環式化合物が高い収率で得られることを見出した。

(4) ロイコキニザリン合成のための二元金属ナノ粒子触媒による連続フロー水素化反応 (b)

ロイコキニザリンへの水素化反応を、不均一系触媒を用いる連続フロー反応条件で検討した。カラムにセライトで希釈した不均一系触媒を充填し、そこにロイコキニザリンの THF 溶液と、常圧の水素ガスを同時に流通させることで、反応を行った。パラジウムもしくは白金をそれぞれ、カーボン、アルミナ、もしくはシリカに担持した市販の触媒を検討したが、いずれの場

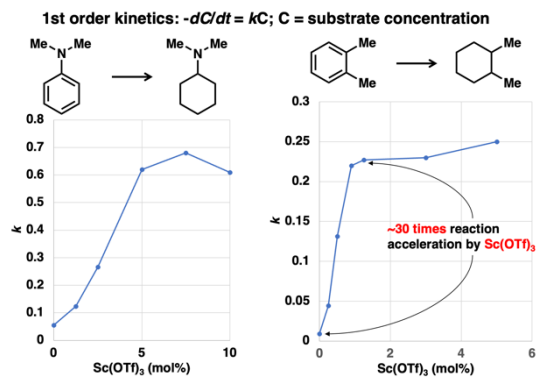


図 3. Lewis 酸の添加量と反応速度定数の相関

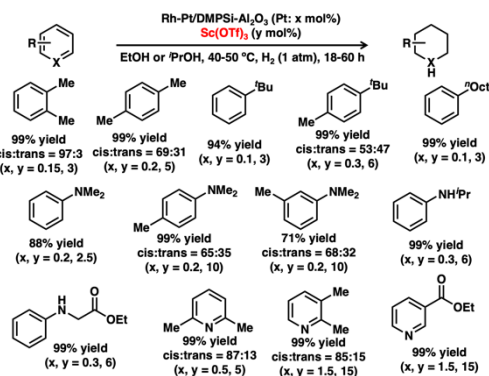


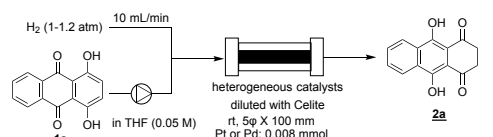
図 4. 協調触媒系における基質一般性

合も触媒回転速度は低く、収率も低くとどまった。その中でも白金触媒がパラジウム触媒に比べて高い活性を示した。そこで、白金ナノ粒子をポリジメチルシランとアルミナの複合担体に担持した触媒 (Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) を用いたところ、連続フロー系で定量的にキニザリンのロイコキニザリンへの水素化反応が進行することが明らかとなった (表 2)。

(5) 次に、置換基を有するキニザリンのフロー水素化反応の検討を行った (図 5)。その結果、置換基のかさ高さゆえ Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いた場合、収率は低くとどまった。そこで、触媒活性の向上を目指し、白金を中心とする様々な二元金属触媒を調製し、検討を行った。Pt-Au 触媒、Pt-Fe 触媒、Pt-Co 触媒、Pt-Ni 触媒のいずれにおいても収率の向上が見られたが、Pt-Ni 触媒以外では、過剰還元による副生成物が確認された。一方で、Pt-Ni 触媒では、過剰還元が進行せず、定量的にロイコキニザリン体が得られた。電子顕微鏡や XPS 分析による触媒構造の解析の結果、二元金属触媒では Pt/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> より、粒子径の小さな白金ナノ粒子が形成されており、それにより触媒活性が向上したと考えられる。一方で、Pt-Fe 触媒、Pt-Co 触媒、Pt-Ni 触媒においては、白金は主にゼロ価であるのに対し、Fe, Co, Ni は主に二価であり、白金に対し電子的な影響を及ぼしていることが明らかとなった。さらに、これらの触媒を用いてアセトフェンの水素化反応を検討したところ、Pt-Ni 触媒ではカルボニル基や芳香環の還元が遅いのに対し、Pt-Fe 触媒、Pt-Co 触媒ではカルボニル基の還元が早く、Pt-Au 触媒では芳香環の還元が早いことが明らかになった。以上の結果から、二元金属触媒においては、第二の金属の Lewis 酸性や白金への電子的な相互作用が、過剰還元の速度に影響し、反応の選択性に大きな影響が出たと考えられる。

