

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 3 日現在

機関番号：12601

研究種目：新学術領域研究（研究領域提案型）

研究期間：2015～2019

課題番号：15H05797

研究課題名（和文）高難度選択酸化反応のための高機能分子触媒の開発

研究課題名（英文）Development of High Performance Molecular Catalysts for Extremely Difficult Selective Oxidation Reactions

研究代表者

水野 哲孝（Mizuno, Noritaka）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授

研究者番号：50181904

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 33,510,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、金属酸化物クラスターの一種であるポリオキソメタレートおよび金属ナノ粒子を基盤とした高機能固体触媒を精密設計し、それらを用いて（1）酸素を酸化剤としたアルコールのアミド化反応、アミンの酸素化反応、（2）アクセプターレス脱水素芳香環形成反応を利用したフェノール合成、アールアミン合成などの高難度反応の開発に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、ナノ構造触媒ならびに固体表面の精密設計・機能集積化によって初めて実現した固体触媒ならではの反応をいくつか開発した。これまでの固体触媒研究は、単に均一系触媒を固定化したものを既存の反応に適用するだけの研究が数多くを占めていた。一方、本研究では、均一系触媒を用いてもこれまでに実現されていなかった新反応開発のための固体触媒ならではの活性点構造の創出や機能の集積化を独自の視点・手法で行ったという点で新しい固体触媒設計概念や反応開発手法の学理を提供するものになると考えられる。さらに、環境調和型の含窒素化合物の新合成・新変換手法を開発したため、工業的観点からのインパクトも大である。

研究成果の概要（英文）：In this study, we have precisely designed high-performance heterogeneous catalysts based on polyoxometalates and metal nanoparticles, and have successfully developed extremely difficult selective oxidation reactions such as (1) oxidative amidation of alcohols and oxygenation of amines using O₂ as the oxidant, and (2) phenol synthesis and arylamine synthesis using acceptorless dehydrogenative aromatization.

研究分野：触媒化学

キーワード：ポリオキソメタレート 分子触媒 固体触媒 酸化反応 新反応開発

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

実験室レベルの有機合成から工業的な物質合成にいたるまで様々な反応が用いられているが、資源利用効率、エネルギー効率、グリーン度等の観点からみるとまだまだ改善の余地が残されている。例えば、種々の有機基質の含酸素有機化合物への酸化反応は、いまだにクロム酸や過マンガン酸等の量論重金属酸化剤が用いられている場合がある。また、医農薬品、ファインケミカルズ合成に欠かすことのできないクロスカップリング反応では、ハロゲン化アリール、ハロゲン化アルキル等が用いられる、トランスメタル化を利用するため、量論量以上の無機塩が必ず副生することになる。酸化反応では、空気(分子状酸素)を用いた反応系が理想であるが、アルカン(メタン)、アルケン(プロピレン)、ベンゼン等の高効率・高選択的な酸化反応プロセスはいまだに実現されていない。また、C-HやX-H(Xはヘテロ原子)結合の直接活性化による脱水素(酸化)クロスカップリングは、ハロゲンフリーかつ無機塩が副生しない、生成物が水もしくは水素のみ、という点で非常に魅力的な合成ツールとなり得る。

このような夢の酸化反応は、従来通りの触媒調製(例えば、担持触媒)では、実現することができない。すなわち、ターゲットとする反応に合わせて原子・分子レベルで精密設計された活性点構造および周辺構造を有する高機能触媒の開発が必要不可欠となる。また、ただ単に実験室レベルでの反応(基礎研究)に留めず実用化も念頭におけば、活性点構造の制御のみならず、触媒には高い耐久性も必然的に要求される。

2. 研究の目的

上述した背景のもと、当初計画では、代表者(水野)および分担者(山口)がこれまでに培ってきた酸化物クラスター(ポリオキシメタレート)合成技術を基盤として、(1)分子状酸素や過酸化水素を酸化剤としたアルカン、アルケン等の酸素添加反応および(2)X-H結合直接活性化による脱水素クロスカップリング反応をターゲットとして、これら反応に合わせた活性点構造・周辺構造を有し、かつ高い耐久性を有する真に力量のある固体触媒(分子性固体触媒)を設計し、これまでにない高効率かつ新しい選択酸化反応の開発を行うことを目的としていた。研究開始後の領域内での密なディスカッションや共同研究を通して、(3)酸化剤を用いないアクセプターレス脱水素反応・脱水素芳香環形成反応や(4)水を酸素源とする酸素添加反応もターゲット反応として新たに加えた。複数の機能を集積化した固体触媒を設計し、(5)タンデム酸化反応の開発も新たな目標とした。(3)(4)(5)の反応は高難度であり、種々の検討を行い、酸化物クラスターをベースとした触媒開発だけでは実現することが困難であることがわかった。そこで、新たに設定した目標を実現するため、また、触媒設計の自由度や拡張性を上げるために、酸化物クラスター以外にも、結晶性ナノ酸化物、ナノ水酸化物、合金を含む金属ナノ粒子も触媒材料として取り扱うことにした。

3. 研究の方法

上記の目的反応に合わせて下記のような戦略で触媒設計を行った。

(1)に関して、種々の有機基質の1電子酸化(SET酸化)にナノサイズマンガン酸化物が有効であることを見出し、反応には顕著な構造-活性相関がみられることも明らかになっている。本研究ではナノサイズマンガン酸化物や複酸化物を合成する有機溶媒中での還元結晶化法の開発を行った。これらの触媒を用いて、アルカンやアルキルアレーンの酸素酸化反応に対して組成・構造-活性相関を詳細に検討した。

