

物質探索空間の拡大による未来材料の創製
2022 年度採択研究代表者

2022 年度
年次報告書

山内 幸正

九州大学 大学院理学研究院
助教

アルカリ水光分解を促進する分子性触媒の創製と制御

研究成果の概要

本研究は、水完全分解反応 ($2\text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{H}_2 + \text{O}_2$) の律速段階である酸素発生に有利なアルカリ性水溶液中で優れた水分解特性を示す分子性触媒の創製とその機能制御を目的とし推進している。本年度は、アルカリ水からの光化学的な水素生成反応を駆動する分子性触媒の開発に取り組んだ。特に、優れた電子供与能を持ち中心金属と強固な結合を形成する N-ヘテロ環状カルベン (NHC) を有するコバルト錯体の触媒作用に焦点を当て研究を行った。

まず種々の大環状コバルト NHC 錯体の合成を行った。同定は、 $^1\text{H NMR}$ 、ESI-MS、元素分析などにより行った。次にその触媒機能評価を行った。一般に強アルカリ性条件は水素生成に不利とされるが、コバルト NHC 錯体を水素生成触媒として用いた光反応系において 20 時間にわたり大量の水素ガス生成が観測された。またその pH 依存性も興味深い挙動を示し、強アルカリ pH 条件下での水素生成量は、中性 pH 条件下の約 80 倍に及び、類を見ない触媒特性が示された。次に、配位構造の異なるコバルト NHC 錯体触媒を用い同様の水素ガス定量実験を行ったところ、触媒活性や触媒耐久性は大きく変化した。その触媒特性は、密度汎関数理論 (DFT) を用いた量子化学計算からも議論した。本年度は特に酸化還元特性制御の重要性が見いだされ、これらを基盤として次年度以降の超高活性分子性触媒の創出研究へと展開していく。