

平面型 N₄ 配位子を有する単核鉄錯体による高効率酸素発生触媒反応

(新潟大院自然) ○早坂 太智・モハメド エマン・ザハラン ザキ・坪ノ内 優太・八木 政行

Highly efficient electrocatalysis by a Fe complex for water oxidation in a homogeneous solution (*Grad. School of Sci. and Tec., Niigata Univ.*) ○Taichi Hayasaka, Eman A. Mohamed, Zaki N. Zahran, Yuta Tsubonouchi, Masayuki Yagi

Electrochemical water splitting coupled with renewably generated electricity has attracted much attention as a promising technology to produce H₂ from water. Since water oxidation is considered to be a bottleneck in water splitting, much effort has been made to develop highly active and durable water oxidation catalysts (WOCs) of earth-abundant metal complexes. In this context, we found that a mononuclear Fe complex with a planer tetradentate ligand (**FeL**) serves as a highly efficient electrochemical WOC in a homogeneous solution. The cyclic voltammogram of 0.01 mM **FeL** in an acetonitrile solution containing 9.1 vol.% water showed the higher catalytic current density for water oxidation of 4.7 mA cm⁻² at 1.37 V vs. Fc/Fc⁺ (Fig.1). A decrease of the catalytic current was observed when the concentration of **FeL** was increased beyond 0.02 mM probably due to the formation of a catalytically inactive or less active multimer of **FeL**.

Keywords : Artificial Photosynthesis; Water Oxidation; Molecular Catalysts; Homogeneous Catalysts; Iron Complexes

昨今の環境・エネルギー問題を背景に、再生可能エネルギー由来の電力を利用した水電解による水素製造に高い関心が寄せられている。高効率な水電解システムの構築には、水からの酸素発生反応を効果的に促進する触媒の開発が重要である。これまで報告されている触媒の多くはRuやIrなどの貴金属元素を用いており、実用的な水電解システムの構築には安価で高活性な卑金属触媒の開発が不可欠である。本研究では、平面型窒素ドナー配位子を有する単核鉄錯体**FeL**が高活性かつ高安定な均一系酸素発生触媒として機能することを明らかにした。

0.01 mM の **FeL** のアセトニトリル溶液に水を添加した際のサイクリックボルタモグラム (CV) では、水の添加量に応じて酸素発生に由来する触媒電流の増大が観測された。9.1 vol.%の水存在下、1.37 V vs. Fc/Fc⁺における触媒電流値は 4.7 mA cm⁻² に到達した (Fig. 1)。触媒電流値は、錯体濃度が 0.01 mM まで直線的に増加し、それ以上の高濃度では減少することが明らかになった。分光電気化学測定から、高濃度条件における触媒活性の低下は、低活性種である **FeL** の多量体の生成に由来することが示唆された。

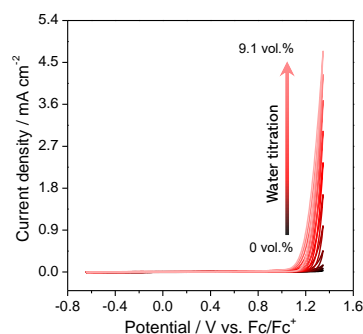


Fig. 1 CVs of 0.01 mM **FeL** in CH₃CN containing 0.1 M TBAP with different water contents of 0 to 9.1 vol.% at a scan rate of 50 mV s⁻¹ under Ar.