(2)に関して、異なる求核種同士の酸化クロスカップリングを、SET酸化シラジカル-ラジカルカップリングとする、一方の求核種を二電子酸化し求電子種-求核種カップリングとするという2種類の戦略で試みた。

(3)(4)(5)を実現する鍵は脱水素反応であり、本研究では、パラジウム、金やそれらの合金ナノ粒子触媒がいくつかのアクセプターレス脱水素反応に対する優れた触媒となることを見出した。これら金属ナノ粒子の特性を利用し、領域内共同研究により、脱水素芳香環形成反応開発に取り組んだ。

上記以外にも、領域内共同で、Cu/ラジカル触媒反応系を用いた酸化反応開発に取り組んだ。

4. 研究成果

本研究では、いくつかの高効率反応や新反応の開発に成功した。以下に代表的な研究成果(領域内共同研究を中心に)をまとめる。

(1)担持金ナノ粒子触媒の特異的脱水素能の発見： β -ヘテロ原子置換 α,β -不飽和ケトン、ファインケミカル、医・農薬合成における非常に重要な中間体である。種々の β -ヘテロ原子置換 α,β -不飽和ケトン合成法のうち、対応する飽和ケトンからの α,β -脱水素反応は最もシンプルで有望な方法であり、環境調和型触媒反応系の開発が求められている。本研究では、担持金ナノ粒子触媒が、分子状酸素を酸化剤とした β -ヘテロ原子置換飽和ケトンの α,β -脱水素反応に対して高い活性を示すことを見出した。特に、トンネル状マンガン酸化物OMS-2に担持した金ナノ粒子触媒(Au/OMS-2)が効果的であった(図1)。Au/OMS-2は不均一系触媒として働き、活性の低下なく数回の再使用が可能であった。現在、領域内共同研究により、計算化学的アプローチによるメカニズム解明に関する研究を行っている。メカニズム解明により、新たな反応開発やより高機能な触媒設計指針が得られると期待している。

(2) 担持パラジウム系ナノ粒子触媒による脱水素芳香環形成反応：2011年にStahlらは、均一系パラジウム触媒による酸素を酸化剤としたシクロヘキサノンからフェノールへの脱水素酸化反応を報告した。これを皮切りに、主に均一系パラジウム、銅、イリジウム触媒を用いた脱水素芳香環形成反応が報告されてきた。これらの反応には適切な水素アクセプターが必要である。

一方、本研究では領域内共同で、担持パラジウム系ナノ粒子触媒（固体触媒）を用いた様々な脱水素芳香環形成反応の開発してきた。例えば、シクロヘキサノールの脱水素反応によるフェノール合成（「*Chem. Commun.*」誌のカバー）、シクロヘキサノンオキシムからのアニリン合成（「*J. Am. Chem. Soc.*」誌のカバー）、アンモニアの形式的アリール化による対称ジアリールアミン合成、および非対称ジアリールアミン合成などである（図2）。これらの反応は、アクセプターレスで効率よく進行するため、副生成物は水素と縮合の際に生成する水のみであり、グリーン度が極めて高い。また、固体触媒であるため触媒の分離・回収が容易であり、触媒は活性や選択性を維持したまま繰り返し使用可能であった。また、固体触媒特有の吸着現象を利用したアンモニアの形式的アリール化によるアニリンの選択合成系の開発にも成功している。

(3) Cu/N-オキシル触媒による酸化反応：イミドは、多くの医薬品、天然物、および工業製品などに含まれる重要な化合物である。イミドの最も一般的な合成法は、アミドとカルボン酸塩化物との塩基存在下での縮合反応であるが、この手法には縮合反応によって有害な塩化水素が副生する、カルボン酸塩化物合成の際に用いる試薬や副生成物が有害である、などの問題点がある。そのため、有用かつ環境に優しい合成法の確立が切望されている。

代替反応開発にあたって、図3のような3つのステップからなる逐次反応経路を想定した。当初我々は固体触媒を中心に検討をおこなっていたが、全くうまくいかなかった。そこで、領域内共同研究としてCu/N-オキシル触媒の検討を開始した。Cu源にCuCl、N-オキシルにnor-AZADO、TMEDAを配位子として用いると、ベンジルアルコールと2-ピロリドンから対応するイミドが、室温下、酸素（常圧の空気）を酸化剤として、わずか5分で定量的に得られることが明らかになった。これまでに、Cu/N-オキシル触媒系ではTMEDAを配位子として用いられることはなかったが、TMEDAの使用が本反応を効率よく進行させるための鍵であることが明らかとなった。本CuCl/TMEDA/nor-AZADO触媒を用いると、種々のアルコールとアミドから対応するイミド

