研究成果報告書 科学研究費助成事業

元 年 今和 6 月 1 3 日現在

機関番号: 16301

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2016~2018

課題番号: 16K06855

研究課題名(和文)高難度選択水酸化反応を触媒する新規遷移金属錯体含有固体触媒の開発

研究課題名(英文)Development of a novel solid catalyst with transition metal complex for selective hydroxylation

研究代表者

山口 修平 (Yamaguchi, Syuhei)

愛媛大学・理工学研究科(工学系)・准教授

研究者番号:50397494

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文):フェノール類は様々な有機物の中間体である。フェノール類の多くは多段階プロセスで工業的に生産されている。例えば、フェノールの商業的な生成方法として広く用いられているクメン法は3段階のプロセスが必要である。一方、環境に優しい酸化剤を用いたベンゼンからフェノールへの直接水酸化反応が大変注目を集めている。

スタに日さ来のといる。 我々は鉄錯体内包ゼオライト触媒を改良して、効率の良いベンゼン酸化触媒の開発を試みた。触媒活性部位の鉄 錯体部分、生成物捕捉部位のカチオンを最適化することで、ベンゼン酸化活性を向上することに成功した。さら に陽イオン交換樹脂を担体として鉄錯体を固定化することでさらに活性の高い触媒の開発に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 我々は、ゼオライト空孔内に遷移金属錯体を触媒活性部位として導入し、さらにゼオライトに存在するカチオン部分を生成物捕捉部位として、有機基質の選択水酸化反応を進行させることに成功した。触媒活性部位とカチオン部位の組合せを考慮して触媒を調製することでフェノールの一段階での水酸化反応が実現できると考えている。フェノール樹脂など非常に用途の広いフェノールが一段階の反応プロセスで合成ができれば、従来の多段階の反応プロセスで用いられていた試薬、溶媒、エネルギーなどの大幅な低減が期待でき、環境・エネルギー問題 に大きく貢献できると考えられる。

研究成果の概要(英文): Phenols are various organic intermediates. Most of the phenols are produced industrially in a multistage process. For example, the cumene method, which is widely used as a commercial method for producing phenol, requires a three-step process. On the other hand, the direct hydroxylation of benzene to phenol with environmentally friendly oxidants has attracted much attention.

We tried to develop an efficient benzene oxidation catalyst to improve iron complexes encapsulated into zeolite. By optimizing the iron complex moiety as a catalytic active site and the cation moiety as the product capture site, improving the benzene oxidation activity was succeeded. Furthermore, developing a catalyst with higher activity by immobilizing the iron complex using a cation exchange resin as a carrier was also succeeded.

研究分野: 触媒科学

キーワード: フェノール合成 ベンゼン酸化 固体触媒 金属酸化触媒 ゼオライト 一段階合成 過酸化水素 活性中間体捕捉

様 式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

1.研究開始当初の背景

有機基質の水酸化反応は、有機合成化学・有機工業化学プロセスにおいて最も重要な反応プロセスの一つである。ベンゼンからフェノールなど有用な化合物の水酸化反応が知られているが、これらは多段階のプロセスで進行しているため、多くの副生成物が発生し、合成には多くのエネルギーが必要となる。一方、生体系に着目すると、水中、酸素を酸化剤として常温・常圧でベンゼンからフェノールへ一段階プロセスで選択的に進行する遷移金属含有酵素が存在する。それらの活性中心は遷移金属イオンで構成されており、活性中心を模したモデル錯体が多く報告されているが(Que and Tolman, Science, 455, 333 (2008))、オレフィンのエポキシ化反応などが選択的に進行する触媒の報告例はあるものの、選択的水酸化反応はほとんど実現されていない。

