

令和 2 年 5 月 11 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05725

研究課題名(和文)鉄と銅を基軸とした酸素活性化触媒の理論研究

研究課題名(英文)Theoretical study of oxygen activation by iron and copper catalysts

研究代表者

塩田 淑仁 (SHIOTA, YOSHIHITO)

九州大学・先端物質化学研究所・准教授

研究者番号：70335991

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：ある種銅錯体はメタンを酸化し、メタノールを生成することが知られている。特に生体内のメタン酸化酵素(pMMO)やゼオライト触媒中ではその銅活性点の役割と機構に興味もたれている。そこで本研究ではゼオライト中の銅錯体によるメタン酸化機構とその活性種生成機構について理論的に検討した。ポテンシャルエネルギー面の解析から、メタンとの反応性はCo, Ni, Fe, Cuの順に大きくなる。いっぽう、メタノール収率はFe, Co, Ni, Cuの順となる。これらと気相中のMO⁺イオンによるメタン水酸化反応とを比較することでゼオライト骨格の役割についても明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子化学計算を用いてメタンの直接酸化反応を触媒する活性種の電子構造が明らかとなった。これらの知見から天然ガスを効率よく変換する化学反応に利用する触媒開発に弾みがつくと期待される。またこれらの研究から炭化水素の有用な化合物への直接変換が可能になる。

研究成果の概要(英文)：zeolites (microporous aluminosilicate minerals) have been gaining significant popularity due to their broad applications in catalysis including the dream reaction of selective oxidation (hydroxylation) of methane to methanol at low temperature. In this review, we outline the current main challenges in the development of Fe-, Cu-, Co- and Ni-exchanged zeolites for methane hydroxylation and summarize key findings that have been reported in both spectroscopy and computational studies.

研究分野：計算化学

キーワード：量子化学計算 触媒反応 遷移状態 C-H結合活性化

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 遷移金属元素は、触媒では活性点として、生体内では酵素の活性中心として働き、高い選択性や温和な条件で反応をコントロールし、極めて高効率で物質の変換を行っている。このように遷移金属元素は微量ながら、触媒や酵素の活性点できわめて重要な役割を果たしている。それらの反応は一見すると単純な反応であっても複雑な素反応の組み合わせで進行していると考えられている。

【研究のポイント】

- ・量子化学計算による反応解析
- ・鉄と銅を活性点にもつ触媒・酵素に着目
- ・酸素分子の活性化機構の理論解析
- ・酸化反応の活性種とその電子状態解析

(2) 反応機構を明らかにするためには、素反応レベルでの理解を欠かすことができない。しかし、優れた実験手法を用いたとしてもその反応機構を実験的手法のみで完全に解明することは困難であり、理論化学、特に量子化学計算のサポートが必要とされている。特に実験では観測困難な不安定な中間体や遷移状態を予測できることが理論計算の最大な利点である。

2. 研究の目的

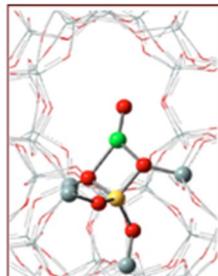
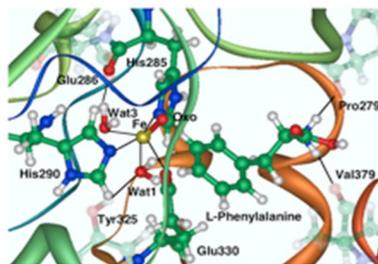
(1) 酸化反応の触媒プロセスは、反応活性種の生成とそれに続く基質の挿入によって、開始する。生成する活性種はそれ自身が活性であるために適度に不安定であり、また、活性種が生成されるためには不安定過ぎてはいけない。これらを達成してはじめて触媒がサイクルとして成立する。本研究では理論化学的手法を用いて、“活性中心に鉄と銅を持ち、かつ、酸素分子が酸化剤として働く”反応の触媒サイクル成立要件を解明し、現実の酵素（動作条件は常温常圧）と触媒（動作条件は100～300℃、常圧～数気圧）に展開していくことを目的とする。これらを明らかにするために“鉄と銅を基軸とした酸素活性化触媒の理論研究”を行なう。

