

令和 6 年 6 月 21 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H00903

研究課題名(和文) 多核クラスター錯体を用いた小分子変換のための学理創出

研究課題名(英文) Development of Scientific Foundation for Small Molecule Conversion Using Multinuclear Metal Complexes

研究代表者

正岡 重行 (Masaoka, Shigeyuki)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：20404048

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、生体酵素の活性中心の構造ならびに研究代表者のこれまでの研究から得た着想に従い、小分子の多電子酸化還元を促す革新的な触媒の創出を目指した触媒開発基礎研究を推進した。具体的には、「多電子移動能」と「結合組み換え能」を有する五核クラスター錯体を多数合成し、その構造、電子状態ならびに酸化還元能の解析を行うとともに、合成した五核クラスター錯体の小分子変換反応に対する触媒能の評価を行った。その結果、五核クラスター錯体中に存在する金属イオンの種類に応じてその電子移動能が多様に変化し、様々な小分子変換反応に対し活性を示すことが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

様々な小分子を対象とした多電子酸化還元反応の触媒として、均一系錯体触媒や固体触媒、生体酵素を修飾した電極触媒などを対象に、これまでに複数の研究が行われてきた。これらの既存材料と比較し、本研究で対象とした多核クラスター錯体は、多核構造に由来する電子柔軟性により、酸化還元ストレスや化学変化ストレスに柔軟に対応し、結果として高い触媒耐久性を付与できることが本研究により示唆された。このように、多核クラスター錯体は、既存の触媒材料とは一線を画す優位性を有しており、本研究により得られた成果は小分子変換材料の開発に新たな戦略を提供するものである。

研究成果の概要(英文)：In this study, based on the structures of the active centers of enzymes and the ideas obtained from the researches conducted by our group, fundamental research on the development of molecular catalyts was promoted with the aim of creating innovative catalyts for small molecule conversion reactions involving multi-electron transfer. Specifically, we synthesized and structurally characterized a series of pentanuclear cluster complexes with "multi-electron transfer ability" and "bond rearrangement ability," and evaluated their electronic states and catalytic ability for small-molecule conversion reactions. As a result, it was found that the electron transfer ability of the pentanuclear cluster complexes varies depending on the type of metal ions present in the complexes, and that some pentanuclear cluster complexes are active in various small-molecule conversion reactions.

研究分野：錯体化学

キーワード：錯体化学 多核金属錯体 電子移動反応 小分子変換 多電子酸化還元

1. 研究開始当初の背景

現在我々人類が直面するエネルギー・環境問題を背景に、風力や太陽光エネルギー等の再生可能エネルギーの効率的利用を可能とする技術の開発が大きな注目を浴びている。この中でも、再生可能エネルギーを用いて地球上に豊富に存在する資源（水・二酸化炭素・窒素など）を貯蔵可能な化学エネルギー源（水素・メタノール・アンモニアなど）へと変換する反応への期待は極めて大きい。このような小分子を利用した化学エネルギー生産反応は、酸化側の半反応・還元側の半反応の2つから構成される。そして、これらの半反応はいずれも小分子を基質とした、多電子移動を伴う物質変換反応である。したがって、このような小分子変換反応を促進する触媒分子の開発は、人類社会の持続的発展に大きく貢献する非常に重要な研究対象であると言える。

天然では、窒素固定 ($\text{N}_2 + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^- \rightarrow 2\text{NH}_3$) や酸素発生 ($2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{O}_2 + 4\text{H}^+ + 4\text{e}^-$) などの小分子を基質とした多電子酸化還元反応が温和な（常温・常圧）条件下で、極めて効率的に進行することが知られている。但し、これらの反応を担う生体酵素の活性中心は、複数の金属イオンとタンパク質により安定化された特殊な構造を形成しており（窒素固定： Fe_7Mo 八核錯体、酸素発生： Mn_4Ca 五核錯体）、生体内でのみ安定である。すなわち、生体系から活性中心のみを取り出し人工的に利用すること、ならびに生体系の活性中心と同様の構造体を人工的に構築し生体系と同等の活性を得ることは、最先端の科学技術をもってしても極めて困難である。