申請者はこれまでに、銅含有酵素の活性中心近傍の構造を模倣した低分子量銅錯体を独自に設計・合成し、銅-活性酸素種、その中でも特に単核銅-ハイドロパーオキソ種の性質について検討を行なってきた(Sci. Tech. Adv. Mater., 6, 34 (2005))。配位子内に水素結合形成部位を導入し、ハイドロパーオキソ種との相互作用について検討したところ、水素結合部位の位置により安定化・活性化という相反する性質を制御できることを明らかにした(Chem. Lett., 33, 1556 (2004), Inorg. Chem., 42, 6968 (2003))。また、中心金属周りが平面四配位型となるように設計した三座型配位子を用いた単核銅-ハイドロパーオキソ錯体がチオエーテルの酸化反応に非常に高い活性を示し、金属周りの構造制御がハイドロパーオキソ種の活性化に重要であることを指摘した(Chem. Commun., 2700 (2003))。さらに、その銅錯体は過酸化水素を酸化剤として用いた炭化水素類に対する酸化反応に比較的良い触媒活性を示すことが明らかとなったが、この銅錯体は均一系触媒として働くために触媒の回収・再利用が困難であり、さらに銅錯体の配位子部分が分子間酸化されるために失活が起きることが問題点として残った。

2.研究の目的

申請者は、Y型ゼオライト空孔内に均一系錯体を固定化することで、上記の問題点を克服することができると考えた。このゼオライト空孔内に鉄錯体を合成し、シクロヘキセンと過酸化水素を酸化剤として用いて酸化反応を行ったところ、2-シクロヘキセン 1-オールつまりアルコールが約90%という高い選択率で生成した。この反応を鉄錯体のみで行った場合、アルコールの選択率が著しく低くかった。しかもスーパーケージ内に鉄錯体を閉じ込めた触媒は同じ反応を3回繰り返し行っても選択率は約90%を保っていた。また、水溶媒中で反応を行うと、この鉄錯体内包ゼオライト触媒は同様なアルコールの収量とほぼ100%という非常に高い選択率を示すことがわかった(Chem. Lett., 41, 713 (2012))。さらに分子状酸素を酸化剤として用いた場合でもシクロヘキセンの酸化反応が進行し、前述の触媒を用いると選択的に水酸化反応が進行することがわかった(Catal. Today, 242, 261 (2015))。一方、近年報告されている金属錯体内包ゼオライト触媒を用いたシクロヘキセンなどの有機基質に対する酸化反応では、アルコール生成の選択率は26-50%程度と非常に低いという結果が得られている(Costa et al., J. Mol. Catal. A, 282, 149 (2008), Chen et al., J. Catal., 257, 215 (2008))。

上記のような、シクロヘキセンの酸化反応過程では、アルコールが生成した後、さらに酸化されてケトンを生じる。前述のアルコール生成の選択率の低い理由として、生成したアルコールの再酸化が原因であると考えられる。申請者の鉄錯体をゼオライトに内包した系では、ゼオライトの空孔内に、鉄錯体とともにイオン交換の際に残存しているナトリウムイオンが存在している。このナトリウムイオンが生成したアルコールを捕捉するために再酸化を抑制し、結果としてアルコールの高選択性が発現したと考察している。

さらに、過酸化水素を酸化剤として用いて、反応が進行しにくいベンゼンを基質として酸化 反応を検討した結果、触媒的に酸化反応が進行し、アセトニトリル溶媒中で選択的に水酸化反 応が進行し、フェノールのみが生成することが明らかとなった。また、水を溶媒としたときも ベンゼンの水酸化反応が進行し、フェノールとカテコールが生成することを確認している。さ らにアセトニトリルと水との混合溶媒を用いることでベンゼン酸化活性が顕著に向上すること を明らかにした(Chem. Lett., 44, 1287 (2015))。

そこで、本申請の研究では、ゼオライト空孔内の遷移金属錯体部分を触媒活性部位、カチオン部分をアルコール捕捉部位(生成物捕捉部位)とみなし、ベンゼンからフェノールへの選択水酸化反応を触媒する固体酸化触媒の開発し、その触媒の活性・選択性・寿命に関する様々な反応条件について検討することで、ベンゼンからフェノールへの一段階合成プロセスを確立することを目標として研究を遂行した。さらに、Y型ゼオライトそのものが反応活性や選択性にどのように影響しているかを解明するために、他の多孔体や層状化合物を用いて検討を行った。