(2) 本研究では、金属活性点での触媒作用を調べるために酸化反応の機構解明を目指し、本研究期間内に、次の3つの重点研究課題を実施する。銅金属酵素に関する理論的研究：チロシナーゼ、pMMO(膜結合型メタン酸化酵素)の銅二核活性点と周辺タンパクの役割解明、ヘモシアニン(酸素運搬機能のみ)との差異を明確にする。鉄金属酵素に関する理論的研究：sMMO(可溶型メタン酸化酵素)の金属活性点の解明、他のノンヘム型との機能相違点と周辺タンパクの関連性を明らかにする。ゼオライト触媒に関する理論的研究：細孔の寄与、酸化触媒能、金属吸着能の理論的に解明する

(3) 本研究の特色は活性点構造だけでは説明できない周辺アミノ酸の影響をあらわに計算モデルに取組むことで鉄、銅タンパクの機能分化を明らかにすることである。さらにその成果を触媒系へ展開する。そのための方法としてQM/MM法をもちいる。QM/MM法とは、結合や電子状態の精密な記述が必要な領域(反応領域)に量子化学計算(QM計算)を、周辺領域の比較的力場構築が容易な部分(構造領域)に分子力学(MM計算)を使用して、それらを組み合わせる方法である。この方法を用いれば、全タンパクを含む系や現実の系に近い触媒についても計算を実行することができるようになる。申請者は2000年代前半からこの手法に取組み改良をつづけている。

3. 研究の方法

(1) 本研究は理論的手法を用いて、化学反応解析をおこなう。解析手法として量子力学的手法(QM法)と分子力場法(MM法)を組み合わせたQM/MM法を使用する。QM/MM法とは、結合や電子状態の精密な記述が必要なQM領域(金属活性点)に量子化学計算を、周辺領域の比較的記述が容易なMM領域(隣接領域)に分子力学を使用して、それらを組み合わせる方法である。例えば、左図は酵素の銅二核中心であるが、ball-and-stick部分がQM領域でそこに接続する周辺部位をMMとし、その相互作用は連結部分(図中では*印)と分子間力としてとりこまれる。このことにより、全タンパクを含む系や触媒全体を考慮した系での計算が実行可能となる。この計算を実行するためには現実系の構築が必要となるが、酵素の場合はプロテインデータベース(PDB)由来のX線構造を使用することにより可能である。量子化学計算の実行には本研究費で購入したPCにて実施した。



(2)本研究のターゲットである銅二核酵素(pMMO)はメタンを水酸化することが知られている。その他の銅二核をもつタンパク質として、チロシナーゼは芳香環の酸化、ヘモシアニン呼吸色素として酸素の運搬機能をもつことが知られている。これらは生体内でほぼ同じ二核銅活性点をもつがその機能が水酸化や酸素の運搬と異なっている。このことは、金属と酸素間の相互作用が単なる結合にとどまるか、それとも4電子還元による酸素結合解離まですすむか、が周辺アミノ酸環境によりコントロールされていることを示している。

(3)個々の銅タンパクのプロセスもメタン活性化、芳香環の水酸化(生体内では神経伝達物質の生成に関与)、酸素運搬能など興味深い。鉄二核含有タンパクにも銅と同様の機能持つ酵素が知られており、その活性点構造もX線構造解析からも明らかとなっている。メタン酸化酵素(sMMO)と酸素運搬能をもつタンパク(単核:ヘモグロビン、二核:ヘムエリスリン)などがありこれらの研究も同様の手法により解析が可能である。

(4)錯体に代表される均一系触媒と表面などの不均一系へ展開するための足がかりとして金属置換ゼオライトの解析を行なった。さらにメタン酸化触媒の開発のためモデル計算を重点的に行なった。

