

唯 美津木 (准教授) (2008 年 10 月 1 日着任)

A-1) 専門領域：触媒化学，物理化学，錯体化学

A-2) 研究課題：

- a) 金属錯体の表面固定化による新規固定化金属錯体触媒の構築と in-situ 構造解析
- b) 酵素インスパイアードモлекуラーインプリンティング表面の設計と触媒反応制御
- c) Ce 系酸化物固溶体を用いたメタンリフォーミング触媒の開発とその特性解明
- d) 燃料電池電極触媒の燃料電池作動条件下における in-situ XAFS 構造解析
- e) In-situ 空間分解 XAFS 計測法の開発と in-situ 触媒構造解析への展開

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) Ru 単核錯体，Ir ダイマー，Mn₄ 核オキソクラスター，Ru₃ 核カルボニルクラスターなどの金属錯体を酸化物表面の水酸基と選択的に反応させることによって，酸化物固体表面上に新しい固定化金属錯体を創製した。FT-IR，固体 NMR，XPS，TGA，UV/vis，ラマン分光，XAFS 等の手法により，表面に形成される固定化金属錯体の配位構造を明らかにし，またその触媒特性を検討した。
- b) 酸化物表面に固定化した金属錯体の配位子を鑄型分子とした表面モлекуラーインプリンティング触媒の設計・調製を行い，水素移動反応に鑄型分子の形状に応じた形状選択性を示す表面モлекуラーインプリンティング Ru 単核錯体を創製した。
- c) Ce 系酸化物固溶体表面に担持した Ni 触媒を調製し，そのメタンスチームリフォーミング反応特性と触媒活性構造の相関を明らかにした。
- d) Pt 及び PtCo 合金ナノ粒子カソード触媒について，in-situ 時間分解 QXAFS 法を用いて，燃料電池作動条件下での MEA 中の Pt 及び PtCo 合金触媒の酸化状態，局所配位構造の変化を観察し，燃料電池発電過程における触媒構造速度論を解明した。
- e) SPring-8 の X 線マイクロビームを用いた走査型空間分解 XAFS により，メタンスチームリフォーミング反応に活性な Ce 系酸化物固溶体担持 Ni 触媒の 1 粒子の局所配位構造解析に成功した。

B-1) 学術論文

Z. WENG, S. MURATSUGU, N. ISHIGURO, S. OHKOSHI and M. TADA, "Preparation of Surface Molecularly Imprinted Ru-Complex Catalysts for Asymmetric Transfer Hydrogenation in Water Media," *Dalton Trans.* **40**, 2338–2347 (2011).

M. TADA, N. ISHIGURO, T. URUGA, H. TANIDA, Y. TERADA, S. NAGAMATSU, S. OHKOSHI and Y. IWASAWA, "μ-XAFS of a Single Particle of a Practical NiO_x/Ce₂Zr₂O_y Catalyst," *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 14910–14913 (2011) [Front Cover of Issue 33].

Y. UEMURA, Y. INADA, K. K. BANDO, T. SASAKI, N. KAMIUCHI, K. EGUCHI, A. YAGISHITA, M. NOMURA, M. TADA and Y. IWASAWA, "Core-Shell Phase Separation and Structural Transformation of Pt₃Sn Alloy Nanoparticles Supported on γ-Al₂O₃ in the Reduction and Oxidation Processes Characterized by in-situ Time-Resolved XAFS," *J. Phys. Chem. C* **115**, 5823–5833 (2011).

Y. UEMURA, Y. INADA, K. K. BANDO, T. SASAKI, N. KAMIUCHI, K. EGUCHI, A. YAGISHITA, M. NOMURA, M. TADA and Y. IWASAWA, "In situ Time-Resolved XAFS Study on the Structural Transformation and Phase Separation of Pt₃Sn and PtSn Alloy Nanoparticles on Carbon in the Oxidation Process," *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 15833–15844 (2011).

S. MURATSUGU, K. SODEYAMA, F. KITAMURA, S. TSUKADA, M. TADA, S. TSUNEYUKI and H. NISHIHARA, "Normal and Inverted Redox Potentials and Structural Changes Tuned by Medium Effects in [M₂Mo(η⁵-C₅Me₅)₂(S₂C₆H₄)₂(CO)₂] (M: Co, Rh)," *Chem. Sci.* **2**, 1960–1968 (2011).

B-3) 総説, 著書

M. TADA and Y. IWASAWA, "Molecular Imprinted Metal Complexes for Design of Catalytic Structures," in *Model Systems in Catalysis: From Single Crystals and Size Selected Clusters to Supported Enzyme Mimics*, Springer, p. 475–493 (2010).

