

アミド含有配位子の二核銅錯体が触媒する H_2O_2 によるメタン酸化に及ぼすアミドドナーの効果

(同志社大理工) ○赤松 杏香・藤川 恭祐・北岸 宏亮・小寺 政人

Effect of amide donor on methane oxidation with H_2O_2 catalyzed by dicopper complexes with amide-containing ligands

(Department of Molecular Chemistry and Biochemistry, Doshisha University) ○ Kyoka Akamatsu, Kyosuke Fujikawa, Hiroaki Kitagishi, Masahito Koderu

Recently, we reported that a μ -hydroxodicopper(II) complex $[\text{Cu}_2(\mu\text{-OH})(6\text{-hpa})](\text{ClO}_4)_3$ (**1**) efficiently catalyzes methane oxidation with H_2O_2 . In the reaction, **1** may form $[\text{Cu}_2(\text{O}\cdot)(\text{O}_2\cdot)(6\text{-hpa})]^{2+}$ as the active species for methane oxidation. However, the highly reactive active species $\text{Cu}(\text{II})\text{-O}\cdot$ may oxidize the ligand itself to reduce the catalytic activity. In this study, we developed copper complexes with various amide-containing ligands to enhance the durability of the complex. The dicopper complex efficiently catalyzed the alkane oxidation with H_2O_2 and its activity is much higher than the monocopper complex. Here, we report the effect of the amide-containing ligand in the alkane oxidation with H_2O_2 catalyzed by mono- and di-copper complexes.

Keywords : dicopper complex, methane oxidation, amide donor ligand

我々は、6-hpa 配位子の二核銅錯体 $[\text{Cu}_2(\mu\text{-OH})(6\text{-hpa})](\text{ClO}_4)_3$ (**1**)が H_2O_2 を用いたアルカン酸化に高い触媒活性を示すことを見出した。しかし、この反応では、活性種である $\text{Cu}(\text{III})\text{-O}\cdot$ が高原子価状態であるため不安定であった。そこで錯体のアルカン酸化に対する活性をさらに向上させるために新たにアミド含有配位子を開発した。本研究では、アミド含有配位子の単核および多核銅錯体を合成した。アミド型配位子は酸化耐性が高いことに加え、取り込まれた 2 つの銅部位が共同して効果的に H_2O_2 を活性化することが明らかになった。今回は、様々なアミド含有配位子の銅錯体を合成し、アルカン酸化を行ったので、これらの錯体の触媒活性に与えるアミド基の効果について報告する。

