

【基盤研究(S)】

大区分E



研究課題名 超触媒を利用した窒素分子からの革新的分子変換反応の開発

東京大学・大学院工学系研究科・教授

にしばやし よしあき

西林 仁昭

研究課題番号： 20H05671 研究者番号：40282579

キーワード： 窒素分子、アンモニア、触媒

【研究の背景・目的】

本研究代表者らは、これまでの過去約15年間に渡り取り組んできた触媒的窒素固定反応の開発に関する研究の集大成として、常温常圧の極めて温和な反応条件下で、窒素ガスから水をプロトン源に用いて触媒的にアンモニアを高効率に合成する手法の開発にごく最近に成功した (Y. Ashida, K. Arashiba, K. Nakajima, Y. Nishibayashi, *Nature*, **2019**, 568, 536)。これまでに達成した研究成果を踏まえて、これまでに開発した一連の触媒を超える「超触媒」の開発とこれを利用した反応性が極めて低い窒素分子の革新的な分子変換反応の開発を達成するための基盤的技術に関する知見を得ることが本研究の主目的である。

主目的と平行して、アンモニアを利用する新局面である「アンモニアをエネルギーキャリア」として利用する方法の開発が求められており、アンモニアからエネルギーを取り出す方法の開発にごく最近に成功した (K. Nakajima, H. Toda, K. Sakata, Y. Nishibayashi, *Nature Chemistry*, **2019**, 11, 702)。これまでに達成した研究成果を踏まえて、これまでに開発した一連の触媒を超える「超触媒」の開発とこれを利用したアンモニア分解反応の開発を達成するための基盤的技術に関する知見を得ることも取り組む。

【研究の方法】

上述した様にこれまでに達成した研究成果を踏まえて、①アンモニア合成法の開発と②アンモニア分解法の開発に取り組む。

① アンモニア合成法の開発

本研究代表者らは、カルベン骨格を含むPCP型ピンサー配位子を持つモリブデン錯体が触媒的アンモニア合成反応の有効な触媒として働くことを既に明らかにしている。本触媒反応について詳細な知見を得るために、触媒反応の全ての各段階についてDFT理論計算を行うと同時に、触媒反応中に生成する鍵中間体の単離とその化学量論的及び触媒的な反応性を検討する。一連の検討で得られた知見を触媒設計にフィードバックすることでより効率的にアンモニア合成反応を進行させる新しい分子触媒の開発を試みる。

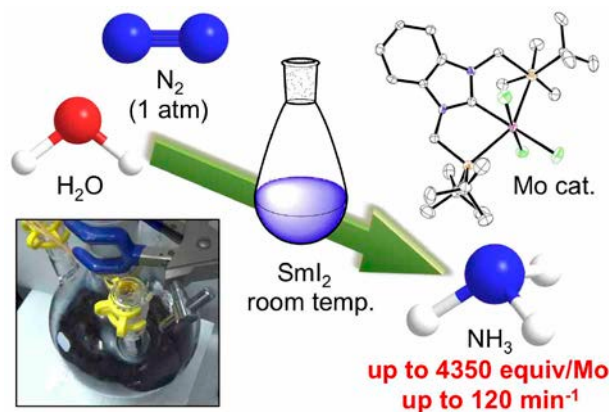
② アンモニア分解反応の開発

本研究代表者らは、ピピリジン配位子を持つルテニウム錯体が触媒的アンモニア分解反応の有効な触媒として働くことを既に明らかにしている。本触媒反応について詳細な知見を得るために、触媒反応の全ての各段階についてDFT理論計算を行うと同時に、

触媒反応中に生成する鍵中間体の単離とその化学量論的及び触媒的な反応性を検討する。一連の検討で得られた知見を触媒設計にフィードバックすることでより効率的にアンモニア分解反応を進行させる新しい分子触媒の開発を試みる。

【期待される成果と意義】

得られる研究成果は、錯体化学や触媒化学などの直接関連する研究分野に対して大きなブレークスルーを与えることをもちろん、有機化学や有機金属化学などの関連する幅広い研究分野に対しても大きなインパクトを与えることが予想される。また、次世代型アンモニア合成法の開発を実現できれば、学術的な成果に留まらず、工業的にも画期的な手法の開発となり、歴史に残る偉業と成り得る。その波及効果は国内に留まらず、世界的に見ても極めて大きいものになると期待される。



【当該研究課題と関連の深い論文・著書】

- ・ Molybdenum-Catalysed Ammonia Production with Samarium Diodide and Alcohols or Water, Y. Ashida, K. Arashiba, K. Nakajima, Y. Nishibayashi, *Nature*, **2019**, 568, 536-540.
- ・ Ruthenium-Catalysed Oxidative Conversion of Ammonia into Dinitrogen, K. Nakajima, H. Toda, K. Sakata, Y. Nishibayashi, *Nature Chemistry*, **2019**, 11, 702-709.

【研究期間と研究経費】

令和2年度－6年度 153,600千円

【ホームページ等】

<http://park.itc.u-tokyo.ac.jp/nishiba/>