4. 研究成果

メタン酸化酵素のモデル錯体やゼオライト触媒内での反応機構を理論化学的に明らかにした。これらの成果から効率よくメタンを活性化する触媒設計指針が得られた。特に反応活性種の生成機構とその反応性を遷移状態の構造を含めて、電子状態から明らかにしたことは大変有用な成果である。これらの成果は原著論文、総説、学会発表を通じて公表された。実験化学者との共同研究を通して量子化学の有用性もアピールすることができた。さらに、理論計算に興味のある実験グループの研究者や、新規に計算グループを立ち上げる企業の技術者に、計算の指導をすることで研究成果の社会還元を行なった。九州大学では一般市民向けの公開講座や研究室見学がしばしば開かれており、これらの機会を使って研究成果を社会に広く発信した。また、所属する大学の学部学生への講義、大学院生への指導を通じて、手段・方法論としての量子化学だけでなく、その応用例たる研究成果についても教育として還元した。今後は研究成果をさらに発展させ、触媒反応への理解を深める研究を実施する。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計48件（うち査読付論文 47件 / うち国際共著 5件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Takahashi Kazuyuki, Yamamoto Kaoru, Yamamoto Takashi, Einaga Yasuaki, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Mori Hatsumi	4. 巻 9
2. 論文標題 High-Temperature Cooperative Spin Crossover Transitions and Single-Crystal Reflection Spectra of [FeIII(qsal)2](CH3OS03) and Related Compounds	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 81 ~ 81
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst9020081	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 Hashimoto Koichi, Koide Taro, Okawara Toru, Shimakoshi Hisashi, Hori Yuta, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Hisaeda Yoshio	4. 巻 48
2. 論文標題 Redox behaviour of the π -dihydroporphycene cobalt complex: study on the effect of hydrogenation of the ligand	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Dalton Transactions	6. 最初と最後の頁 872 ~ 881
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8DT03743D	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 Kotani Hiroaki, Kaida Suzue, Ishizuka Tomoya, Mieda Kaoru, Sakaguchi Miyuki, Ogura Takashi, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Kojima Takahiko	4. 巻 57
2. 論文標題 Importance of the Reactant-State Potentials of Chromium(V)Oxo Complexes to Determine the Reactivity in Hydrogen-Atom Transfer Reactions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 13929 ~ 13936
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b02453	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 Mahyuddin M. Haris, Shiota Yoshihito, Staykov Aleksandar, Yoshizawa Kazunari	4. 巻 51
2. 論文標題 Theoretical Overview of Methane Hydroxylation by CopperOxygen Species in Enzymatic and Zeolitic Catalysts	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Accounts of Chemical Research	6. 最初と最後の頁 2382 ~ 2390
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.accounts.8b00236	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 Mahyuddin M. Haris, Tanaka Takahiro, Staykov Aleksandar, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari	4. 巻 57
2. 論文標題 Dioxygen Activation on Cu-MOR Zeolite: Theoretical Insights into the Formation of Cu ₂ O and Cu ₃ O Active Species	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 10146 ~ 10152
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b01329	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 Kojima Takahiko, Ogishima Fumiya, Nishibu Takahisa, Kotani Hiroaki, Ishizuka Tomoya, Okajima Toshihiro, Nozawa Shunsuke, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Ohtsu Hiroyoshi, Kawano Masaki, Shiga Takuya, Oshio Hiroki	4. 巻 57
2. 論文標題 Intermediate-Spin Iron(III) Complexes Having a Redox-Noninnocent Macrocyclic Tetraamido Ligand	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 9683 ~ 9695
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b00037	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 Hong Dachao, Tsukakoshi Yuto, Kotani Hiroaki, Ishizuka Tomoya, Ohkubo Kei, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Fukuzumi Shunichi, Kojima Takahiko	4. 巻 57
2. 論文標題 Mechanistic Insights into Homogeneous Electrocatalytic and Photocatalytic Hydrogen Evolution Catalyzed by High-Spin Ni(II) Complexes with S ₂ N ₂ -Type Tetradentate Ligands	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 7180 ~ 7190
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b00881	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 Maurya Yogesh Kumar, Noda Katsuya, Yamasumi Kazuhisa, Mori Shigeki, Uchiyama Tomoki, Kamitani Kazutaka, Hirai Tomoyasu, Ninomiya Kakeru, Nishibori Maiko, Hori Yuta, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Ishida Masatoshi, Furuta Hiroyuki	4. 巻 140
2. 論文標題 Ground-State Copper(III) Stabilized by N-Confused/N-Linked Corroles: Synthesis, Characterization, and Redox Reactivity	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 6883 ~ 6892
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.8b01876	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 Takaaki, Mitsuno Koki, Mori Shigeki, Itoyama Shuhei, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Ishida Masatoshi, Furuta Hiroyuki	4. 巻 24
2. 論文標題 Two Discrete RuCp* (Cp*=Pentamethylcyclopentadienyl) Binding Modes of N-Confused Porphyrins: Peripheral Complex and Sitting Atop Ruthenocenophane Complex by Skeletal Transformation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemistry - A European Journal	6. 最初と最後の頁 6742 ~ 6746
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.201801237	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 Suzuki Wataru, Kotani Hiroaki, Ishizuka Tomoya, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Kojima Takahiko	4. 巻 57
2. 論文標題 Formation and Isolation of a Four-Electron-Reduced Porphyrin Derivative by Reduction of a Stable 20 Isophlorin	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 1973 ~ 1977
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201711058	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 Mahyuddin M. Haris, Tanaka Takahiro, Shiota Yoshihito, Staykov Aleksandar, Yoshizawa Kazunari	4. 巻 8
2. 論文標題 Methane Partial Oxidation over [Cu2(μ-O)]2+ and [Cu3(μ-O)3]2+ Active Species in Large-Pore Zeolites	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 1500 ~ 1509
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.7b03389	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 Koide Taro, Aritome Isao, Saeki Tatsuya, Morita Yoshitsugu, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Shimakoshi Hisashi, Hisaeda Yoshio	4. 巻 3
2. 論文標題 Cobalt?Carbon Bond Formation Reaction via Ligand Reduction of Porphycene?Cobalt(II) Complex and Its Noninnocent Reactivity	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 4027 ~ 4034
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.8b00239	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 Kato Shin-ichiro, Jin Satoshi, Kimura Terutaka, Yoshikawa Naoki, Nara Daiki, Imamura Kenji, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Katoono Ryo, Yamanobe Takeshi, Uehara Hiroki, Nakamura Yosuke	4. 巻 16
2. 論文標題 Trithiazolyl-1,3,5-triazines bearing decyloxybenzene moieties: synthesis, photophysical and electrochemical properties, and self-assembly behavior	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Organic & Biomolecular Chemistry	6. 最初と最後の頁 3584 ~ 3595
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8ob00471d	査読の有無 無
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 Yao Zi-Shuo, Wu Shu-Qi, Kitagawa Yasutaka, Su Sheng-Qun, Huang You-Gui, Li Guo-Ling, Ni Zhong-Hai, Nojiri Hiroyuki, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Kang Soonchul, Kanegawa Shinji, Sato Osamu	4. 巻 56
2. 論文標題 Anisotropic Change in the Magnetic Susceptibility of a Dynamic Single Crystal of a Cobalt(II) Complex	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed	6. 最初と最後の頁 717 ~ 721
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201606165	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 該当する