3.研究の方法

本研究では、 遷移金属錯体固定化触媒(不均一系触媒)の設計及び合成(比較として、均一系遷移金属錯体触媒も合成) 合成した遷移金属固定化触媒の物性評価、 酸化反応による各触媒の性能評価の3項目について研究を遂行した。まず、種々の鉄錯体内包ゼオライト触媒を用いて、過酸化水素を酸化剤としたベンゼンの酸化反応を行い、フェノールの生成量からこの触媒の水酸化能を検討した。この知見をもとにして、遷移金属錯体部分(触媒活性部位)やカチオン部分(生成物捕捉部位)を変換し、さらにフェノールの一段階合成反応に適した触

媒の開発を推進した。

- (1) 鉄錯体内包ゼオライト触媒の触媒活性部位にある鉄錯体部分の配位子を変換し、その触媒を用いたベンゼン類の酸化反応を行い、ベンゼン水酸化能力について検討した。ゼオライトの空孔内で合成する鉄錯体を別途均一系遷移金属錯体として合成し、内包触媒との活性・選択性の違いについて比較検討した。
- (2) 遷移金属錯体内包ゼオライト触媒の基質認識部位にあるカチオン部分をナトリウムイオンから有機カチオンへ変換し、その触媒を用いたベンゼン類の酸化反応を行い、ベンゼン水酸化能力について検討した。
- (3) 有機高分子であり基質の呼び込みを容易にすることが期待できるイオン交換樹脂(Nafion, PK216LH, RCP145H, RCP160M)に鉄錯体を固定化した触媒を調製し,ベンゼン酸化反応を行い、フェノール水酸化能力について検討した。
- (4) 銅錯体を内包したゼオライト触媒を調製し、種々の反応条件のチオアニソールの酸化反応を行うことで速度論的パラメーターを算出した。室温で過酸化水素との反応により、触媒が色の変化をすることから、酸化剤により活性化した触媒を用いた基質に対する酸化活性を検討した。

4. 研究成果

研究成果を研究計画の項目ごとにまとめた。 (1) 触媒の活性部位(鉄錯体)の最適化

鉄錯体内包ゼオライト触媒の新たな設計 指針を考慮すると、反応活性部位は鉄錯体と なるので、種々の鉄錯体を導入した鉄錯体内 包ゼオライト触媒([Fe(Ligand)x]²⁺@Y (Ligand = Bpy, Phen, Terpy)) を調製した。 $[Fe(Ligand)_x]^{2+}@Y(Ligand = Bpy, Phen, Terpy)$ は XRD ,UV-vis ,CHN ,ICP-AES 測定により、 ゼオライトスーパーケージ内への鉄錯体の 固定化が確認された。それらを用いたシクロ ヘキセン酸化反応では、どの鉄錯体内包ゼオ ライト触媒においても対応するアルコール (2-シクロヘキセン-1-オール)が優先的に生 成することが明らかとなり、鉄錯体内包ゼオ ライト触媒は炭化水素類の直接水酸化反応 に有効な触媒であることがわかった。Fig. 1 には,種々の環状炭化水素類(シクロヘキサ ン・シクロヘキセン・ベンゼン)の酸化反応を 行った結果を示している.3 つの配位子(Bpy,

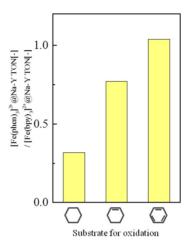


Fig. 1 種々の環状炭化水素類の酸化反応に対する [Fe(Bpy)₃]²⁺@Na-Y を基準とした[Fe(Phen)₃]²⁺@Na-Y の 触媒活性 .

Phen, Terpy) の中ではもっとも π -電子系の小さいビピリジン配位子(Bpy)を有する [Fe(bpy) $_3$] $^{2+}$ @Na-Y を基準とすると,比較的広い π -電子系を持つフェナントロリン配位子(Phen)を有する[Fe(phen) $_3$] $^{2+}$ @Na-Y では,基質の π -電子性が高くなるにつれて活性が向上した.ターピリジン配位子(Terpy)においても,基質の π -電子性が高くなるにつれて活性が向上する同様の傾向が見られた.配位子の π -電子性を考慮することで, π -電子性の異なる基質の取り込み能力を制御できることが示唆された.