2. 研究の目的

本研究では、「多電子移動能」と「結合組み換え能」を併せ持つ五核クラスター錯体を研究開発の中心に据え、小分子変換反応を促す革新的な触媒の創出を目指すこととした。そのために、金属イオンの種類が異なる種々の五核クラスター錯体を合成し、得られた錯体の多電子移動能を評価することを第一の目的とした。加えて、それらの五核クラスター錯体について、小分子変換に対する反応性を評価するとともに、種々の測定によりその反応機構を理解し、新たな触媒系の創出へつなげることを目指した。

3. 研究の方法

申請者はこれまでに、金属錯体を用いて小分子変換反応を人工的に構築する試みを実施してきた^{1,2,3,4}。その中で、多電子酸化還元が多段階の電子移動反応ならびに化学結合の生成・解離を伴う反応であることに着目し、「多電子移動」と「結合の組み換え」の両反応を高効率に進行させる触媒分子の開発が高活性な触媒分子創出の鍵となると考えた。この考察に基づき見出された酸素発生触媒（鉄五核錯体）は、その酸素発生速度が $1,900 \text{ s}^{-1}$ に達し、これは天然の活性中心（ Mn_4Ca 五核錯体）の酸素発生速度（ 400 s^{-1} ）を凌駕するものであった⁵。また、鉄五核クラスター錯体は天然の活性中心とは大きく異なる構造を有しているが、それらの触媒反応機構には複数の共通点が見られた。

以上の背景に基づき、本研究では、図1に示す骨格を有する五核クラスター錯体（ M_5 ）に着目した⁶。この錯体は5つの金属イオンと bpp^- （ $\text{Hbpp} = 3,5\text{-bis}(2\text{-pyridyl})\text{pyrazole}$ ）配位子、オキソまたはヒドロキソ配位子から構成される。興味深いことに、この五核クラスター錯体骨格において、上下に存在する2つの金属イオンは配位飽和な6配位正八面体型構造をとる一方で、中央の酸素原子で架橋された3核部分の金属イオンは配位不飽和な5配位構造となる。すなわち、酸素架橋された3核部分の金属イオンは触媒反応の活性サイトとして機能することが見込まれる。活性サイトが近接した位置に存在することは、結合の生成／解離に当たって有利に働くと予想される。

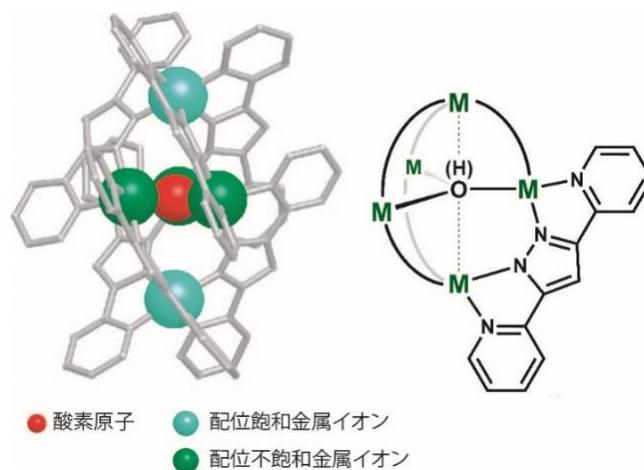


図1 五核クラスター錯体の構造

そこで、この五核クラスター錯体群を用いて、その電子移動能ならびに触媒能について、詳細に評価を行った。

4. 研究成果

まず始めに、五核クラスター錯体群の電気化学測定を実施した。図2にその結果を示す。この錯体群は柔軟な多電子移動能を示すことが判明した⁶。すなわち、サイクリックボルタモグラムにおいて、いずれの金属イオンを用いた場合（酸化還元能を持たない **Zn₅** は除外する）においても、錯体は金属イオンの核数に応じた多電子移動能を示した。更に構成金属イオンの種類によってその酸化還元電位が大幅に変化することが分かった。すなわち、この骨格は、小分子の多電子酸化還元反応に不可欠な (1) 多電子移動と (2) 基質の結合サイトとを併せ持っている。そこでこの五核クラスター錯体群の小分子変換反応に対する触媒能を調査することとした。