1. 著者名 Suzuki Wataru, Kotani Hiroaki, Ishizuka Tomoya, Ohkubo Kei, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Fukuzumi Shunichi, Kojima Takahiko	4. 巻 23
2. 論文標題 Thermodynamics and Photodynamics of a Monoprotonated Porphyrin Directly Stabilized by Hydrogen Bonding with Polar Protic Solvents	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chem. Eur. J	6. 最初と最後の頁 4669 ~ 4679
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.201606012	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 Ando Naoki, Fukazawa Aiko, Kushida Tomokatsu, Shiota Yoshihito, Itoyama Shuhei, Yoshizawa Kazunari, Matsui Yasunori, Kuramoto Yutaro, Ikeda Hiroshi, Yamaguchi Shigehiro	4. 巻 56
2. 論文標題 Photochemical Intramolecular C-H Addition of Dimesityl(hetero)arylboranes through a [1,6]-Sigmatropic Rearrangement	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 12210 ~ 12214
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201706929	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 Tsuji Tomokazu, Zaoputra Antonius Andre, Hitomi Yutaka, Mieda Kaoru, Ogura Takashi, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Sato Hiroyasu, Kodera Masahito	4. 巻 56
2. 論文標題 Specific Enhancement of Catalytic Activity by a Dicopper Core: Selective Hydroxylation of Benzene to Phenol with Hydrogen Peroxide	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 7779 ~ 7782
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201702291	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 Hoshi, K.; Tahara, A.; Sunada, Y.; Tutumi, H.; Inoue, R.; Tanaka, H.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Nagashima, H.	4. 巻 90
2. 論文標題 -CAM Mechanisms for the Hydrogenation of Alkenes by cis- and trans-Disilametallacyclic Carbonyl Complexes (M = Fe, Ru, Os): Experimental and Theoretical Studies	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn	6. 最初と最後の頁 613-626
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20170004	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 Wang Yue, Harada Takunori, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Wang Heng, Wang Sheng, Ye Xichong, Ogasawara Masamichi, Nakano Tamaki	4. 巻 7
2. 論文標題 Isolation and phototransformation of enantiomerically pure iridium(iii) bis[(4,6-difluorophenyl)pyridinato-N,C2]picolinate	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 RSC Adv	6. 最初と最後の頁 29550 ~ 29553
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7ra04141a	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 該当する