唯美津木, 「安全・環境を支える放射光」 「放射光が解き明かす驚異のナノ世界」 講談社ブルーバックス, 241–243 (2011).

唯美津木, 「表面固定化金属錯体を利用したモレキュラーインプリンティング触媒」 *化学工業* **62-6**, 28–34 (2011).

唯美津木, 岩澤康裕, 「Re/ゼオライトおよびRe-Pt/ゼオライト」 「触媒調製ハンドブック」 NTS 出版, 14–15 (2011).

唯美津木, 「クラスター触媒」 *表面技術* **62-10**, 491–495 (2011).

M. TADA, "Selective Oxidation Catalysis on Rhenium-Oxide Catalysts," *RSC SPR Catalysis Volume 23*, 316–349 (2011).

唯美津木, 「触媒」 一粒 "の構造を捉える!? — 極細X線ビームが解き明かす触媒の謎」 *化学* **6**, 33–36 (2011).

唯美津木, 「X線マイクロビームを用いた触媒粒子の顕微XAFS構造解析」 *SPring-8 利用者情報* **16**, 250–254 (2011).

B-4) 招待講演

M. TADA, "Design of Molecularly Imprinted Ru-Complex Catalysts for Shape-Selective Catalysis," The Molecular Materials Meeting (M3), Singapore International Conference on "Big Ideas in Molecular Materials," Singapore (Singapore), January 2011 (Keynote lecture).

唯美津木, 「固定化錯体を基盤とした触媒表面の設計」 化学技術戦略推進機構萌芽技術奨励講演会, 東京, 2011年1月.

唯美津木, 「エックス線吸収微細構造法で探る固体触媒の化学変化」 第5回分子科学シンポジウム, 岡崎, 2011年6月.

M. TADA, "CH₄ Activation and In-situ Space-resolved XAFS Analysis of Ni-supported Ce₂Zr₂O_x Solid-Solution Catalysts," Japan-Korea Molecular Science Symposium, Pusang (Korea), July 2011.

M. TADA, "In-situ XAFS Study for Heterogeneous Catalysts," 2011 Gordon Research Conference on X-ray Science, Waterville (U.S.A.), August 2011.

M. TADA, "Design of Molecularly Imprinted Metal-Complex Catalysts for Selective Catalysis," EuropaCat X, Glasgow (U.K.), August 2011 (Keynote lecture).

M. TADA, "Time/Space-Resolved XAFS Characterization of Heterogeneous Catalysts," 15th International Symposium on Relations between Homogeneous and Heterogeneous Catalysis, Berlin (Germany), September 2011 (Keynote lecture).

M. TADA, "Preparation and Catalysis of Oxide-Supported Metal Complexes," 3rd Asian Conference on Coordination Chemistry, New Delhi (India), October 2011.

唯美津木, 「In-situ 時間・空間分解XAFSによる触媒構造解析」 第7回日本表面化学会放射光表面科学部会・SPring-8利用者懇談会顕微ナノ材料科学研究会合同シンポジウム, 大阪, 2011年11月.

M. TADA, “Advanced Design of Heterogeneous Catalyst Surfaces,” Germany-Japan Round Table— From the early universe to the evolution of life —, Heidelberg (Germany), December 2011.

B-6) 受賞, 表彰

M. TADA, 3rd International Workshop on Oxide Surface Best Poster Award (2003).

M. TADA, 18th North American Catalysis Society Meeting Kokes Travel Award (2003).

唯美津木, 日本化学会学生講演賞 (2004).

M. TADA, 5th World Congress on Oxidation Catalysis Best Oral Presentation Award (2005).

唯美津木, 井上研究奨励賞 (2007).

M. TADA, PCCP Prize (2007).

唯美津木, 日本化学会優秀講演賞 (2007).

唯美津木, 東京大学グローバルCOE 若手海外レクチャーシップ賞 (2008).

唯美津木, 日本化学会進歩賞 (2008).

唯美津木, 東海化学工業会賞技術賞 (2008).

唯美津木, 日本放射光学会奨励賞 (2009).

唯美津木, 井上リサーチアワード (2009).

唯美津木, 化学技術戦略推進機構萌芽技術奨励 (2009).

唯美津木, 守田科学研究奨励賞 (2009).

S. MURATSUGU, 2nd Asian Conference on Coordination Chemistry *Dalton Transactions* Poster Prize (2009).

邨次 智, 井上研究奨励賞 (2009).

邨次 智, 日本化学会優秀講演賞(学術)(2010).

唯美津木, 触媒学会若手優秀講演賞 (2010).

S. MURATSUGU, The Royal Society of Chemistry Poster Prize (2010).

唯美津木, 文部科学大臣表彰若手科学者賞 (2010).