(6) Pt-Ni/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を使い、さまざまな置換基を有するキニザリンのロイコキニザリン体へのフロー水素化反応を検討した結果、いずれの場合においても >99% 転化率、>99% 選択性で目的物が得られた (図 5)。特筆すべき点としては、Pt-Ni/DMPSi-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は非常に安定しており、同一の触媒カラムを用いて複数の基質の検討を行った場合もいずれも定量的に目的物が得られ、すくなくとも 160 時間以上の使用においても活性が低下しなかった。

表 2. キニザリンのフロー水素化反応検討



Entry	Catalyst	Max. TOF (h) [SV] <sup>a</sup>	Conversion (%) <sup>a</sup>	Selectivity (%) <sup>c</sup>	Yield (%) <sup>c</sup>
1	Pd/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	19 [0.17]	91	97	88
2	Pt/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	26 [0.29]	77	95	73
3	Pd/SiO <sub>2</sub>	5.4 [0.24]	18	99	18
4	Pt/SiO <sub>2</sub>	26 [0.28]	82	91	75
5	Pd/C	12 [0.23]	42	99	42
6	Pt/C	47 [0.62]	60	99	60
7	Pt/DMPSi-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	88 <sup>d</sup> [0.70]	99	99	99
8	Pt/DMPSi-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	128 [1.10]	93	99	93

<sup>a</sup> Determined by HPLC analysis using a calibration curve for the ratio of **1a** to **2a**. When by-products exist, the integration ratio at 254 nm (PDA) was used to determine selectivity. <sup>b</sup> Value of SV (space velocity (mmol/h) = flow rate \* concentration) that gave the maximum TOF. TOF = SV \* yield/[metal (mmol) in the column]. SV means the hourly amount of substrate that passed through the catalyst column. <sup>c</sup> Yield = conversion \* selectivity. <sup>d</sup> The highest TOF value obtained under the conditions that gave both 99% conversion and 99% selectivity.

(7) ロイコキニザリンは、求核剤や求電子剤と反応させることで、様々なアントラキノン化合物へ変換することができます。そこで、フロー水素化反応によって合成されるロイコキニザリンを、単離することなく直接アントラキノン化合物へ誘導化する反応を設計することとした。キニザリンは溶媒への溶解度が非常に低いため、フロー水素化反応は低濃度で行う必要がある。しかしながら、ロイコキニザリンと求核剤もしくは、求電子剤との反応は基本的に二分子反応であり、高濃度条件を必要とする。そこで、図 6 のように、あらかじめ求核剤もしくは求電子剤を高沸点溶媒に溶解させた溶液を導入した Dean-Stark 濃縮器と空冷管を組み合わせた反応器に、フロー水素化で得られるロイコ

図 5. 置換基を有するキニザリンのフロー水素化

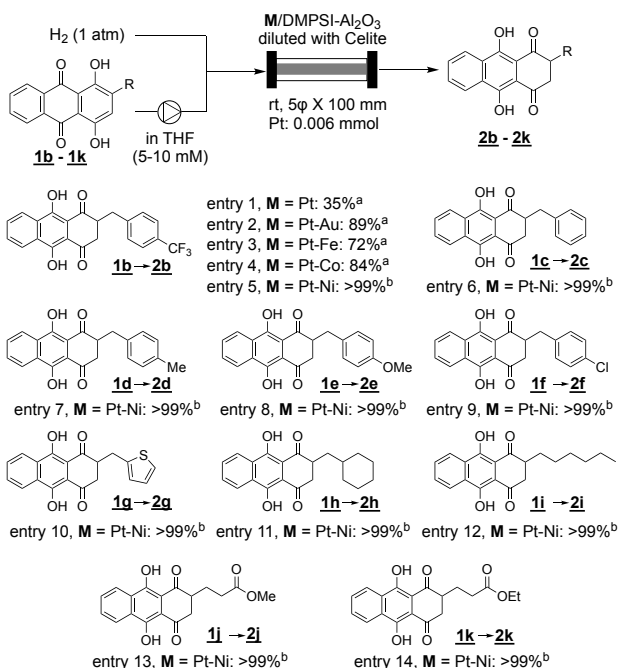
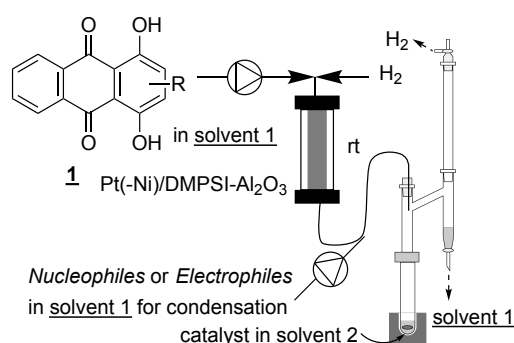