1. 著者名 Tian Hui, Shimakoshi Hisashi, Imamura Kenji, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Hisaeda Yoshio	4. 巻 53
2. 論文標題 Photocatalytic alkene reduction by a B12-TiO2 hybrid catalyst coupled with C-F bond cleavage for gem-difluoroolefin synthesis	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chem. Commun.	6. 最初と最後の頁 9478 ~ 9481
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cc04377e	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 Fujita Daiki, Sugimoto Hideki, Shiota Yoshihito, Morimoto Yuma, Yoshizawa Kazunari, Itoh Shinobu	4. 巻 53
2. 論文標題 Catalytic C-H amination driven by intramolecular ligand-to-nitrene one-electron transfer through a rhodium(iii) centre	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chem. Commun.	6. 最初と最後の頁 4849 ~ 4852
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cc01840a	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 Suzuki Wataru, Kotani Hiroaki, Ishizuka Tomoya, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Kojima Takahiko	4. 巻 53
2. 論文標題 Formation of supramolecular hetero-triads by controlling the hydrogen bonding of conjugate bases with a diprotonated porphyrin based on electrostatic interaction	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chem. Commun.	6. 最初と最後の頁 6359 ~ 6362
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cc03635c	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 Yoshizawa, K.; Semoto, T.; Hitaoka, S.; Higuchi, C.; Shiota, Y.; Tanaka, H.,	4. 巻 90
2. 論文標題 Synergy of Electrostatic and van der Waals Interactions in the Adhesion of Epoxy Resin with Carbon-Fiber and Glass Surfaces	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn.,	6. 最初と最後の頁 500-505
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20160426	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 Saegusa Yuta, Ishizuka Tomoya, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Kojima Takahiko	4. 巻 82
2. 論文標題 Acid-Base Properties of a Freebase Form of a Quadruply Ring-Fused Porphyrin-Stepwise Protonation Induced by Rigid Ring-Fused Structure	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Org. Chem.	6. 最初と最後の頁 322 ~ 330
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.6b02419	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 Mahyuddin M. Haris, Staykov Aleksandar, Shiota Yoshihito, Miyanishi Mayuko, Yoshizawa Kazunari	4. 巻 7
2. 論文標題 Roles of Zeolite Confinement and Cu-O-Cu Angle on the Direct Conversion of Methane to Methanol by [Cu ₂ (μ-O)] ₂ + -Exchanged AEI, CHA, AFX, and MFI Zeolites	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 ACS Catal.	6. 最初と最後の頁 3741 ~ 3751
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.7b00588	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 Koide Taro, Takesue Moritaka, Murafuji Toshihiro, Satomi Koichiro, Suzuki Yasutaka, Kawamata Jun, Terai Kengo, Suzuki Mitsuharu, Yamada Hiroko, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Tani Fumito	4. 巻 82
2. 論文標題 An Azulene-Fused Tetracene Diimide with a Small HOMO-LUMO Gap	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 ChemPlusChem	6. 最初と最後の頁 1010 ~ 1014
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cplu.201600356	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 Mahyuddin M. Haris, Shiota Yoshihito, Staykov Aleksandar, Yoshizawa Kazunari	4. 巻 56
2. 論文標題 Theoretical Investigation of Methane Hydroxylation over Isoelectronic [FeO] ₂ + and [MnO] ₂ + -Exchanged Zeolites Activated by N ₂ O	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 10370 ~ 10380
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.7b01284	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 Kawanami Toshio, Ishizuka Kentaro, Furuno Hiroshi, Shiota Yoshihito, Yoshizawa Kazunari, Inanaga Junji	4. 巻 28
2. 論文標題 Efficient ¹ H NMR chiral discrimination of sulfoxides caused by the dynamic nature of (R,R)-3,3'-biBINOL	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Tetrahedron Asymm	6. 最初と最後の頁 1587 ~ 1590
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetasy.2017.10.008	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 Hori Yuta, Shiota Yoshihito, Tsuji Tomokazu, Kodera Masahito, Yoshizawa Kazunari	4. 巻 57
2. 論文標題 Catalytic Performance of a Dicopper-Oxo Complex for Methane Hydroxylation	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 8~11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.7b02563	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 Kang, S.; Shiota, Y.; Kariyazaki, A.; Kanegawa, S.; Yoshizawa, K.; Sato, O.	4. 巻 22
2. 論文標題 Heterometallic FeIII/K coordination polymer with a wide thermal hysteretic spin transition around room temperature	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Eur. J.	6. 最初と最後の頁 532-538
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.201503392	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 Ishizuka, T.; Watanabe, A.; Kotani, H.; Hong, D.; Satonaka, K.; Wada, T.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Ohara, K.; Yamaguchi, K.; Kato, S.; Fukuzumi, S.; Kojima, T.	4. 巻 55
2. 論文標題 Homogeneous Photocatalytic Water Oxidation with a Dinuclear CoIII-Pyridylmethylamine Complex	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 1154-1164
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.5b02336	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 Takahashi, K.; Kawamukai, K.; Okai, M.; Mochida, T.; Sakurai, T.; Ohta, H.; Yamamoto, T.; Einaga, Y.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.	4. 巻 22
2. 論文標題 A new family of anionic FeIII spin crossover complexes featuring a weak-field N2O4 coordination octahedron.	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Eur. J.	6. 最初と最後の頁 1253-1257
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.201504883	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 該当する

