

豊橋技術科学大学長 殿

平成 17年 2月 28日

審査委員長 伊津野 真一



論文審査及び最終試験の結果報告書

このことについて、下記の結果を得ましたので報告いたします。

記

学位申請者	Ahmad Fakhruddin	学籍番号	第 029201 号
申請学位	博士(工学)	専攻名	機能材料工学
論文題目	Novel Transition Metals-Catalyzed Hydrogen Peroxide Oxidation Systems: Highly Efficient Synthesis of Acylnitroso Intermediates and Quinones (遷移金属触媒による新規過酸化水素酸化系: 高効率なアシルニトロソ中間体およびキノン類の合成)		
公開審査会の日	平成 17年 2月 15日		
論文審査の期間	平成17年 1月 26日~平成17年 2月 28日	論文審査の結果	合格
最終試験の日	平成 17年 2月 15日	最終試験の結果	合格

論文内容の要旨

本論文は、遷移金属触媒を用いる有機物質の触媒的過酸化水素酸化反応の開発を目的として行い、ヒドロキサム酸類やヒドロキノン類が極めて高効率的に酸化される触媒系の創製について記述されたもので5章から構成されている。第1章では、ヒドロキサム酸の酸化反応によって得られるアシルニトロソ中間体の高い反応性を利用した有用な生理活性ヘテロ環化合物群やアミノアルコール類の合成等について総説している。第2章では、新規触媒の創成とヒドロキサム酸類の触媒的過酸化水素酸化反応について精査し、Ru(II) (pybox) (pydic)、および Ir(I)系触媒の触媒活性について検討している。すなわち 30%過酸化水素を酸化剤としてヒドロキシアミン類の酸化反応を行い、反応性に富んだニトロソ化合物を系中で合成し、ジエン類とのヘテロ Diels-Alder 反応によって 1,4-アミノアルコール前駆体を合成する工程について示している。第3章では、過酸化水素酸化反応触媒の応用としてアシルニトロソ中間体の生成をアルケン類共存下に行うと相当する N-アルキルヒドロキサム酸が得られることを明らかにし、さらにその新ハロ環化反応への展開について記述した。第4章では、Ru(II) (pybox) (pydic)触媒による触媒的過酸化水素酸化反応をジヒドロキノン類やメトキシベンゼン類に適用すると相当するキノン類が同様に高収率で得られることを明らかにした。第5章では、Ru(II) (pybox) (pydic)や Ir(I)系錯体存在下の触媒的過酸化水素酸化反応系における実験項と構造決定のための全物理データがまとめられている。

審査結果の要旨

本論文は、過酸化水素の高い有効活性酸素含有量を重視し、新規遷移金属触媒の創製によって高効率的でかつ官能基選択的な有機物質の触媒的過酸化水素酸化反応の開発に成功した。具体的には配位子と中心遷移金属の選択について様々な遷移金属と配位子との組み合わせを精査した結果、[Ru(II) (p-cymene)₂Cl₂]₂と 2,6-pyridinedicarboxylate とから合成される錯体 Ru(II) (pybox) (pydic)、および Ir(I)系触媒がヒドロキサム酸類の触媒的酸化反応に優れた触媒活性があることを見だし 1,4-アミノアルコール前駆体を効率的に得る合成経路を開発することができた。同時にアシルニトロソ中間体の生成をアルケン類共存下に行うと相当する N-アルキルヒドロキサム酸が得られ、さらにその新環化反応への展開に成功した。またこれらの触媒をジヒドロキノン類やメトキシベンゼン類に適用すると相当するキノン類が同様に高収率で得られることを見出した。酸化反応は還元反応と同様に最も重要な物質変換方法の一つであり、過酸化水素の利用により酸化後の副生成物は水のみであることや近年の社会的要求ともいえる環境融和型触媒機能の創製と共に提出されたこれらの結果は、重要な意義を持ち、本論文は、博士(工学)の学位論文に相当するものと判断した。

審査委員

伊津野 真一



竹市 力



西山 久雄



岩佐 精二



印

印

(注) 論文審査の結果及び最終試験の結果は「合格」又は「不合格」の評語で記入すること。