(2) 触媒の生成物捕捉部位の最適化

鉄錯体内包ゼオライト触媒の新たな設計指針の中で、ナトリウムカチオン部分は生成部位補足部位として働き、生成物の選択性に関連していると考えている。そこで、この触媒の電荷補償のために存在する Na^+ カチオン部分を有機カチオンに交換した鉄錯体内包カチオン交換ゼオライト($[Fe(bpy)_3]^{2+}@M-Y(M=Na,NH_4,N(CH_3)_4(TMA),N(C_4H_9)_4(TBA)))$)触媒を調製し、交換カチオンがベンゼン酸化触媒活性に与える影響について調査した。

水溶媒中で[Fe(bpy)3]²⁺@M-Y を触媒として 用いた過酸化水素を酸化剤とするベンゼン の酸化反応を行った。どの触媒を用いても主

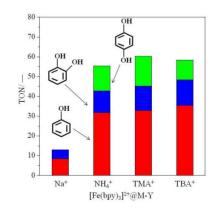


Fig. 2 水溶媒中での鉄錯体内包カチオン交換ゼオライト触媒の($[Fe(Bpy)_3]^{2+}@M-Y$)のベンゼン酸化活性 .

生成物としてフェノールが生成した。交換したカチオンが有機カチオンの場合、 Na^+ より高い活性を示した($Fig.\ 2$)。有機カチオンを導入することで触媒活性が大いに向上することから、有機カチオン導入により鉄錯体周りに疎水場が形成し、基質であるベンゼンを取り込みやすくなったため、ベンゼン酸化が促進されたと考えた。

(3) 担体への疎水場の付与

前述の通り、鉄錯体内包カチオン交換ゼオライト触媒を用いたベンゼン酸化反応を行ったところ、有機カチオンを導入することで触媒活性が向上することがわかった。そこで本研究では、有機高分子であり基質の呼び込みを容易にすることが期待できるイオン交換樹脂(Nafion, PK216LH, RCP145H, RCP160M)に[Fe(terpy) $_2$] 2 +錯体を固定化した触媒を調製し、ベンゼン酸化

反応を行った。各触媒を用いてベンゼン酸化を反応行ったところ、すべての触媒で選択的にフェノールが生成し、 $[Fe(terpy)_2]^{2+}$ @Nafion が最も高い触媒活性を示すことがわかった。スチレン骨格を持つ 3 つのイオン交換樹脂(PK216LH,RCP145H,RCP160M)は反応中に溶解しており、不均一系触媒としては不適切であることがわかった。一方、Nafion は酸化剤に対する耐久性があり、本反応におけるイオン交換樹脂担体として期待できる。

当研究室で用いてきた鉄錯体内包ゼオライト 触媒と[Fe(terpy)₂]²⁺@Nafion 触媒とのベンゼン 酸 化 活 性 を 比 較 し た と こ ろ (Fig. 3)、 [Fe(terpy)₂]²⁺@Nafion 触媒が最も高い活性を示 すことが明らかとなり、鉄錯体周りの疎水的な 環境がベンゼン酸化反応に対してポジティブに 働くことが明らかとなった。

(4) 反応活性種の捕捉

銅錯体内包ゼオライト触媒([Cu(terpy)]²+@Y)を調製し、種々の条件下で過酸化水素を酸化剤としたチオアニソールの酸化反応を行い、速度論的な手法を用いて、反応活性種の追跡を行った。触媒・基質・酸化剤のモル量と反応速度を対数プロットしたところ、Cu-OOH種の生成反応が律速段階であることが明らかとなった。[Cu(terpy)]²+@YとCu-Yを用いて、活性種の安定性および反応活性について検討した。それぞれの銅含有触媒に過酸化水素を添加すると、[Cu(terpy)]²+@Yは黄緑色へ変化したが,Cu-Yは全く変化せず淡青色のままであった。過酸化水素を添加した後、遠心分離にて回収した触媒([[Cu(terpy)]²+@Y]*, [Cu-Y]*)を用いて、チオアニソールの酸化反応を行った(Fig. 4)。

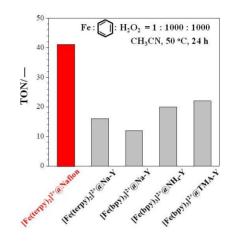


Fig. 3 ベンゼン酸化反応に対する各鉄錯体固定化触 媒における活性比較.