1. 著者名 Yoshimoto, K.; Yatabe T.; Matsumoto, M.; Robertson, A.; Nakai, H.; Tanaka, H.; Kamachi, K.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Asazawa, K. Tanaka, H.; Ogo, S	4. 巻 45
2. 論文標題 Synthesis and Structure of a Water-soluble ;- 1: 1-N2 Dinuclear RuII Complex with a Polyamine Ligand	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Lett.	6. 最初と最後の頁 149-151
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.151004	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 Itoyama, S.; Doitomi, K.; Kamachi, T.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.	4. 巻 55
2. 論文標題 Possible Peroxo State of the Dicopper Site of Particulate Methane Monooxygenase from Combined Quantum Mechanics and Molecular Mechanics Calculations	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 2771-2775
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.5b02603	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 Kodera, M.; Ishiga, S.; Tsuji, T.; Sakurai, K.; Hitomi, Y.; Shiota, Y.; P. K. Sajith; Yoshizawa, K.; Mieda, K.; Ogura, T.	4. 巻 22
2. 論文標題 Formation and High Reactivity of the anti-Dioxo Form of High-Spin μ -Oxodioxodiiron(IV) as the Active Species That Cleaves Strong C-H Bonds	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Eur. J.	6. 最初と最後の頁 1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.201600048	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 Fujita, Y.; Abe, M.; Shiota, Y.; Suzuki, T.; Yoshizawa, K.	4. 巻 89
2. 論文標題 Computational Study of Cyclobutane-1,3-diyliidene Dicarbenes: Ground-State Spin Multiplicity and New Strategy Toward the Synthesis of Bicyclo[1.1.0]but-1(3)-enes	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 770-778
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20160051	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 該当する

