

2024 年度年次報告書

地球環境と調和しうる物質変換の基盤科学の創成

2024 年度採択研究代表者

村田 慧

理化学研究所 環境資源科学研究センター

理研 ECL 研究ユニットリーダー

C1 資源を活用する新規遷移金属光触媒の創製

研究成果の概要

本研究は、遷移金属錯体を用いて、 CO_2 やメタンをはじめとする C1 化合物を光化学的・電気化学的に活性化するための方法論を開拓し、これを基盤として C2 炭化水素を生成する触媒反応の開発を目的とするものである。触媒活性種としては金属ラジカルを用い、その配列およびスピン状態の制御を通じて、開殻系の遷移金属触媒に関する新たな学理の構築を目指す。

まず本年度は、研究代表者の異動に伴う研究室の立ち上げに取り組んだ。実験に必要な装置および器具の選定・購入・設置を進め、研究環境の整備を行った。2024 年内には、合成実験を実施できる体制が整った。

次に、本研究の手始めとして、 CO_2 およびその二電子還元種である CO を光触媒的に変換する遷移金属錯体の探索を行った。その結果、特定の金属イオンを含むポルフィリン錯体が、可視光照射下で CO_2 還元および CO 二量化の両方に活性を示すことを見いだした。前者では、適切な可視光増感剤および犠牲電子供与剤の共存下で CO_2 の二電子還元が進行し、CO が触媒的に生成することを明らかにした。また後者では、第一に、可視光照射下における錯体の量論的な変換過程を観測し、錯体の光励起によって金属ラジカル種が生成すること、また同種が CO の活性化に寄与することを確認した。第二に、これら反応過程の触媒化について検討し、可視光照射下で CO の二量化が触媒的に進行する反応条件を見いだした。各種対照実験より、同反応の進行には可視光エネルギーおよび錯体が必須であることを確かめ、前述した量論反応の結果をもとに本触媒反応の機構について考察した。以上の検討を通じて、CO を中間還元種とし、 CO_2 を段階的に C2 炭化水素へ変換するための触媒設計指針を明らかにした。