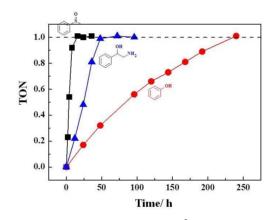


Fig. 4 各基質に対する[[Cu(terpy)] $^{2+}$ @Y]*の反応活性 基質:チオアニソール(), フェネチルアミン(), ベンゼン().

 $[[Cu(terpy)]^{2+}@Y]$ *では反応が徐々に進行し、スルホキサイドが選択的に生成した。触媒回転数 (TON)は 1 で飽和し、銅に対して等量の活性種のみが生成していたことを示す結果が得られた。また、[Cu-Y]*では 24 時間後も全く反応が進行しなかったことより、活性種は生成しないか、既に失活していたと考えられる。Fig.~4 より、 $[[Cu(terpy)]^{2+}@Y]$ *はベンゼンやフェネチルアミンの C-H 結合に対する酸化活性を示すことが明らかとなった。以上の結果から、 $[[Cu(terpy)]^{2+}@Y]$ *中では、活性な Cu-OOH 種は安定に存在できることがわかった。

(5)今後の研究展開について

本課題の研究結果を受け、ベンゼンの酸化反応を促進する遷移金属錯体固定化触媒の開発を継続的に行っていく。

遷移金属錯体内包ゼオライト触媒において、触媒活性部位としてはたらく遷移金属錯体(銅・鉄・ニッケル錯体をまずは探索する)を様々に変えて反応活性を検討する。さらに、生成物捕捉部位や親水性部位としてはたらくナトリウムイオンなどのカチオン部位は、種々の金属カチオンはもとより、有機カチオンなどとイオン交換することで、生成物の捕捉・有機基質の捕捉などの効果が見込めるため、今後も継続的な検討課題である。

また、銅錯体内包ゼオライト触媒において、銅 - 活性酸素種の捕捉に成功しており、配位子を変えた銅錯体や他の遷移金属を用いたものでも同様に活性中間体を捕捉できるかどうかを引き続き検討していく。

また、ベンゼン酸化の反応条件についてはまだ改良の余地が残されているので、触媒の改良と並行して反応条件の最適化を行っていき、選択率 90%以上、基質転化率 30%以上を当面の数値目標に掲げて今後も検討を継続する予定である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 9件)

Syuhei Yamaguchi, Kohei Miyamoto, Hidenori Yahiro, Catalytic oxidation of benzene to phenol with hydrogen peroxide over Feterpyridine complexes supported on a cation exchange resin, Catalysis Communication, 查読有, Vol. 116, 2018, 48-51

DOI: 10.1016/j.catcom.2018.08.011

Syuhei Yamaguchi, Yuki Miyake, Keiko Takiguchi, Daijiro Ihara, Hidenori Yahiro, Oxidation of cyclic hydrocarbons with hydrogen peroxide over iron complexes encapsulated in cation-exchanged zeolite, Catalysis Today, 查読有, Vol. 303, 2018, 249-255

DOI: 10.1016/j.cattod.2017.10.047

Syuhei Yamaguchi, Akinori Suzuki, Makoto Togawa, Maiko Nishibori, Hidenori Yahiro, Selective Oxidation of Thioanisole with Hydrogen Peroxide using Copper Complexes Encapsulated in Zeolite: Formation of a Thermally Stable and Reactive Copper Hydroperoxo Species, ACS Catalysis, 查読有, Vol. 8, 2018, 2645-2650

DOI: 10.1021/acscatal.7b04092

Hiroyuki Yamaura, Hiroki Takahashi, Makoto Fukuoka, Maiko Nishibori, <u>Syuhei Yamaguchi</u>, Hidenori Yahiro, PM oxidation over Ag-loaded perovskite-type oxide catalyst prepared by thermal decomposition of heteronuclear cyano-complex precursor, Catalysis Today, 查読有, Vol. 332, 2019, 83-88