1. 著者名 Huang, Y.-G.; Shiota, Y.; Wu, M.-Y.; Su, S.-Q.; Yao, Z.-S.; Kang, S.; Kanegawa, S.; Li, G.-L.; Wu, S.-Q.; Kamachi, T.; Yoshizawa, K.; Ariga, K.; Hong, M.-C.; Sato, O.	4. 巻 7
2. 論文標題 Superior thermoelasticity and shape-memory nanopores in a porous supramolecular organic framework	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Nature Commun.	6. 最初と最後の頁 11564(1-8)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/ncomms11564	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 Murata, S.; Takahashi, K.; Sakurai, T.; Ohta, H.; Yamamoto, T.; Einaga, Y.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.	4. 巻 6
2. 論文標題 The Role of Coulomb Interactions for Spin Crossover Behaviors and Crystal Structural Transformation in Novel Anionic Fe(III) Complexes from a -Extended ONO Ligand	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 49(1-16)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst6050049	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 Mitome, H.; Ishizuka, T.; Kotani, H.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Kojima, T.	4. 巻 138
2. 論文標題 Mechanistic Insights into C-H Oxidations by Ruthenium(III)-Pterin Complexes: Impact of Basicity of the Pterin Ligand and Electron Acceptability of the Metal Center on the Transition States	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 J. Am. Chem. Soc.	6. 最初と最後の頁 9508-9520
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.6b03785	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 Koide, T.; Takesue, M.; Murafuji, T.; Satomi, K.; Suzuki, Y.; Kawamata, J.; Terai, T.; Suzuki, M.; Yamada, H.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Tani, F.	4. 巻 81
2. 論文標題 An Azulene-Fused Tetracene Diimide with a Small HOMO-LUMO Gap	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ChemPlusChem	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cplu.201600356	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 Kato, S.-I.; Kijima, T.; Shiota, Y.; Yoshihara, T.; Tobita, S.; Yoshizawa, K.; Nakamura, Y.	4. 巻 57
2. 論文標題 Push-Pull Fluorenones and Benzazulenequinones: Regioselective [4 + 2] and [2 + 2] Cycloadditions of Benzopentalenequinone Derivative and Alkynes Bearing an Aniline Moiety	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Tetrahedron Lett	6. 最初と最後の頁 4604-4607
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tetlet.2016.09.002	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 Shimoyama, Y.; Ishizuka, T.; Kotani, H.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Mieda, K.; Ogura, T.; Okajima, T.; Nozawa, S.; Kojima, T.	4. 巻 55
2. 論文標題 A Ruthenium(III)-Oxyl Complex Bearing Strong Radical Character	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Angew Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 14041-14045
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201607861	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 Kanegawa, S.; Shiota, Y.; Kang, S.; Takahashi, K.; Okajima, H.; Sakamoto, A.; Iwata, T.; Kandori, H.; Yoshizawa, K.; Sato, O.	4. 巻 138
2. 論文標題 Directional Electron Transfer in Crystals of [CrCo] Dinuclear Complexes Achieved by Chirality-assisted Preparative Method	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 J. Am. Chem. Soc	6. 最初と最後の頁 14170-14173
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.6b05089	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 Huang, Y.-G.; Shiota, Y.; Su, S.-Q.; Wu, S.-Q.; Yao, Z.-S.; Li, G.-L.; Kanegawa, S.; Kang, S.; Kamachi, T.; Yoshizawa, K.; Ariga, K.; Sato, O.	4. 巻 55
2. 論文標題 Thermally Induced Intra-Carboxyl Proton Shuttle in a Molecular Rack-and-Pinion Cascade Achieving Macroscopic Crystal Deformation	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Angew Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 14628-14632
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201607886	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 Tahara, A.; Tanaka, H.; Sunada, Y.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Nagashima, H.	4. 巻 81
2. 論文標題 Theoretical Study of the Catalytic Hydrogenation of Alkenes by a Disilaferracyclic Complex: Can the Fe-Si σ -Bond-Assisted Activation of H-H Bonds Allow Development of a Catalysis of Iron?	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 J. Org. Chem.	6. 最初と最後の頁 10900-10911
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.6b01961	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 該当する