石黒 志, 第14回XAFS 討論会学生講演賞 (2011).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

触媒学会関東地区幹事 (2005).

触媒学会代議員 (2006).

触媒学会若手会代表幹事 (2006).

触媒学会有機金属研究会世話人 (2007-).

触媒学会表面化学と触媒設計の融合研究会世話人 (2009-).

触媒学会西日本地区幹事 (2010-2011).

触媒学会代議員 (2011).

日本放射光学会幹事 (2011-2013).

日本放射光学会放射光サイエンス将来計画特別委員会委員 (2010-2011).

学会の組織委員等

- International COE Symposium for Young Scientists on Frontiers of Molecular Science 組織委員会委員 (2006).
- 第22回日本放射光学会年会実行委員会委員 (2007–2008).
- 第89回日本化学会春季年会特別企画企画担当 (2008–2009).
- International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science, Program Committee Member (2009–2010).
- ナノ学会第8回大会実行委員会委員 (2009–2010).
- International Symposium on Surface Science—Focusing on Nano-, Green, and Biotechnologies— (ISSS-6), Program Committee Member (2010–2011).
- 第14回XAFS 討論会実行委員会委員 (2011).
- International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference 2012 Program Committee Member (2011–2012).

学会誌編集委員

- Catalysis Letters*, Editorial Board Member (2010–).
- Topics in Catalysis*, Editorial Board Member (2010–).
- Catalysis Science & Technology*, Editorial Board Member (2010–).
- Journal of Molecular and Engineering Materials*, Editorial Board Member (2011–).
- Journal of Molecular and Engineering Materials*, Associate Editor (2011–).

B-10) 競争的資金

- 科研費特別研究員奨励費, 「表面モレキュラーインプリンティング法による不斉金属錯体触媒の構築と不斉触媒作用」唯美津木 (2003年–2004年).
- 科研費若手研究(B), 「モレキュラーインプリンティングマンガン錯体触媒の表面設計と不斉光酸化反応の制御」唯美津木 (2005年–2006年).
- 科研費特定領域研究「配位空間の化学」(公募研究)「固定化金属錯体の不斉自己組織化を利用した多機能不斉触媒空間の構築と触媒反応制御」唯美津木 (2006年–2007年).
- 科研費特定領域研究「協奏機能触媒」(計画研究)「表面を媒体とする選択酸化触媒機能の創出と高度反応制御に関する研究」唯美津木 (2006年–2009年).
- 科研費若手研究(A), 「ベンゼン及び炭化水素類の高選択酸化反応を実現する担持レニウムクラスター触媒の開発」唯美津木 (2008年–2011年).
- 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業研究シーズ探索プログラム(物質・機能探索分野)「酵素インスパイアード触媒表面の創製によるテイルメイド触媒反応空間の設計と選択触媒反応制御」唯美津木 (2010年).
- 科研費新学術領域研究「配位プログラム」(公募研究)「テンプレート電気化学法を駆使した合金ナノ粒子超構造体触媒表面の創製」邨次 智 (2010年–2011年).
- 科研費新学術領域研究「分子活性化」(計画研究)「固体表面での高反応性活性構造の創出と触媒的高効率物質変換」唯美津木 (2010年–2014年).
- NEDO 固体高分子形燃料電池実用化推進技術開発「基盤技術開発」MEA 材料の構造・反応物質移動解析, 「時空間分解 X線吸収微細構造(XAFS)等による触媒構造反応解析」唯美津木 (2010年–2012年).

先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)「低炭素社会基盤構築に資するイノベティブ物質変換」唯美津木(2011年-2014年).

C) 研究活動の課題と展望

必要な物質を限られた資源から効率良く合成するための新しい固体触媒表面の分子レベル設計のために、金属錯体の酸化物表面固定化、表面空間修飾、表面分子インプリンティング等の独自に考案した触媒表面の設計法を用いて、固体表面上に電子的、立体的に制御された新しい金属錯体触媒活性構造とその上の選択的反応空間を同時構築する触媒表面の設計を目指している。同時に、調製した固定化金属錯体触媒の構造を固体NMRやXAFSなどの手法によって明らかにすることで、表面の触媒活性構造とその触媒作用の相関を分子レベルで解明したい。

また、硬X線放射光を用いたin-situ時間分解XAFS、X線マイクロビームを用いたin-situ空間分解顕微XAFS法の開発に取り組んでおり、触媒反応が効率良く進行するその場(in-situ)で実高活性触媒の働き(時間情報)や空間的な情報を計測することにより、新規触媒機構の提案や固体触媒に内在する新現象の解明を行いたい。