DOI: 10.1016/j.cattod.2018.08.019

Syuhei Yamaguchi, Daniel Sánchez-Rodríguez, Hidenori Yahiro, Catalytic Activity of Liquid-phase Reaction over Perovskite-type Oxide Catalyst Sythesized from Heteronuclear Metal Cyano Complex Precursors, Ceramics Transaction,查読有, Vol. 264, 2018, 165-178

Daniel Sánchez-Rodríguez, <u>Syuhei Yamaguchi</u>, Daijiro Ihara, Hiroyuki Yamaura, Hidenori Yahiro, Self-propagating high-temperature synthesis of highly dispersed noble metals on ceria powder: Application to Pd/CeO₂ catalyst, Ceramics International, 查読有, Vol. 43, 2017, 14533-14536 DOI: 10.1016/j.ceramint.2017.07.208

<u>Syuhei Yamaguchi</u>, Hiroyuki Yamaura, Kenta Morihara, Masataka Iwasaki, Hidenori Yahiro, Selective Oxidation of Thioanisole with Hydrogen Peroxide using Copper Complexes Cyanosilylation of Benzaldehyde with Trimethylsilyl cyanide over Zn-Sn Mixed Oxide Catalysts

with Cubic-shaped Particles, Chemistry Letters, 查読有, Vol. 45, 2016, 851-853

DOI: 10.1246/cl.160320

Syuhei Yamaguchi, Hiroki Wada, Takahisa Okuwa, Hidenori Yahiro, Cyanosilylation of benzaldehyde with TMSCN over A-site metal substituted perovskite-type oxide catalyst prepared by thermal decomposition of heteronuclear cyano complex precursors, Ceramics Transaction, 查 読有, Vol. 257, 2016, 81-90

Hiroyuki Yamaura, Shinsuke Hirao, <u>Syuhei Yamaguchi</u>, Hidenori Yahiro, Investigation on Reduction Behaviors of SnO₂ and SnO₂-Supported CuO Sensor Materials by Temperature-Programmed Reduction Method Combined with Resistance Measurement, Sensors and Materials,查読有, Vol. 28, 2016, 1203-1210

DOI: 10.18494/SAM.2016.1281

[学会発表](計20件)

山口修平・山下祐輝・八尋秀典, 鉄・亜鉛錯体含有層状化合物触媒を用いたベンゼン酸化 反応, 第 123 回触媒討論会, 2019 年 3 月 21 日, 大阪市立大学

山口修平・宮本晃平・三宅祐輝・瀧口慶子・八尋秀典, 鉄錯体内包ゼオライト触媒を用いた環状炭化水素類の部分酸化反応, 平成 30 年度高難度選択酸化反応研究会シンポジウム (依頼講演),2019年1月25日,東京工業大学

十川誠・<u>山口修平</u>・八尋秀典, 種々の銅錯体を内包したゼオライト触媒を用いたベンゼン類の酸化反応, 2018 年日本化学会中国四国支部大会, 2018 年 11 月 18 日, 愛媛大学

山下祐輝・<u>山口修平</u>・八尋秀典, 鉄-ターピリジン錯体および亜鉛-ビピリジン錯体を固定化した触媒を用いたベンゼン酸化反応, 2018 年日本化学会中国四国支部大会, 2018 年 11 月 17 日, 愛媛大学

山口修平・鈴木彰規・田邊滉一・八尋秀典, 銅錯体内包ゼオライト触媒を用いた酸化反応 に銅イオン交換量が与える影響, 第 51 回酸化反応討論会, 2018 年 11 月 1 日, 九州大学西新 プラザ

山口修平・宮本晃平・八尋秀典, 鉄 - ターピリジン錯体含有イオン交換樹脂触媒を用いたベンゼン酸化反応,第 122 回触媒討論会,2018 年 9 月 26 日,北海道教育大学

Syuhei Yamaguchi, Makoto Togawa, Syuya Kajimoto, Koichi Tanabe, Hidenori Yahiro, Catalytic Activity of Cu(II)-Terpy Complexes Encapsulated in Cation-exchanged Zeolites for Oxidation of Thioanisole with Hydrogen Peroxide, International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC) 2018, 2018 年 8 月 8 日,パシフィコ横浜