図 6. Flow-Batch-Separator 一体型反応器



キニザリン溶液を直接導入する Flow-Batch-Separator 一体型反応器を開発した。ロイコキニザリンのフロー水素化反応を低沸点溶媒を用いて行うことで、Flow-Batch-Separator 一体型反応器により、低沸点溶媒と過剰の水素は、すぐさま反応系から除去され、基質の高濃度を維持することが可能である。

(8) 新たに開発した Flow-Batch-Separator 一体型反応器を用いて、様々なフロー水素化で合成したロイコキニザリンの直接誘導化を行った (図7)。求電子剤としてアルデヒド、触媒としてピペリジニウムアセテートを用いることで、Marschalk 反応の名で知られる、アルドール反応と分子内酸還元反応が進行する。本反応によって、無置換のキニザリンから、2位に置換基を有する様々なキニザリン誘導体を合成することができる。さらに、すでに2位に置換基を有するキニザリンを基質として用いることで、3位に別の置換基を容易に導入することも可能であった (図7-a~c)。

(9) 一方、求核剤としてアミンを用いることで、1, 4-ジアミノアントラキノン化合物を合成することも可能であった。1, 4-ジアミノアントラキノン化合物は DNA インターカレーターとして生物活性を有するとともに、近年有機レドックスフロー電池材料として注目を集めている (図7-d)。

(10) 図7の反応システムでは、2段階目の反応がバッチシステムであるために、完全な連続合成を行うことができなかった。そこで、ロイコキニザリンの連続フロー合成と2段階目の誘導化反応をあ完全に連続システム化するために、図8に示す反応システムを構築した。高沸点溶媒に溶解させた求核剤もしくは求電子剤の溶液を一定流速で送液し、フロー水素化反応器から溶出されるロイコキニザリン溶液と合流させ Flow-Batch-Separator 一体型反応器に注入する。求核剤もしくは求電子剤の溶液の流速と同じ流速で、Flow-Batch-Separator 一体型反応器の溶液を、加熱したカラム型反応器に流通させることで、連続的にフロー水素化反応とロイコキニザリンの誘導化反応を実現した。この際、Flow-Batch-Separator 一体型反応器の溶液量は任意の容量に設定することができるため、二段階目の反応速度定数に応じて、柔軟に対応することが可能で、様々な誘導化反応に適用可能と考えられる。

<参考文献>

(a) H. Miyamura\*, S. Kobayashi\*, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2022**, e202201203; (b) H. Miyamura\*, A. Sharma, M. Takata, R. Kajiyama, S. Kobayashi, Y. Kon, *ACS Catal.* **2024**, DOI: 10.1021/acscatal.4c02955.