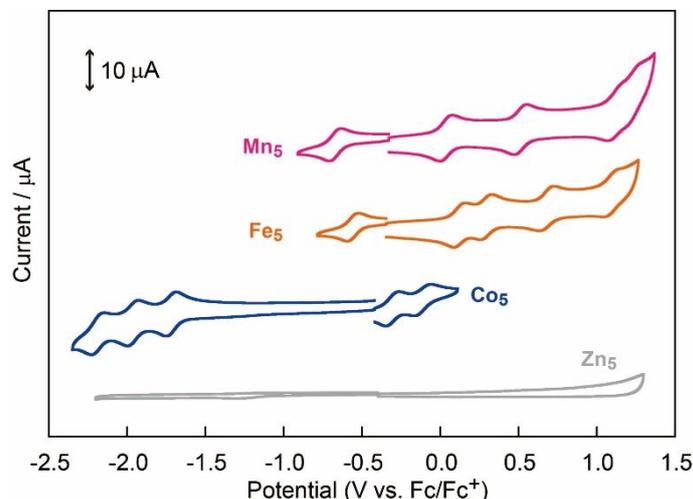


図2 各種五核クラスター錯体 (0.2 mM) の 0.1 M (*n*-Bu)₄NClO₄-アセトニトリル溶液中でのサイクリックボルタモグラム。掃引速度：100 mV/s.

触媒能の評価に関する具体的な研究成果の 1 つとして、コバルト五核クラスター錯体 (**Co₅**) と光増感剤であるイリジウム錯体から構成される触媒系の構築が挙げられる。二酸化炭素雰囲気下において、可視光照射を行ったところ、還元反応が進行し、主生成物として一酸化炭素が得られた⁷。先行研究⁸において、鉄五核クラスター錯体が酸化反応（水の四電子酸化による酸素発生反応）を促進したのとは対照的な結果である。これは、五核クラスター錯体での金属イオン置換による電子移動能の変化（図2）により説明できる。更に、本反応系では、ギ酸の存在下、常温・常圧条件で可視光を照射し、反応終了後の気相をガスクロマトグラフィーにより解析したところ、水素ガスの生成が確認された⁹。多数の対照実験ならびに分光学測定・電気化学測定に基づき、触媒反応の機構解析を行ったところ、コバルト五核クラスター錯体が光化学的にギ酸を脱水素化し、水素ガスを生成していることが明らかとなった。また、この反応系の触媒回転頻度は既存の関連する触媒系と比較して世界最高値であることも判明した。すなわち、本触媒系は、二酸化炭素還元反応とギ酸脱水素化反応による持続可能な水素生成サイクルを達成した世界で初めての例とみなすことができる（図3）。

