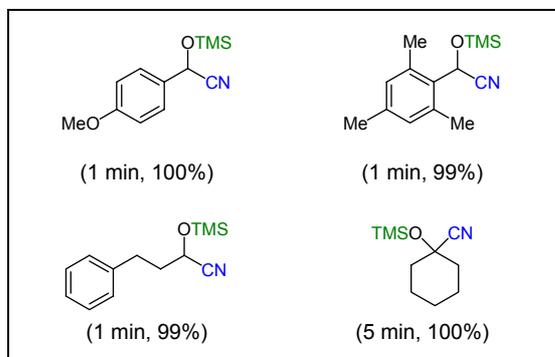
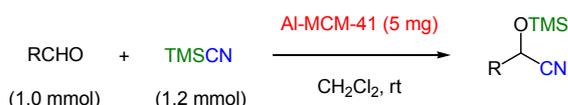
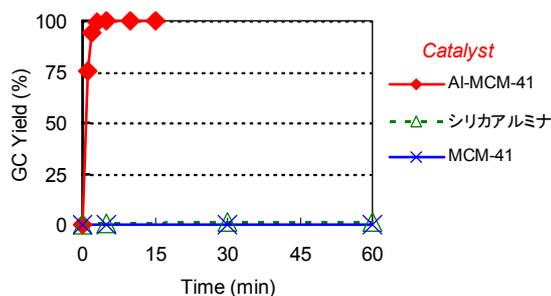
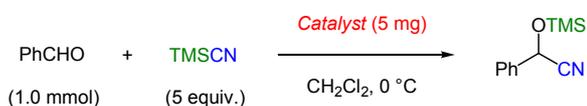


カルボニル化合物のシアノシリル化は、重要な炭素-炭素結合生成反応の一つであり、有機合成において広く利用されています。また、生成物であるシアノヒドリンシリルエーテルは、 α -ヒドロキシカルボン酸や β -アミノアルコールなどへ変換できることから、合成中間体としても非常に有用です。本反応に対して、ルイス酸、ルイス塩基などが均一系で触媒作用を示しますが、触媒の分離・回収が容易な固体触媒や固定化触媒については、活性が低い、あるいは基質適応範囲に制限があるという課題が残されています。私たちは、効率的かつ実用的なシアノシリル化触媒を開発する目的で、均一な大きさ (2-10 nm) のメソ細孔が空間的に規則正しく配列したメソポーラスシリカに注目し、本研究を行いました。

まず初めに、ベンズアルデヒドをモデル基質として選び、代表的なメソポーラスシリカである MCM-41 触媒の存在下、シアニ化トリメチルシリルを用いて反応を試みました。しかしながら、目的とするシアノシリル化は全く進行しませんでした。これに対して、シリカ骨格にアルミニウムを含有するメソポーラスシリカ (Al-MCM-41) を用いて反応を行ったところ、短時間で反応が完結し、対応するシアノヒドリン誘導体が定量的に得られることが分かりました。比較として、規則性細孔を持たないシリカアルミナを用いて反応を行いました。すなわち、シアノシリル化触媒としては、アルミニウムを含有し、かつ規則性細孔を有することが重要であるといえます。



さらに、Al-MCM-41 を触媒として用いて、種々の芳香族アルデヒド、脂肪族アルデヒド、さらにケトンに対して反応を試みた結果、いずれのカルボニル化合物を用いた場合においても極めて短い時間かつ温和な反応条件下で反応が完結し、対応するシアノヒドリンシリルエーテルが非常に高い収率で得られることを見出しました。

以上、本研究ではアルミニウム含有メソポーラスシリカ (Al-MCM-41) が、カルボニル化合物のシアノシリル化の固体触媒として極めて有効であることを明らかにしました。特に、従来の均一系、不均一系触媒を用いるシアノシリル化と比較し、最速であるという優れた特徴を有しています。

本研究は、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) による革新的部材産業創出プログラムに係る「革新的マイクロ反応場利用部材技術開発」プロジェクトの支援のもとに行った。