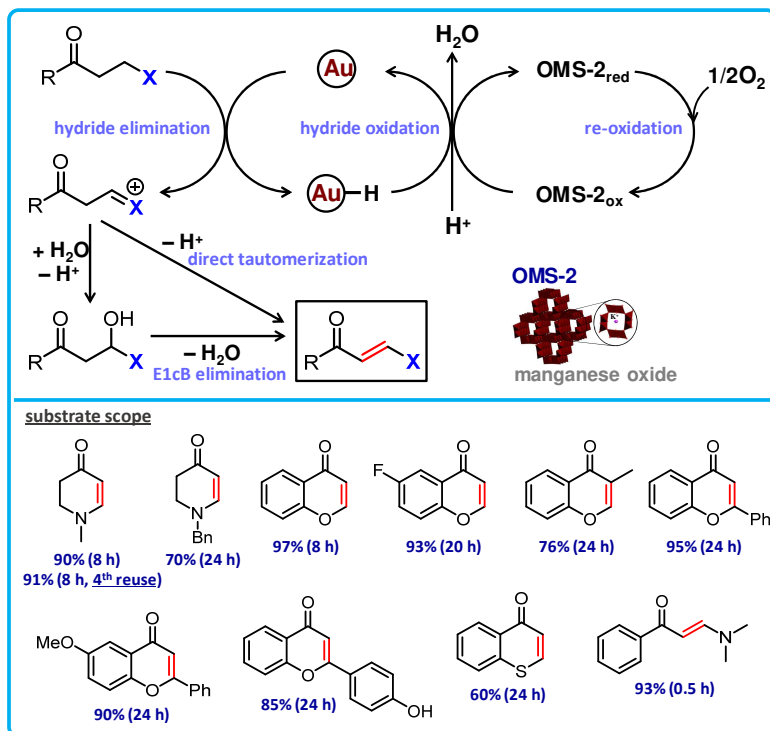


図1 Au/OMS-2触媒による飽和ケトンからの α,β -脱水素反応

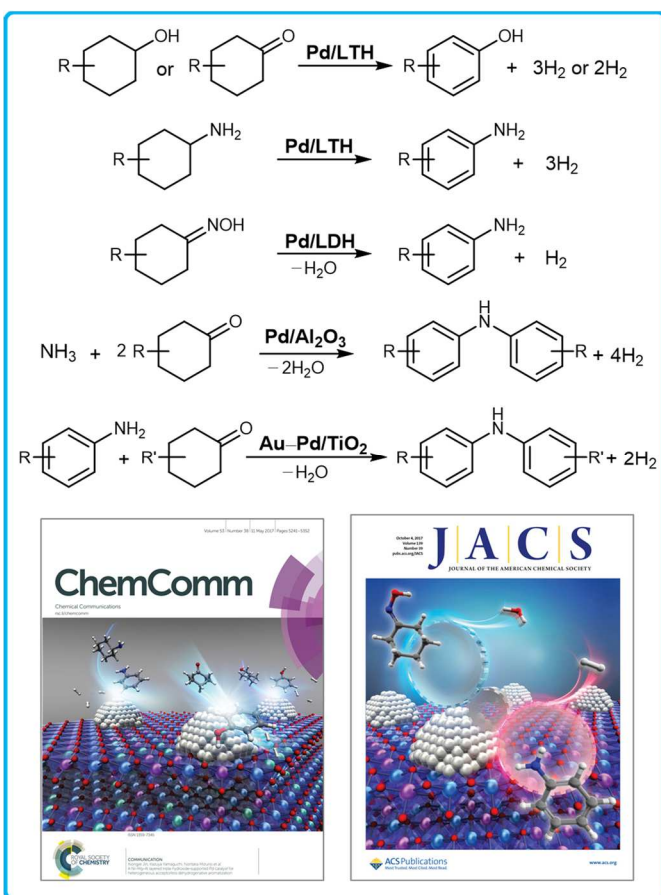


図2 Pdナノ粒子系触媒による脱水素芳香環形成反応

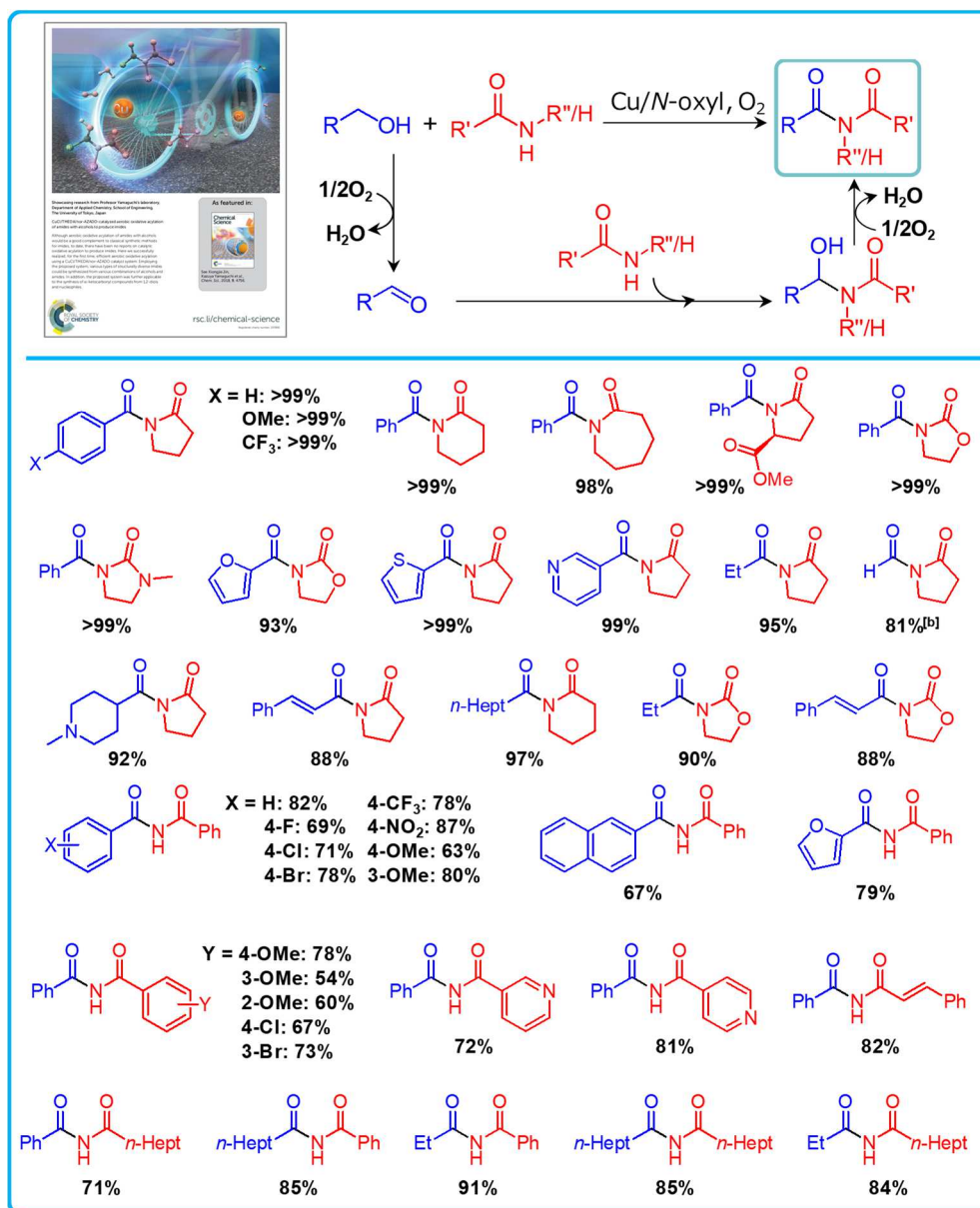


図3 Cu/N-オキシル触媒によるイミド合成

(Evans イミドを含む 50 種類以上のイミド) を高収率・高選択的に合成することができた (図 3)。さらに、本反応系を用いると、1,2-ジオールと様々な求核剤 (アミド、アミン、アルコール) より、対応する α -ケトイミド、 α -ケトアミド、 α -ケトエステルを効率よく合成可能であった。この成果は「Chem. Sci.」誌に掲載され、カバーとしてハイライトされた。