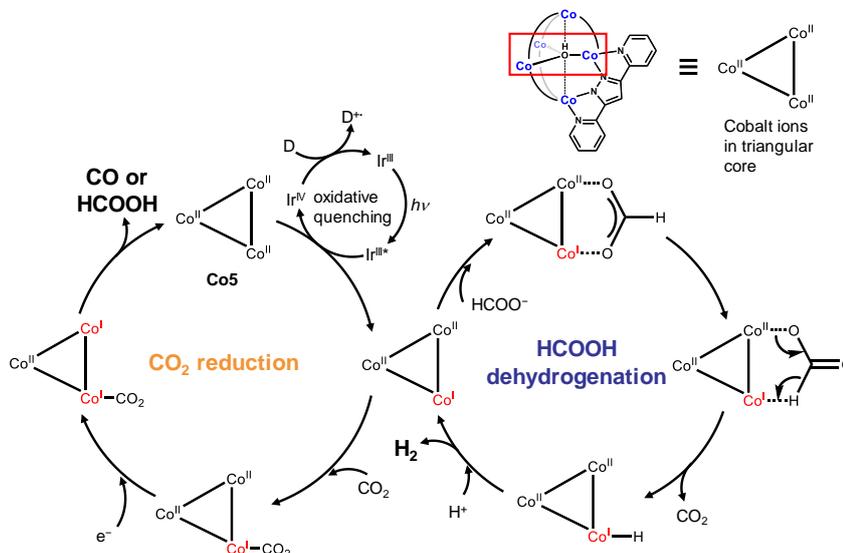
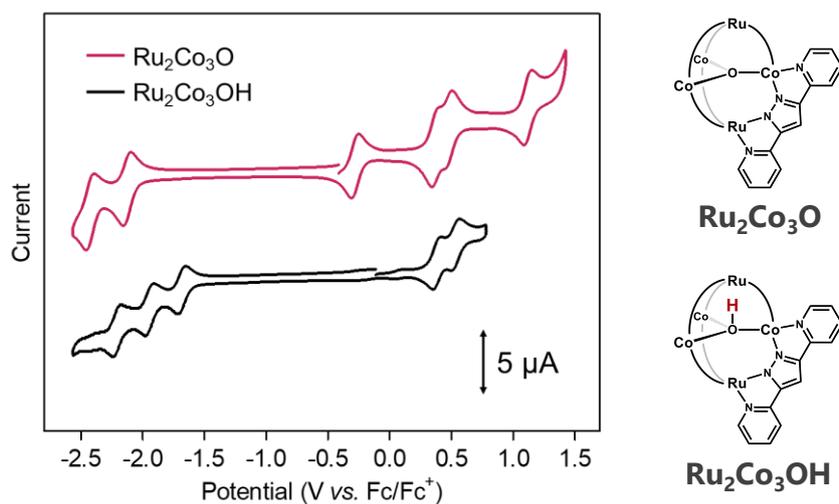


図3 **Co₅** を触媒とする二酸化炭素還元反応とギ酸脱水素化反応を介した水素生成サイクル

更に本研究では、二種類の異なる金属イオンを有する五核クラスター錯体の合成ならびに得られた錯体の小分子変換反応に対する触媒能の評価の遂行にも注力した。代表的な成果として、2つのルテニウムイオンと3つのコバルトイオンにより形成される異種金属五核クラスターの開発が挙げられる⁹。この五核クラスター錯体は、酸素原子が中心の3つのコバルトイオンを架橋しており、架橋配位子としてヒドロキソ配位子(OH)もしくは、オキシ配位子(O²⁻)を持つ。このことから、架橋部位に存在する酸素原子がBronsted酸/塩基サイトとして機能することに加え、この架橋部位が立体的に遮蔽された環境にあるために、特異な挙動を示すと予想した。Bronsted酸/塩基サイトを有する五核クラスター錯体は、それぞれ、単結晶X線構造解析により5核構造を有することを確認するとともに、赤外分光測定により架橋部位の配位子の構造を決定した。次に、Bronsted酸サイトを有する五核クラスター錯体と塩基の反応およびBronsted塩基サイトを有する五核クラスター錯体と酸の反応をそれぞれ、紫外可視分光測定により追跡したところ、どちらの反応も進行しないことが判明した。この事実は、五核クラスター錯体の酸-塩基挙動が、古典的なBronsted-Lowryの酸-塩基理論に従わないことを意味している。すなわち、五核クラスター錯体においてBronsted酸/塩基サイトが立体的に遮蔽された空間に存在することで、H⁺の動き(解離/付加)が抑制され、H⁺が熱力学的に準安定な状態に存在できることが明らかになった。続いて、サイクリックボルタンメトリー測定を行ったところ、Bronsted酸サイトを有する錯体のボルタモグラムの波形は、Bronsted塩基サイトを有する錯体のものと大きく異なることが明らかになった。これは、五核クラスター錯体に内包されたH⁺が五核錯体の電子移動能に大きな影響を与えることを示している。また、10%の水存在下で定電位電解を実施し、気相をガスクロマトグラフィーで分析したところ、Bronsted塩基サイトを有する錯体を用いた場合においてファラデー効率99%で水素の発生が確認された一方で、Bronsted酸サイトを有する錯体は一切触媒活性を示さないことが明らかとなった。この結果は、五核クラスターに内包されたH⁺の有無によって錯体の触媒機能が制御できることを示す、重要な成果である。



Cyclic voltammograms of $\text{Ru}_2\text{Co}_3\text{O}$ and $\text{Ru}_2\text{Co}_3\text{OH}$ (0.2 mM) in acetonitrile. (supporting electrolyte: TBAP (0.1 M), WE: GC, auxiliary: Pt, reference: Ag/Ag⁺, scan rate: 50 mV s⁻¹).

