

ゲルにくるまれた光触媒と金属触媒が織りなす 協奏的有機合成プロセスの開発

代表研究者 松本 光
九州大学 大学院 工学研究院 化学工学部門 助教

研究要旨

本研究では、光触媒と遷移金属触媒を高分子ゲル内部に固定化し、両者をナノスケールで近接配置させることにより、電子およびエネルギー移動を高効率に促進するゲル担持型協奏的二触媒系の開発を実施した。近年、光触媒と遷移金属触媒を協奏させる二触媒系反応は、温和な条件で医薬品中間体や機能性分子を合成できる革新的手法として注目されている。しかしながら、均一溶液中では触媒同士の距離は濃度に反比例するため、効率的なエネルギー/電子移動のために、高濃度の触媒が必要であった。

そこで本研究では、高分子ゲルに触媒を担持することで、ナノメートルオーダーのゲルの網目構造による触媒間の近接した反応場を構築し、触媒機能の増強を狙った。光触媒および金属触媒として、 $\text{Ir(dFCF3-ppy)}_2(\text{bpy})$ および Ni(bpy) を共導入したポリメタクリレート系オルガノゲルを作製した。拡散反射分光により、光触媒の吸収特性を維持した状態でゲルに導入されたことを確認した。また蛍光消光実験および Stern-Volmer プロットに基づいた分光学的解析により、均一溶液あるいは単一触媒導入したゲルの系に比べ、二触媒導入したゲルの系では効率的なエネルギー移動が生じていることを明らかにした。さらに、触媒導入量および架橋度の異なるゲルの作製により、触媒密度および高分子ゲルの運動性が二触媒間のエネルギー移動に影響していることも示唆された。医薬品合成に有用な C-O カップリング反応を実施したところ、均一触媒に比べ、二触媒を共導入したゲルは非常に高い触媒回転数を達成した。さらに、ゲルは回収再利用が可能であった。これにより、従来は大量の触媒を要していた有機合成反応を、微量の触媒量で高活性に進行させることに成功した。さらに、ゲル触媒はリサイクル使用が可能であり、固定化触媒としての利用可能性が示された。

本研究は、触媒材料設計とプロセス工学を融合し、省触媒・省エネルギー型の持続可能な有機合成技術を実現するものである。今後は、二触媒を共導入したゲルによる連続フロー合成および反応系の拡張を通じて、再生可能エネルギーを活用した新たな化学プロセスの創出を目指したい。本成果は、化学工学・高分子化学・有機合成化学を横断する学際的研究として、次世代の光触媒化学に新たな展開をもたらすものである。