図7. フロー水素化で合成したロイコキニザリンの直接誘導化

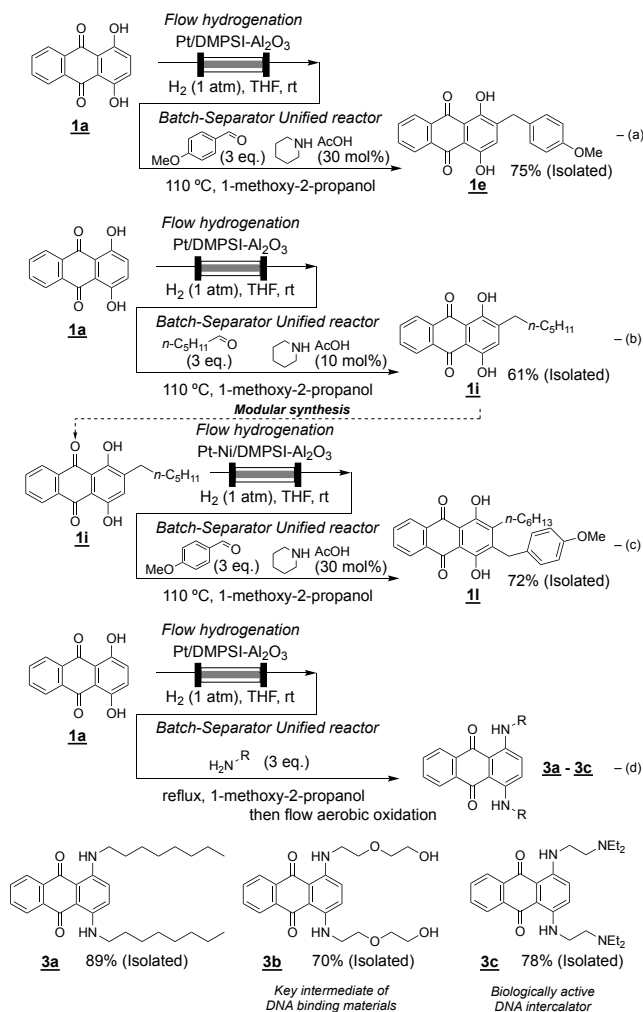
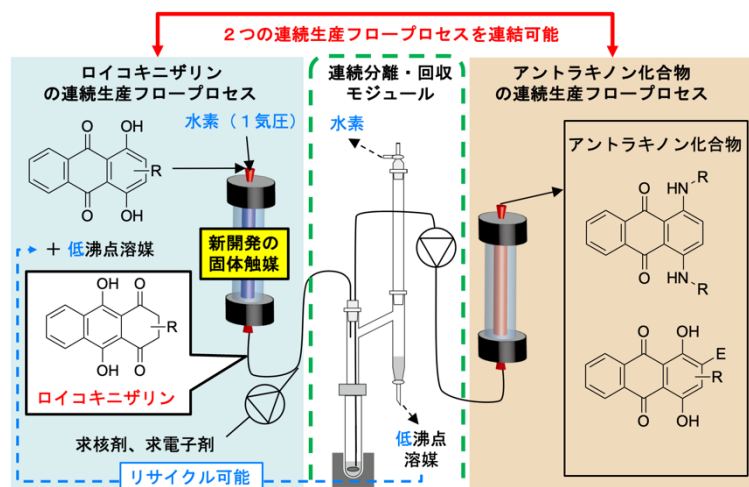