図4. オキシ架橋 Ru_2Co_3 五核クラスター錯体 ($\text{Ru}_2\text{Co}_3\text{O}$) とヒドロキソ架橋 Ru_2Co_3 五核クラスター ($\text{Ru}_2\text{Co}_3\text{OH}$) のサイクリックボルタモグラム。五核クラスター錯体に内包された H⁺が五核錯体の電子移動能に大きな影響を与えることを示している。

以上の研究により、五核クラスター錯体への金属イオン自在配置ならびにそれに基づく電子移動能・触媒機能の能動的制御という新たな知見を得ることができた。これらの知見に基づき、現在我々は、小分子の多電子酸化還元反応にむけた新たな多核金属錯体の開発にも着手している。多核金属錯体による触媒化学を更に深めることで、人類社会の持続可能な発展に貢献する新たな学問領域を拓くことも夢ではないと確信している。

<引用文献>

1. Function-integrated Ru catalyst for photochemical CO₂ reduction
S. K. Lee, M. Kondo, M. Okamura, T. Enomoto, G. Nakamura, S. Masaoka
J. Am. Chem. Soc., **2018**, *140*, 16899.
2. Quick and Easy Method for Dramatic Improvement of the Electrochemical CO₂ Reduction Activity of an Iron Porphyrin Complex
K. Kosugi, M. Kondo, S. Masaoka
Angew. Chem. Int. Ed., **2021**, *60*, 22070.