さらに、Cu/N-オキシル触媒系のさらなる応用展開としてアミンの位置選択的酸素化反応にも成功している (図 4)。

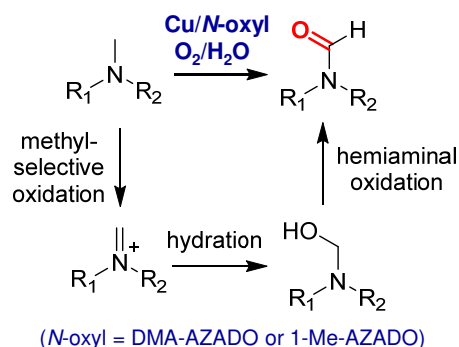


図4 Cu/N-オキシル触媒によるメチル基選択的アミン酸化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計26件（うち査読付論文 26件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Yatabe Takafumi, Jin Xiongjie, Mizuno Noritaka, Yamaguchi Kazuya	4. 巻 8
2. 論文標題 Unusual Olefinic C-H Functionalization of Simple Chalcones toward Aurones Enabled by the Rational Design of a Function-Integrated Heterogeneous Catalyst	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 4969-4978
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.8b00727	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 Kataoka Kengo, Wachi Keiju, Jin Xiongjie, Suzuki Kosuke, Sasano Yusuke, Iwabuchi Yoshiharu, Hasegawa Jun-ya, Mizuno Noritaka, Yamaguchi Kazuya	4. 巻 9
2. 論文標題 CuCl/TMEDA/nor-AZADO-catalyzed aerobic oxidative acylation of amides with alcohols to produce imides	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 4756-4768
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8SC01410H	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 Yatabe Takafumi, Mizuno Noritaka, Yamaguchi Kazuya	4. 巻 8
2. 論文標題 Transition-Metal-Free Catalytic Formal Hydroacylation of Terminal Alkynes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 11564-11569
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.8b02832	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 Oyama Takashi, Yatabe Takafumi, Jin Xiongjie, Mizuno Noritaka, Yamaguchi Kazuya	4. 巻 48
2. 論文標題 Heterogeneously Palladium-catalyzed Acceptorless Dehydrogenative Aromatization of Cyclic Amines	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 517-520
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.190080	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 S. Nakai, T. Uematsu, Y. Ogasawara, K. Suzuki, K. Yamaguchi, N. Mizuno	4. 巻 10
2. 論文標題 Aerobic Oxygenation of Alkylarenes over Ultrafine Transition-Metal-Containing Manganese-Based Oxides	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ChemCatChem	6. 最初と最後の頁 1096-1106
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cctc.201701587	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 X. Jin, Y. Koizumi, K. Yamaguchi, K. Nozaki, N. Mizuno	4. 巻 139
2. 論文標題 Selective Synthesis of Primary Anilines from Cyclohexanone Oximes by the Concerted Catalysis of a Mg-Al Layered Double Hydroxide Supported Pd Catalyst	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Am. Chem. Soc.	6. 最初と最後の頁 13821-13829
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.7b07347	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 Y. Koizumi, K. Taniguchi, X. Jin, K. Yamaguchi, K. Nozaki, N. Mizuno	4. 巻 53
2. 論文標題 Formal arylation of NH ₃ to produce diphenylamines over supported Pd catalysts	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chem. Commun	6. 最初と最後の頁 10827-10830
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CC06737B	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 T. Uematsu, Y. Ogasawara, K. Suzuki, K. Yamaguchi, N. Mizuno	4. 巻 7
2. 論文標題 Platinum-supporting hollandite-type vanadium-chromium mixed oxides as efficient heterogeneous catalysts for deoxygenation of sulfoxides under atmospheric H ₂ pressure	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Catal. Sci. Technol.	6. 最初と最後の頁 1912-1920
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CY00547D	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 Jin, X.; Taniguchi, K.; Yamaguchi, K.; Nozaki, K.; Mizuno, N.	4. 巻 53
2. 論文標題 A Ni-Mg-Al layered triple hydroxide-supported Pd catalyst for heterogeneous acceptorless dehydrogenative aromatization	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chem. Commun.	6. 最初と最後の頁 5267-5270
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1039/C7CC01182B	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 Yoshimura, Y.; Ogasawara, Y.; Suzuki, K.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.	4. 巻 7
2. 論文標題 "Release and catch" catalysis by tungstate species for the oxidative cleavage of olefins	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Catal. Sci. Technol.	6. 最初と最後の頁 1662-1670
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1039/C7CY00062F	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 Li, C.; Suzuki, K.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.	4. 巻 41
2. 論文標題 Phosphovanadomolybdic acid catalyzed direct C-H trifluoromethylation of (hetero)arenes using NaSO ₂ CF ₃ as the CF ₃ source and O ₂ as the terminal oxidant	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 New J. Chem.	6. 最初と最後の頁 1417-1420
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1039/C6NJ03654F	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 Taniguchi, K.; Jin, X.; Yamaguchi, K.; Nozaki, K.; Mizuno, N.	4. 巻 8
2. 論文標題 Versatile routes for synthesis of diarylamines through acceptorless dehydrogenative aromatization catalysis over supported gold-palladium bimetallic nanoparticles	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chem. Sci.	6. 最初と最後の頁 2131-2142
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1039/C6SC04455G	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 Yoshii, D.; Jin, X.; Yatabe, T.; Hasegawa, J.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.	4. 巻 52
2. 論文標題 Gold nanoparticles on OMS-2 for heterogeneously catalyzed aerobic oxidative , - dehydrogenation of -heteroatom-substituted ketones	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Commun.	6. 最初と最後の頁 14314-14317
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1039/C6CC07846J	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 Jin, X.; Taniguchi, K.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.	4. 巻 7
