

原子・分子の自在配列と特性・機能
2020 年度採択研究者

2021 年度 年次報告書

近藤 美欧

大阪大学 大学院工学研究科
准教授

金属錯体触媒の精密配列に基づく反応場の自在構築と正と負の触媒効果

§ 1. 研究成果の概要

物質変換反応において、触媒活性点中心の構造のみならず、触媒分子や基質を取り囲む空間は反応の進行に大きな役割を果たしている。本研究では、反応活性点と分子間相互作用サイトを併せ持つ「分子性触媒モジュール」を開発し、得られた分子性触媒モジュールを様々な相互作用により自己集積化させることによって、革新的触媒材料を創製することを目的としている。このような触媒材料中においては、触媒活性点近傍に様々な機能を有した反応場が構築されることになる。このような材料を用いた場合、反応場の構造・性質を緻密に変化させることが、触媒反応そのものに大きな影響を及ぼすことが期待できる。そこで本研究では、このような触媒材料の特性を活用し、金属錯体触媒の配列制御に立脚した触媒反応の自在操作を目標として研究を展開する。

2021年度の研究においては、特に小分子変換反応において重要となる、反応活性点と電荷伝達サイトを併せ持つ構造体を自在に構築するための方法論の確立を目指し、研究を行った。具体的な研究内容として、反応活性点(置換活性サイト)を持つ金属錯体触媒ユニットの配位子部位に酸化二量化によって電荷伝達サイトを構築可能な部位を導入した機能性ユニット、分子性触媒モジュールを開発した。この分子性触媒モジュールにおいては、反応活性点の反応性が維持されている。そして、この分子性触媒モジュールを電解重合させることで、電荷伝達サイトと反応活性点とを有するポリマー型の構造体を構築した。すなわち、反応活性点を有する分子性触媒モジュールをその反応性を阻害しない形でポリマー構造へと配列させ、電荷伝達サイトと触媒活性点を併せ持つ触媒材料が得られた。さらに、この反応性フレームワークの触媒能についても調査を行い、ポリマー構造中への電荷伝達サイトの導入が反応に対して正の触媒効果を与えることを見出した。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Electrochemical Polymerization Provides a Function-Integrated System for Water Oxidation
H. Iwami, M. Okamura, **M. Kondo***, S. Masaoka*
Angew. Chem. Int. Ed., **2021**, *60*, 5965. (Selected as a Hot Paper, Selected as an Inside Back Cover Picture)
- 2) Fabrication of Function-Integrated Water Oxidation Catalysts by Electrochemical Polymerization of Ruthenium Complexes
H. Iwami, **M. Kondo***, S. Masaoka*
ChemElectroChem, **2022**, *9*, 52. (Selected as a Front Cover Picture)
- 3) Electrochemical Polymerization of a Carbazole-Tethered Cobalt Phthalocyanine for Electrocatalytic Water Oxidation
S. Li, H. Iwami, **M. Kondo***, S. Masaoka*
ChemNanoMat, **2022**, *in press*. (Selected as a Front Cover Picture)