3. 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.
4. Iron-Complex-Based Supramolecular Framework Catalyst for Visible-Light-Driven CO₂ Reduction
K. Kosugi, C. Akatsuka, H. Iwami, M. Kondo, S. Masaoka
J. Am. Chem. Soc., **2023**, *145*, 10451.
5. A pentanuclear iron catalyst designed for water oxidation
M. Okamura, M. Kondo, R. Kuga, Y. Kurashige, T. Yanai, S. Hayami, V. K. K. Praneeth, M. Yoshida, K. Yoneda, S. Kawata, S. Masaoka
Nature, **2016**, *530*, 465.
6. Pentanuclear scaffold: a molecular platform for small-molecule conversions
M. Kondo, S. Masaoka
Acc. Chem. Res., **2020**, *53*, 2140.
7. Effect of metal ion substitution on the catalytic activity of a pentanuclear metal complex
T. Akai, M. Kondo, S. K. Lee, H. Izu, T. Enomoto, M. Okamura, Y. Saga, S. Masaoka
Dalton Trans., **2020**, *49*, 1384.
8. Photochemical hydrogen production based on HCOOH/CO₂ cycle promoted by pentanuclear cobalt complex
T. Akai, M. Kondo, Y. Saga, S. Masaoka
Chem. Commun, **2022**, *58*, 3755.
9. Brønsted Acid/Base Site Isolated in a Pentanuclear Scaffold
M. Tomoda, M. Kondo, H. Izu, S. Masaoka
Chem. Eur. J., **2023**, *29*, e202203253.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計22件（うち査読付論文 22件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Morii Yuma, Watanabe Taito, Saga Yutaka, Kambe Tetsuya, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 0
2. 論文標題 Electrochemical C(sp ³)-H Functionalization Using Acetic Acid as a Hydrogen Atom Transfer Reagent	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 ChemElectroChem	6. 最初と最後の頁 e202400061
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/celec.202400061	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Ezhov Roman, Bury Gabriel, Maximova Olga, Daniel Grant Elliot, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki, Pushkar Yulia	4. 巻 429
2. 論文標題 Pentanuclear iron complex for water oxidation: Spectroscopic analysis of reactive intermediates in solution and catalyst immobilization into the MOF-based photoanode	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Catalysis	6. 最初と最後の頁 115230-115230
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcat.2023.115230	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Imai Maho, Kosugi Kento, Saga Yutaka, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 59
2. 論文標題 Introducing proton/electron mediators enhances the catalytic ability of an iron porphyrin complex for photochemical CO ₂ reduction	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 10741-10744
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CC01862H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kitada Masaki, Goo Zi Lang, Kosugi Kento, Saga Yutaka, Yoshinari Nobuto, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 52
2. 論文標題 Accumulation of Re-complex-based Catalytic Centers in Metal-Organic Cages for Photochemical CO ₂ Reduction/Insertion	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 512-515
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.230185	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosugi Kento, Akatsuka Chiharu, Iwami Hikaru, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 145
2. 論文標題 Iron-Complex-Based Supramolecular Framework Catalyst for Visible-Light-Driven CO ₂ Reduction	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 10451-10457
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.3c00783	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Saga Yutaka, Nakayama Yusuke, Watanabe Taito, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 25
2. 論文標題 Visible-Light-Driven Hydroacylation of Unactivated Alkenes Using Readily Available Acyl Donors	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Organic Letters	6. 最初と最後の頁 1136-1141
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.orglett.2c04337	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Akai Takuya, Iwamura Yumi, Kondo Mio, Saga Yutaka, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 52
2. 論文標題 Metal Ion Substitution in a Pentanuclear Scaffold Provides an Efficient Catalyst for a HCOOH/CO ₂ Cycle	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 211-214
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.230023	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tomoda Misa, Kondo Mio, Izu Hitoshi, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 29
2. 論文標題 Bronsted Acid/Base Site Isolated in a Pentanuclear Scaffold	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry - A European Journal	6. 最初と最後の頁 e202203253
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.202203253	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kondo Mio, Tatewaki Hayato, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 50
2. 論文標題 Design of molecular water oxidation catalysts with earth-abundant metal ions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemical Society Reviews	6. 最初と最後の頁 6790 ~ 6831
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CS01442G	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kamakura Yoshinobu, Sakura Chinatsu, Saeki Akinori, Masaoka Shigeyuki, Fukui Akito, Kiriya Daisuke, Ogasawara Kazuyoshi, Yoshikawa Hirofumi, Tanaka Daisuke	4. 巻 60
2. 論文標題 Photoconductive Coordination Polymer with a Lead-Sulfur Two-Dimensional Coordination Sheet Structure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 5436 ~ 5441
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.0c03801	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chinapang Pondchanok, Iwami Hikaru, Enomoto Takafumi, Akai Takuya, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 60
2. 論文標題 Dirhodium-Based Supramolecular Framework Catalyst for Visible-Light-Driven Hydrogen Evolution	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 12634 ~ 12643
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.1c01279	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosugi Kento, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 60