2. 論文標題 Au-Pd alloy nanoparticles supported on layered double hydroxide for heterogeneously catalyzed aerobic oxidative dehydrogenation of cyclohexanols and cyclohexanones to phenols	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Sci.	6. 最初と最後の頁 5371-5383
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1039/C6SC00874G	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 Jin, X.; Kataoka, K.; Yatabe, T.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.	4. 巻 55
2. 論文標題 Supported Gold Nanoparticles for Efficient -Oxygenation of Secondary and Tertiary Amines into Amides	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 7212-7217
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1002/anie.201602695	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 Xu, N.; Jin, X.; Suzuki, K.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.	4. 巻 40
2. 論文標題 Phosphovanadomolybdic acids catalyzed desulfurization-oxygenation of secondary and tertiary thioamides into amides using molecular oxygen as the terminal oxidant	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 New. J. Chem.	6. 最初と最後の頁 4865-4869
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1039/C5NJ03579A	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 Miyamoto, Y.; Kuroda, Y.; Uematsu, T.; Oshikawa, H.; Shibata, N.; Ikuhara, Y.; Suzuki, K.; Hibino, M.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.	4. 巻 2
2. 論文標題 Rational Low-Temperature Synthesis of Ultrasmall Nanocrystalline Manganese Binary Oxide Catalysts under Controlled Metal Cation Hydration in Organic Media	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ChemNanoMat	6. 最初と最後の頁 297-306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1002/cnma.201600114	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 Y. Miyamoto, Y. Kuroda, T. Uematsu, H. Oshikawa, N. Shibata, Y. Ikuhara, K. Suzuki, M. Hibino, K. Yamaguchi, N. Mizuno	4. 巻 2
2. 論文標題 Rational Low-Temperature Synthesis of Ultrasmall Nanocrystalline Manganese Binary Oxide Catalysts under Controlled Metal Cation Hydration in Organic Media	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ChemNanoMat	6. 最初と最後の頁 297-306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cnma.201600114	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 Y. Miyamoto, Y. Kuroda, T. Uematsu, H. Oshikawa, N. Shibata, Y. Ikuhara, K. Suzuki, M. Hibino, K. Yamaguchi, N. Mizuno	4. 巻 5
2. 論文標題 Synthesis of ultrasmall Li-Mn spinel oxides exhibiting unusual ion exchange, electrochemical, and catalytic properties	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Sci. Rep.	6. 最初と最後の頁 15011
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/srep15011	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 T. Yatabe, X. Jin, K. Yamaguchi, N. Mizuno	4. 巻 54
2. 論文標題 Gold Nanoparticles Supported on a Layered Double Hydroxide as Efficient Catalysts for the One-Pot Synthesis of Flavones	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 13302-13306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201507134	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 K. Taniguchi, X. Jin, K. Yamaguchi, N. Mizuno	4. 巻 51
2. 論文標題 Supported gold-palladium alloy nanoparticles catalyzed tandem oxidation routes to N-substituted anilines from non-aromatic compounds	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Chem. Commun.	6. 最初と最後の頁 14969-14972
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C5CC06514C	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 D. Yoshii, X. Jin, N. Mizuno, K. Yamaguchi	4. 巻 9
2. 論文標題 Selective Dehydrogenative Mono- or Diborylation of Styrenes by Supported Copper Catalysts	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Catal.	6. 最初と最後の頁 3011-3016
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.9b00761	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 Y. Koizumi, X. Jin, T. Yatabe, R. Miyazaki, J. Hasegawa, K. Nozaki, N. Mizuno, K. Yamaguchi	4. 巻 58
2. 論文標題 Selective Synthesis of Primary Anilines from NH ₃ and Cyclohexanones by Utilizing Preferential Adsorption of Styrene on the Pd Nanoparticle Surface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 10893-10897
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI: 10.1002/anie.201903841	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 S. Nakai, T. Yatabe, K. Suzuki, Y. Sasano, Y. Iwabuchi, J. Hasegawa, N. Mizuno, K. Yamaguchi	4. 巻 58
2. 論文標題 Methyl Selective -Oxygenation of Tertiary N-Methylamines to Formamides by Employing Copper/Moderately Hindered Nitroxyl Radical (DMN-AZADO or 1-Me-AZADO)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 16651-16659
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201909005	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 S. Takayama, T. Yatabe, Y. Koizumi, X. Jin, K. Nozaki, N. Mizuno, K. Yamaguchi	4. 巻 11
2. 論文標題 Synthesis of unsymmetrically substituted triarylamines via acceptorless dehydrogenative aromatization using a Pd/C and p-toluenesulfonic acid hybrid relay catalyst	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chem. Sci.	6. 最初と最後の頁 4074-4084
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9SC06442G	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 D. Takei, T. Yatabe, X. Jin, T. Yabe, N. Mizuno, K. Yamaguchi	4. 巻 10
2. 論文標題 CeO ₂ -Supported Pd(II)-on-Au Nanoparticle Catalyst for Aerobic Selective , -Desaturation of Carbonyl Compounds Applicable to Cyclohexanones	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Catal.	6. 最初と最後の頁 5057-5063
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.0c00277	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61件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Kazuya Yamaguchi
2. 発表標題 Synthesis of phenols and anilines via heterogeneously Pd-catalyzed acceptorless dehydrogenative aromatization of six-membered carbocyclic compounds