1. 著者名 Mahyuddin, M.; Staykov, A.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.	4. 巻 6
2. 論文標題 Direct Conversion of Methane to Methanol by Metal-Exchanged ZSM-5 Zeolite (Metal = Fe, Co, Ni, and Cu)	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ACS Catal.	6. 最初と最後の頁 8321-8331
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.6b01721	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 Yao, Z.-S.; Wu, .S.-Q.; Kitagawa, Y.; Su, S.-Q.; Huang, Y.-G.; Li, G.-L.; Ni, Z.-H.; Nojiri, H.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Kang, S.; Kanegawa, S.; Sato, O.	4. 巻 56
2. 論文標題 Anisotropic Change in Magnetic Susceptibility of a Dynamic Single Crystal of Cobalt(II) Complex	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Angew Chem. Int. Ed	6. 最初と最後の頁 717-721
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201606165	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 Saegusa, Y.; Ishizuka, T.; Shiota, Y.; Yoshizawa, K.; Kojima, T.	4. 巻 82
2. 論文標題 Acid-Base Properties of a Freebase Form of a Quadruply-Ring-Fused Porphyrin Stepwise Protonation Induced by Rigid Ring-Fused Structure	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Org. Chem.	6. 最初と最後の頁 322-330
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.6b02419	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15件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 塩田淑仁
2. 発表標題 C-H bond activation by dicopper-oxo species
3. 学会等名 生物無機化学国際シンポジウム（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 塩田淑仁
2. 発表標題 機能性錯体の量子化学計算
3. 学会等名 基礎工学研究科附属未来研究推進センター研究会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 塩田淑仁
2. 発表標題 金属オキシ種によるメタン活性化の理論的研究
3. 学会等名 化学反応経路探索のニューフロンティア2018（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 塩田淑仁
2. 発表標題 Theoretical Study of Methane Activation at the Dicopper Site of pMMO
3. 学会等名 錯体化学国際会議2018（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 塩田淑仁
2. 発表標題 触媒反応は計算化学でどこまで明らかにできるのか？
3. 学会等名 第120回触媒討論会（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 塩田 淑仁 堀 優太 吉澤 一成
2. 発表標題 銅2核錯体によるC-H結合活性化に関する理論的研究
3. 学会等名 日本化学会春季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松井 美咲, 湯村 尚史, 若杉 隆, 人見 穰, 塩田 淑仁, 吉澤 一成
2. 発表標題 窒素含有鉄オキソ錯体を触媒とするメタンC-H結合活性化に関する速度論的同位体効果
3. 学会等名 分子科学討論会2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 村田 優, 高橋 一志, 櫻井 敬博, 太田 仁, 山本 崇史, 栄長 泰明, 塩田 淑仁, 吉澤 一成
2. 発表標題 新奇アニオン性スピルクロスオーバー錯体の 拡張誘導体の構造と物性
3. 学会等名 分子科学討論会2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 系山修平・土井富一城・蒲池高志・塩田淑仁・吉澤一成
2. 発表標題 膜結合型メタンモノオキシゲナーゼの反応活性種に関する理論的研究
3. 学会等名 触媒討論会2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 TAHARA, Atsushi; TANAKA, Hiromasa; SUNADA, Yusuke; SHIOTA, Yoshihito; YOSHIKAWA, Kazunari; NAGASHIMA, Hideo
2. 発表標題 Theoretical Studies of the Catalytic Hydrogenation of Alkenes by a series of Disilametallacyclic iron and ruthenium Complexes
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 KOIDE, Taro; SAEKI, Tatsuya; MORITA, Yoshitsugu; SHIOTA, Yoshihito; YOSHIKAWA, Kazunari; SHIMAKOSHI, Hisashi; HISAEDA, Yoshio
2. 発表標題 Co-C bond formation reaction via the ligand reduction of cobalt porphycene
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 MATSUI, Misaki; YUMURA, Takashi; WAKASUGI, Takashi; HITOMI, Yutaka; SHIOTA, Yoshihito; YOSHIKAWA, Kazunari
2. 発表標題 Density Functional Theory calculations of alkane C-H bond activation by iron-oxo complexes bound by nitrogen-containing ligands
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 HOSHI, Konoka; TAHARA, Atsushi; SUNADA, Yusuke; TANAKA, Hiromasa; SHIOTA, Yoshihito; YOSHIKAWA, Kazunari; NAGASHIMA, Hideo
2. 発表標題 A Theoretical Study of the Catalytic Hydrogenation of Alkenes by Disilathenacyclic Complexes
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 HIROSAWA, Nobuyuki; SHIOTA, Yoshihito; KOHNO, Yoshiumi; ASABA, Ryuma; YOSHIKAWA, Kazunari
2. 発表標題 Theoretical study on absorption wavelength control and improvement of light fastness of β -carotene using solid acid.
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 SUZUKI, Wataru; KOTANI, Hiroaki; ISHIZUKA, Tomoya; OHKUBO, Kei; SHIOTA, Yoshihito; YOSHIKAWA, Kazunari; FUKUZUMI, Shunichi; KOJIMA, Takahiko
2. 発表標題 Thermodynamics and photodynamics of a monoprotonated porphyrin directly stabilized by hydrogen bonding
3. 学会等名 日本化学会第97春季年会2017
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>研究室HP http://trout.scc.kyushu-u.ac.jp/yoshizawaJ/publications.html 業績リスト http://trout.scc.kyushu-u.ac.jp/yoshizawaJ/files/pub.pdf Scopus https://www.scopus.com/authid/detail.uri?origin=resultslist&authorId=7005590954 ORCID http://orcid.org/0000-0003-2054-9845 研究業績 http://trout.scc.kyushu-u.ac.jp/yoshizawaJ/pagesJ/publicationsJ.html</p>

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
--	---------------------------	-----------------------	----