2. 論文標題 Quick and Easy Method to Dramatically Improve the Electrochemical CO ₂ Reduction Activity of an Iron Porphyrin Complex	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 22070 ~ 22074
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202110190	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Iwami Hikaru, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 9
2. 論文標題 Fabrication of a Function Integrated Water Oxidation Catalyst through the Electrochemical Polymerization of Ruthenium Complexes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ChemElectroChem	6. 最初と最後の頁 52 ~ 58
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cefc.202101363	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosugi Kento, Imai Maho, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 51
2. 論文標題 Synthesis and Electrocatalytic CO ₂ Reduction Activity of an Iron Porphyrin Complex Bearing a Hydroquinone Moiety	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 224 ~ 226
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.210734	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamamoto Koji, Sugawa Tsuyoshi, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki, Murahashi Tetsuro	4. 巻 51
2. 論文標題 Bridging coordination of acenaphthylene to a Pd ₃ chain or a Pd ₄ sheet cluster	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Dalton Transactions	6. 最初と最後の頁 1901 ~ 1906
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1DT04071E	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosugi Kento, Kashima Hina, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 58
2. 論文標題 Copper(II) tetrakis(pentafluorophenyl)porphyrin: highly active copper-based molecular catalysts for electrochemical CO ₂ reduction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 2975 ~ 2978
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CC05880K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Akai Takuya, Kondo Mio, Saga Yutaka, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 58
2. 論文標題 Photochemical hydrogen production based on the HCOOH/CO ₂ cycle promoted by a pentanuclear cobalt complex	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 3755 ~ 3758
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CC06445B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Li Shangxing, Iwami Hikaru, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 8
2. 論文標題 Electrochemical Polymerization of a Carbazole Tethered Cobalt Phthalocyanine for Electrocatalytic Water Oxidation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ChemNanoMat	6. 最初と最後の頁 e202200028
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cnma.202200028	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Watanabe Taito, Saga Yutaka, Kosugi Kento, Iwami Hikaru, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 58
2. 論文標題 Visible light-driven CO ₂ reduction with a Ru polypyridyl complex bearing an N-heterocyclic carbene moiety	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 5229 ~ 5232
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CC00657J	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Iwami Hikaru, Okamura Masaya, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 60
2. 論文標題 Electrochemical Polymerization Provides a Function Integrated System for Water Oxidation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 5965 ~ 5969
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202015174	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tasaki Masahiro, Okabe Yuki, Iwami Hikaru, Akatsuka Chiharu, Kosugi Kento, Negita Kohei, Kusaka Sinpei, Matsuda Ryotaro, Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 -
2. 論文標題 Modulation of Self Assembly Enhances the Catalytic Activity of Iron Porphyrin for CO ₂ Reduction	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 2006150
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.202006150	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kondo Mio, Masaoka Shigeyuki	4. 巻 53
2. 論文標題 Pentanuclear Scaffold: A Molecular Platform for Small-Molecule Conversions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Accounts of Chemical Research	6. 最初と最後の頁 2140 ~ 2151
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.accounts.0c00186	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Shigeyuki Masaoka
2. 発表標題 Development of molecular catalysts for artificial photosynthesis
3. 学会等名 SJTU and OU Joint Workshop on Organic Chemistry (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 正岡重行
2. 発表標題 人工光合成への挑戦-空気や水から価値ある分子を-
3. 学会等名 第130回 分子科学フォーラム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 正岡重行
2. 発表標題 金属錯体で創造する光合成反応触媒
3. 学会等名 カーボンニュートラル社会の実現に向けた触媒科学の挑戦, 大阪大学ICS-OTRI触媒科学シンポジウム(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 正岡重行
2. 発表標題 金属錯体の電子移動制御に立脚した触媒開発
3. 学会等名 早稲田大学講演会(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shigeyuki Masaoka
2. 発表標題 Molecular Catalysts for Artificial Photosynthesis
3. 学会等名 Chemical Approaches for Sustainable Development Goals (SDGs), Osaka University Anniversary Lecture Series1(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 正岡重行
2. 発表標題 5つの金属イオンが織り成す革新機能
3. 学会等名 白鷺セミナー, 大阪府立大学(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 正岡 重行
2. 発表標題 小分子の多電子酸化 / 還元反応のための多核金属錯体触媒
3. 学会等名 新学術領域「ハイブリッド触媒」第4回公開シンポジウム(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 正岡 重行
2. 発表標題 金属錯体の電子移動制御に立脚した触媒開発
3. 学会等名 福岡大学セミナー(招待講演)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計3件

1. 著者名 近藤美欧, 正岡重行	4. 発行年 2020年
2. 出版社 化学同人	5. 総ページ数 224
3. 書名 高機能性金属錯体が拓く触媒科学	

1. 著者名 近藤 美欧, 正岡 重行	4. 発行年 2020年
2. 出版社 化学同人	5. 総ページ数 224
3. 書名 光エネルギー変換における分子触媒の新展開	

1. 著者名 近藤 美欧, 正岡 重行	4. 発行年 2021年
2. 出版社 エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 564
3. 書名 生命金属ダイナミクス ~生体内における金属の挙動と制御~	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------