

公益財団法人 立松財団 御中
様式 2021A1,A2,B

2024 年 8 月 30 日

所属: 名古屋大学

氏名: JUNG, Jieun

印

2022 年度 助成

研究 経過 ・ 終了 報告書

※ゴシック文字で記入下さい。

研究テーマ	単核オスmium光触媒を用いた二酸化炭素の選択的光還元反応の開発と機構解明
研究の結果	二酸化炭素(CO₂)の光還元反応は、CO₂を炭素資源として直接利用可能にし、地球温暖化や化石燃料枯渇の解決に資する有力な手段である。そのため、分子触媒を用いた効率的なCO₂光還元反応の開発は注目を集めている。当研究室ではCO₂光還元触媒としてPNNP型四座配位子を有するイリジウム錯体およびルテニウム錯体が開発されている。これらの錯体は自己光増感型触媒としてはたつき、高い反応性、耐久性、生成物選択性でCO₂を還元したが、長波長領域の可視光吸収を利用した光反応を実現できない。本研究ではこの問題を解決するため、PNNP型四座配位子の中心金属をOsに置き換えた錯体(PNNP)Os錯体を開発した。まずは(PNNP)Osを合成し、その錯体を用いて可視光($\lambda \geq 400$ nm)照射下、別の光増感剤なしでCO₂の光還元反応を行なったところ、一酸化炭素(CO)形成選択的に反応が進行した。自己光増感型単核触媒を用いる既存系と比較してもH₂生成を抑えて比較的高い触媒回転数(TON: turnover number; $TON_{\text{reduction}} = \sim 635$; $TON_{\text{CO}} = 530$, $TON_{\text{HCO}_2\text{H}} = 95$, $TON_{\text{H}_2} \leq 10$)が得られ、CO選択性は85%に達した。(PNNP)Osは可視光の幅広い波長領域にまたがり光吸収を呈している。この利点を活用して、青色($\lambda_0 = 450$ nm)、緑色($\lambda_0 = 525$ nm)、および赤色($\lambda_0 = 630$ nm)の単色光を放つLEDで照射しCO₂還元反応を行ったところ、いずれのLED光を用いた場合もCO₂還元が進行した。幅広い領域の可視光を利用できる、単核・単独の自己光増感型金属錯体を用いるCO₂変換のマイルストーンとなった。最適化条件において(PNNP)Osを用いたCO₂の光還元における反応量子効率(ϕ: 照射された光子のうちのCO₂還元反応に利用された割合)を光量測定法で調べたところ、12%と比較的高いことがわかった。また、同位体標識した¹³CO₂を用いて同様の操作を行い、生成したCOがCO₂由来であることを直接的に確かめた。そのCO₂光還元反応において、想定されるCO生成の機構を光化学および電気化学の測定技術や計算装置を駆使して調査を行なっている。
研究発表 (実績)	「論文発表」 Kenji Kamada, Jieun Jung, Chihiro Yamada, Taku Wakabayashi, Keita Sekizawa, Shunsuke Sato, Takeshi Morikawa, Shunichi Fukuzumi, Susumu Saito, Photocatalytic CO₂ Reduction Using an Osmium Complex as a Panchromatic Self-Photosensitized Catalyst: Utilization of Blue, Green, and Red Light, <i>Angew. Chem. Int. Ed.</i> 2024, <i>63</i>, e202403886. 「口頭/ポスター発表」 1. "Red-light-driven CO₂ reduction using an osmium complex as a panchromatic self-photosensitized catalyst" The 31st International Conference on Photochemistry, Jieun Jung, Kenji Kamada, Susumu Saito, 2023 年 7 月 23-28 日, Sapporo Park Hotel, Sapporo [Oral]. 2. "Red-light-driven CO₂ reduction using an osmium complex as a panchromatic self-photosensitized catalyst" 2023 年光化学討論会, Jieun Jung, Kenji Kamada, Susumu Saito, 2023 年 9 月 5-7 日, 広島国際会議場, 広島 [Poster].

提出期限: 研究期間終了後、すみやかに助成金の「必要経費使途明細書」「領収書」と合わせて提出下さい。
年度をまたぐ場合は毎年3月末日までに、途中経過をご記入の上、報告願います。