3. 学会等名 2018 International Symposium on Advancement and Prospect of Catalysis Science & Technology (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazuya Yamaguchi
2. 発表標題 Synthesis of phenols and anilines through acceptorless dehydrogenative aromatization catalysis over supported Pd nanoparticles
3. 学会等名 The 8th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazuya Yamaguchi
2. 発表標題 Development of Novel Transformations by Utilizing Gold-Catalyzed Heterogeneous Aerobic Dehydrogenation
3. 学会等名 The International Symposium on Catalysis and Fine Chemicals 2018 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazuya Yamaguchi
2. 発表標題 Development of Novel Transformations by Utilizing Gold-Catalyzed Heterogeneous Aerobic Dehydrogenation
3. 学会等名 RSC Journal symposium: Frontiers of catalysis and photocatalysis for energy chemistry (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazuya Yamaguchi
2. 発表標題 Dehydrogenative Aromatization Strategy for Synthesis of Phenols, Anilines, and Diarylamines
3. 学会等名 16th Japan-Taiwan Joint Symposium on Catalysis-New Horizon of Catalytic Science and Technology- (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazuya Yamaguchi
2. 発表標題 Heterogeneously Catalyzed New Green Amide Synthesis
3. 学会等名 The Tenth International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC-10) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kento Taniguchi, Xiongjie Jin, Kazuya Yamaguchi, Noritaka Mizuno
2. 発表標題 Au-Pd Bimetallic Nanoparticles-Catalyzed Dehydrogenative Aromatization Reactions for Synthesis of Arylamines
3. 学会等名 Interdisciplinary Symposium for Up-and-coming Material Scientists 2017 (ISUMS 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Chifeng Li, Kosuke Suzuki, Kazuya Yamaguchi, Noritaka Mizuno
2. 発表標題 Aerobic Oxidative Trifluoromethylation of Arenes Catalyzed by Phosphovanadomolybdic Acids
3. 学会等名 16th Korea-Japan Symposium on Catalysis & 3rd International Symposium on Institute for Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 5.Takafumi Yatabe, Xiongjie Jin, Kazuya Yamaguchi, Noritaka Mizuno
2. 発表標題 One-pot Green Synthesis of Flavones Using Gold Nanoparticles Supported on Layered Double Hydroxides
3. 学会等名 The 16th Korea-Japan Symposium on Catalysis (KJSC16) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 金雄傑
2. 発表標題 Layered Double Hydroxide Supported Palladium Nanoparticles for Efficient Heterogeneous Acceptorless Dehydrogenative Aromatization Reactions
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金雄傑, 山口和也, 野崎京子, 水野哲孝
2. 発表標題 層状複水酸化物担持パラジウム触媒によるアクセプターレス脱水素芳香環形成反応
3. 学会等名 第121回触媒討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Chifeng Li, Kosuke Suzuki, Kazuya Yamaguchi, Noritaka Mizuno
2. 発表標題 Visible-Light-Induced Aerobic Oxidation of Sulfides by a Phosphovanadotungstate
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takafumi Yatabe, Xiongjie Jin, Kazuya Yamaguchi, Noritaka Mizuno
2. 発表標題 nprecedented Catalytic Aurone Synthesis Enabled by Design of a Pd-on-Au Bimetallic Nanoparticle Catalyst Supported on CeO ₂
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉井大地, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持銅触媒によるスチレン誘導体の脱水素ポリル化反応
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小泉悠, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持金-パラジウム合金ナノ粒子触媒によるアンモニアの選択的モノアリアル化反応
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大山貴史, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持パラジウムナノ粒子触媒によるピペリジン類のアクセプターレス脱水素反応
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 竹井 大輔, 谷田部 孝文, 金 雄傑, 山口 和也, 水野 哲孝
2. 発表標題 担持Au-Pdナノ粒子触媒によるアルデヒドおよびケトンの酸化的脱水素反応
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 和知慶樹, 片岡憲吾, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 Cu/N-oxyI触媒酸化系によるピシナルジオールからの α -ケトカルボニル化合物合成
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小泉悠, 谷口健人, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持パラジウムナノ粒子触媒によるアンモニアの形式的アリール化反応
3. 学会等名 第50回酸化反応討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 中井諭, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 異種遷移金属を導入したナノマンガ氧化物触媒によるアルキルアレーンの酸素酸化
3. 学会等名 第50回酸化反応討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 片岡憲吾, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 銅触媒によるアルコールを用いたアミドの酸化的アシル化反応
3. 学会等名 第50回酸化反応討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 CeO ₂ 担持Pd-on-Auナノ粒子触媒による選択性逆転を利用したオーロン合成
3. 学会等名 第50回酸化反応討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小泉悠, 谷口健人, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持パラジウムナノ粒子触媒によるアンモニアの形式的アリール化反応
3. 学会等名 第7回CSJ化学フェスタ2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 中井諭, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 異種遷移金属導入ナノマンガ氧化物触媒によるアルキルアレーンの酸素酸化
3. 学会等名 第7回CSJ化学フェスタ2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 片岡憲吾, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 銅触媒を用いたアルコールによるアミドの酸化的アシル化反応
3. 学会等名 第7回CSJ化学フェスタ2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 李赤峰, 鈴木康介, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 Photocatalytic Aerobic Oxidation of Sulfides by a Visible-Light-Responsive Phosphovanadotungstate
3. 学会等名 第7回CSJ化学フェスタ2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 CeO ₂ 担持Au-Pd ナノ粒子触媒による選択性逆転を利用したオーロン合成
3. 学会等名 第120回触媒討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 Mg-Al LDH担持パラジウム触媒によるシクロヘキサノンオキシムのアニリンへのアクセプターレス脱水素酸化反応
3. 学会等名 第120回触媒討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Yatabe, T.; Jin, X.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.
2. 発表標題 ENVIRONMENTALLY-FRIENDLY HETEROGENEOUS ONE-POT SYNTHESIS OF FLAVONES THROUGH THE CONCERTED CATALYSIS OF GOLD NANOPARTICLES SUPPORTED ON LAYERED DOUBLE HYDROXIDES
3. 学会等名 6th Asia-Oceania Conference on Sustainable and Green Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Taniguchi, K.; Jin, X.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.