図8. フロー水素化とロイコキニザリン誘導化の完全連続フロー合成システムによる連結



本連続プロセスで合成されるアントラキノン化合物は、顔料・染料、医薬品、DNAインターカレーター、レドックスフロー電池材料などの機能性化学品として有用な化合物

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Miyamura, H.; Kobayashi, S.	4. 巻 61
2. 論文標題 Reaction Rate Acceleration of Cooperative Catalytic Systems: Metal Nanoparticles and Lewis Acids in Arene Hydrogenation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Angew. Chem., Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 e202201203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202201203.	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miyamura, H.; Suzuki, A.; Zhu, Z.; Kobayashi, S.	4. 巻 17
2. 論文標題 Hydrogen Generation from Organic Hydrides under Continuous-Flow Conditions Using Polymethylphenylsilane-Aluminum Immobilized Platinum Catalyst	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chem. Asian J.	6. 最初と最後の頁 e202200569
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/asia.202200569	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Cherkasov, Nikolay; Asano, Shusaku; Tsuji, Yuta; Okazawa, Kazuki; Yoshizawa, Kazunari; Miyamura, Hiroyuki; Hayashi, Jun-ichiro; Kunitsa, Alexander A.; Jackson, S. David	4. 巻 2023
2. 論文標題 Mechanistic origins of accelerated hydrogenation of mixed alkylaromatics by synchronised adsorption over Rh/SiO <sub>2</sub>	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Reaction Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 1341-1348
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3RE00032J	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Miyamura, Hiroyuki; Sharma, Aditya; Takata, Masakazu; Kajiyama, Ryosuke; Kobayashi, Shu; Kon, Yoshihiro	4. 巻 14
2. 論文標題 Selective Hydrogenation of Quinizarins to Leuco-quinizarins and Their Direct Derivatization Using Flow-Batch-Separator Unified Reactors under Continuous-Flow Conditions	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 ASAP
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.4c02955	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Asano, S.; Miyamura, H.; Matsushita, M.; Kudo, S.; Kobayashi, S.; Hayashi, J.	4. 巻 14
2. 論文標題 Impact of gas-solid direct contact on gas-liquid-solid reaction performance in a flow reactor	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Flow Chemistry	6. 最初と最後の頁 329-335
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s41981-023-00295-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 不均一系触媒とフローシステムが実現する低エントロピー反応空間
3. 学会等名 神戸大学理学部 有機化学研究セミナー (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 多相系フロー精密合成を指向した不均一系触媒の開発
3. 学会等名 2022年度 マイクロ化学プロセス分科会 講演会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 低エントロピー反応空間における触媒反応：フロー反応が引き出す触媒機能の真価
3. 学会等名 日本化学会秋季事業 第12回 CSJ化学フェスタ (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 不均一系超分子触媒の開発と連続フロー反応への展開
3. 学会等名 第46回触媒化学融合研究センター研究交流講演会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 高活性不均一系触媒の開発を基盤とする連続フロー反応
3. 学会等名 マイクロフローコンソーシアム 2021年度 第二回オンライン講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 不均一系触媒および複雑触媒系に即した低エントロピー反応空間の設計理論
3. 学会等名 第一回 低エントロピーシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 不均一系触媒および複雑触媒系に即した低エントロピー反応空間の設計理論における研究進捗報告
3. 学会等名 第二回 低エントロピーシンポジウム
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 Hiroyuki Miyamura, Shu Kobayashi
2. 発表標題 Development of reductive cleavage of aryl ethers using cooperative catalytic systems of heterogeneous metal nanoparticles and Lewis acids
3. 学会等名 日本化学会 第102回春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 フローシステムが拓く反応空間の低エントロピー化：触媒反応やバイオ反応の高秩序化と機能連携
3. 学会等名 2023年度領域講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宮村浩之
2. 発表標題 異種材料の融合と連続フロー反応系が拓く有機合成化学
3. 学会等名 第13回サブウェイセミナー（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hiroyuki Miyamura
2. 発表標題 Development of Highly Active and Robust Heterogeneous Catalysts for Continuous-Flow Synthesis
3. 学会等名 CES-CHEM Meeting 2023（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

## 〔図書〕 計1件

1. 著者名 宮村浩之、監修：深瀬浩一、永木愛一郎	4. 発行年 2021年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 250
3. 書名 フローマイクロ合成の最新動向 第4章 不均一系触キラル超分子金属クラスター触媒の開発と連続フロー系への展開	

## 〔出願〕 計3件

産業財産権の名称 ナノ粒子触媒とルイス酸とを含む触媒組成物、および水素化合物の製造方法	発明者 小林修、宮村浩之	権利者 国立大学法人東京大学
産業財産権の種類、番号 特許、DF213227	出願年 2022年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 ロイコキニザリン類の製造方法および製造装置	発明者 宮村浩之、今喜裕	権利者 国立研究開発法人産業技術総合研究所
産業財産権の種類、番号 特許、特願2023-187951	出願年 2023年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 脱水触媒とその製造方法、脱水還元触媒とその製造方法、アルコールやケトンからアルケンやアルカンなどの脱酸素化合物を製造する脱酸素化合物の製造方法	発明者 宮村浩之、永島裕樹、今喜裕	権利者 国立研究開発法人産業技術総合研究所
産業財産権の種類、番号 特許、特願2023-174312	出願年 2023年	国内・外国の別 国内

## 〔取得〕 計0件

## 〔その他〕

低エントロピー 学術変革領域研究(B) <a href="https://www.chem.s.u-tokyo.ac.jp/users/synorg/lowentropy/">https://www.chem.s.u-tokyo.ac.jp/users/synorg/lowentropy/</a> 低エントロピー 学術変革領域研究(B) <a href="https://www.chem.s.u-tokyo.ac.jp/users/synorg/lowentropy/">https://www.chem.s.u-tokyo.ac.jp/users/synorg/lowentropy/</a>
--

## 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	八谷 巖 (Hachiya Iwao)  (50312038)	三重大学・工学研究科・教授   (14101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------