Syuhei Yamaguchi, Akinori Suzuki, Makoto Togawa, Hidenori Yahiro, Oxidation of Thioanisole with Hydrogen Peroxide over Copper(II)-Terpy Complexes Encapsulated in Zeolite, the 43rd International Conference on Coordination Chemistry (ICCC2018), 2018 年 8 月 1 日,仙台国際センター

Syuhei Yamaguchi, Akinori Suzuki, Makoto Togawa, Hidenori Yahiro, Oxidation of Thioanisole with Hydrogen Peroxide over Copper(II)-Terpy Complexes Encapsulated into Supercages of Zeolite, International Symposium on Advancement and Prospect of Catalysis Science & Technology (依頼講演), 2018年7月26日,シドニー大学(オーストラリア)

山下祐輝・伊原大二朗・井場堅斗・<u>山口修平</u>・八尋秀典,種々の遷移金属錯体をモンモリロナイトに固定化した触媒の調製とキャラクタリゼーション,第 121 回触媒討論会,2018年3月23日,東京大学駒場キャンパス

<u>山口修平</u>・十川誠・鈴木彰規・八尋秀典, ゼオライト細孔内で安定化した銅 - 活性酸素種の有機基質に対する反応活性, 第 50 回酸化反応討論会, 2017 年 11 月 2 日, 神奈川大学 <u>山口修平</u>・伊原大二朗・八尋秀典, 鉄錯体をモンモリロナイトに固定化した触媒を用いた

ベンゼンの酸化反応、錯体化学会第 67 回討論会、2017 年 9 月 18 日、北海道大学 伊原大二郎・山口修平・八尋季曲、鉄錘休用定化モンモリロナイト触棋を用いた環状岩化

伊原大二朗・山口修平・八尋秀典, 鉄錯体固定化モンモリロナイト触媒を用いた環状炭化 水素類の酸化反応, 第 120 回触媒討論会, 2017 年 9 月 14 日, 愛媛大学

山下祐輝・井場堅斗・<u>山口修平</u>・八尋秀典, 銅錯体固定化モンモリロナイト触媒を用いた チオアニソールの酸化反応, 第 120 回触媒討論会, 2017 年 9 月 13 日, 愛媛大学

十川誠・<u>山口修平</u>・八尋秀典, 銅錯体内包ゼオライト触媒を用いたベンゼン類の酸化反応, 第 120 回触媒討論会, 2017 年 9 月 13 日, 愛媛大学

Syuhei Yamaguchi, Akinori Suzuki, Makoto Togawa, Hidenori Yahiro, Catalytic Activity for Oxidation of Thioanisole over Copper(II)-Terpy Complexes Encapsulated into Supercages of Zeolite, EUROPACAT 2017, 2017 年 8 月 29 日, フィレンツェ

Syuhei Yamaguchi, Yuki Miyake, Hidenori Yahiro, Oxidation of Benzene with Hydrogen Peroxide over Iron-Bipyridine Complexes Encapsulated in Metal Cation-Exchanged Zeolite, 16th Korea-Japan Symposium on Catalysis, 2017 年 5 月 17 日,北海道立道民活動センター

山口修平・楮本周也・十川誠・八尋秀典, 銅錯体内包カチオン交換ゼオライト触媒を用いたチオアニソールの選択酸化反応, 第 119 回触媒討論会, 2017 年 3 月 21 日, 首都大学東京南大沢キャンパス

伊原大二朗・<u>山口修平</u>・八尋秀典,種々の鉄錯体をモンモリロナイトに固定化した触媒を用いたベンゼンの部分酸化反応,第 119 回触媒討論会,2017 年 3 月 21 日,首都大学東京南大沢キャンパス

Syuhei Yamaguchi, Akinori Suzuki, Hidenori Yahiro, Catalytic Activity of Copper(II)-Terpy Complexes Encapsulated into Supercages of Zeolite for Oxidation of Thioanisole with Hydrogen Peroxide, 16th International Congress on Catalysis, 2016 年 7 月 5 日, 中国国際コンベンションセンター(北京)

[図書](計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

[その他]

ホームページ等

愛媛大学大学院理工学研究科物質生命工学専攻応用化学コース無機材料化学研究室 http://www.ach.ehime-u.ac.jp/solid/

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。