2. 発表標題 Supported Au-Pd alloy nanoparticles catalyzed tandem oxidative aromatization for synthesis of N-substituted anilines", Oral Presentation
3. 学会等名 16th International Congress on Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Jin, X.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.
2. 発表標題 Aerobic oxidative dehydrogenation of cyclohexanols to phenols by layered double hydroxide supported Au-Pd alloy nanoparticles", 16th International Congress on Catalysis", Poster Presentation
3. 学会等名 16th International Congress on Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 吉村悠, 小笠原義之, 鈴木康介, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 過酸化水素を用いたオレフィンの酸化開裂反応を指向した担持タングステート触媒の開発
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Li, C.; Suzuki, K.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.
2. 発表標題 Phosphovanadomolybdic Acid Catalyzed Trifluoromethylation of Arenes
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小泉悠, 谷口健人, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持パラジウムナノ粒子触媒によるアンモニアのアリール化反応
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Taniguchi, K.; Jin, X.; Yamaguchi, K.; Mizuno, N.
2. 発表標題 Synthesis of Diarylamines through Supported Gold-Palladium Nanoparticles-Catalyzed Acceptorless Dehydrogenative Aromatization
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 植松翼, 宮本唯未, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 ホランタイト型バナジウム酸化物を用いたスルホキシドの触媒的還元
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 中井諭, 植松翼, 宮本唯未, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 異種遷移金属を導入したナノマンガ氧化物触媒によるアルキルアレーンの酸素酸化
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 片岡憲吾, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 銅触媒によるアルコールを用いたアミドの酸化的アシル化反応
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 吉井大地, 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 OMS-2担持金ナノ粒子触媒による酸素を酸化剤とした α -ヘテロ原子置換飽和ケトンの β -脱水素反応
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 Ni-Mg-Al層状複合水酸化物担持Pd触媒による高効率アクセプターレス脱水素芳香環形成反応
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 李赤峰, 鈴木康介, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 Aerobic Oxidative Trifluoromethylation of Aromatic Compounds Catalyzed by Vanadium-Containing Phosphomolybdic Acids
3. 学会等名 第6回CSJ化学フェスタ2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 吉井大地, 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持金ナノ粒子触媒による酸素を酸化剤とした飽和ケトンの β -不飽和ケトンへの酸化的脱水素反応", ポスター発表
3. 学会等名 第6回CSJ化学フェスタ2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 片岡憲吾, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持金ナノ粒子触媒による酸素を酸化剤としたアミンの α -酸素化反応
3. 学会等名 第6回CSJ化学フェスタ2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 吉村悠, 小笠原義之, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 過酸化水素によるオレフィンの酸化開裂反応を目指した release and catch 触媒システムの開発
3. 学会等名 第6回CSJ化学フェスタ2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持Au-Pd合金ナノ粒子触媒によるシクロヘキサノール及びシクロヘキサノンのフェノールへの脱水素型酸化反応"
3. 学会等名 第49回酸化反応討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 片岡憲吾, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持金ナノ粒子触媒による酸素を酸化剤としたアミンの α -酸素化反応
3. 学会等名 第118回触媒討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 山口和也, 徐寧, 金雄傑, 鈴木康介, 水野哲孝
2. 発表標題 モリブドバナドリン酸を触媒としたチオアミドの脱硫 - 酸化反応
3. 学会等名 第118回触媒討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 宮本唯未, 黒田義之, 植松翼, 押川浩之, 柴田直哉, 幾原雄一, 鈴木康介, 日比野光宏, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 有機溶媒中でのカチオンの水和状態制御に基づくMn系複酸化物ナノ粒子の合成と触媒特性
3. 学会等名 第118回触媒討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 Au/LDH触媒の協奏的触媒作用を利用した環境調和型フラボン類One-Pot合成
3. 学会等名 第5回JACI/GSCシンポジウム
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 宮本唯未, 黒田義之, 植松翼, 押川浩之, 柴田直哉, 幾原雄一, 鈴木康介, 日比野光宏, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 有機溶媒中でのLi ⁺ の水和状態制御に基づく極微Li-Mnスピネルナノ粒子の合成
3. 学会等名 日本化学会第96春季年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 Au-Pd合金ナノ粒子触媒による空気を酸化剤としたシクロヘキサノールのフェノールへの脱水素型酸化反応
3. 学会等名 日本化学会第96春季年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 谷口健人, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持金-パラジウムナノ粒子触媒を用いたタンデム型脱水素芳香環形成反応によるN-置換アニリン合成
3. 学会等名 日本化学会第96春季年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 酸化的脱水素反応を鍵反応とした環境調和型フラボン類One-Pot合成の開発
3. 学会等名 日本化学会第96春季年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 吉井大地, 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持金ナノ粒子触媒による酸素を酸化剤とした飽和ケトンの, -不飽和ケトンへの酸化的脱水素反応
3. 学会等名 日本化学会第96春季年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 片岡憲吾, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持金ナノ粒子触媒による酸素を酸化剤としたアミンの形式的 - 酸素化反応
3. 学会等名 日本化学会第96春季年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 Multiple Relay Catalysisを利用したAu/LDH触媒による液相不均一系フラボン類One-Pot合成
3. 学会等名 第116回触媒討論会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 谷口健人, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 担持金-パラジウム合金触媒を用いたタンデム型脱水素芳香環形成反応
3. 学会等名 第116回触媒討論会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 谷田部孝文, 金雄傑, 山口和也, 水野哲孝
2. 発表標題 金ナノ粒子担持LDH触媒によるMultiple Relay Catalysisを利用した液相不均一系フラボン類One-Pot合成
3. 学会等名 第5回CSJ化学フェスタ2015
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Yamaguchi, K.; Koizumi, Y.; Jin, X.; Mizuno, N.
2. 発表標題 Dehydrogenative Aromatization to Produce Arylamines over Supported Palladium Catalysts
3. 学会等名 17th Korea-Japan Symposium on Catalysis
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yoshii, D.; Jin, X.; Mizuno, N.; Yamaguchi, K.
2. 発表標題 Dehydrogenative Mono- or Diborylation of Styrenes by Supported Copper Catalysts
3. 学会等名 17th Korea-Japan Symposium on Catalysis
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yamaguchi, K.; Yatabe1, T.; Jin, X.; Mizuno, N.
2. 発表標題 GREEN AMIDE PRODUCTION THROUGH CATALYTIC FORMAL OXYGENATION OF AMINES
3. 学会等名 The 8th Asia Pacific Congress on Catalysis
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	山口 和也 (Yamaguchi Kazuya) (50334313)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授 (12601)	