

## 共同研究の中で学んだこと

関西大学大学院 理工学研究科  
博士課程後期課程 1年  
永田 達己

### 1. はじめに

私は2019年3月に関西大学大学院理工学研究科化学生命工学専攻の博士課程前期課程を修了し、4月から後期課程に進学しました。学士から現在に至るまで、液相還元法で合成した金属ナノ粒子を触媒として用いた有機合成を研究しています。触媒有機化学研究室に所属し、共同研究でのご縁から本稿を執筆する機会を頂きましたので、これまでの研究の紹介、他分野交流について感じたことを書かせていただきます。

### 2. これまでの研究

まず私は冒頭にもありますように、有機合成化学を専攻し研究者生活をスタートしました。そのため、NMR(核磁気共鳴)やIR(赤外分光)での解析が主となり、材料科学では当たり前のXRD(X線回折)、SEM(走査電子顕微鏡)、XPS(X線光電子分光)などの分析機器の知識はほとんどありませんでした。研究室配属では、ナノ粒子の特異な性質と触媒反応に興味をもちました。我々の研究室では大きく分類すると固体触媒、ナノ粒子触媒、均一系触媒を用いるグループに分かれ新規触媒反応を探索しております。そのため金属の知識も錯体化学、有機金属化学(金属-炭素結合を有する化合物を研究する分野)から勉強しました。

材料科学の視点からの金属に関する知識の必要性を強く感じたのは修士1年生の時です。私が入り組んだナノ粒子触媒が固体触媒とも錯体触媒とも異なる独特の活性を示したとき、それまでの有機化学的知見からは説明が難しくなりました。所属研究室では金属前駆体溶液を*N,N*-ジメチルホルムアミド(以降DMF)中で加熱還元する(液相還元法)と、保護剤を添加せずとも金属ナノ粒子が合成できること、この方法によって合成した金属ナノ粒子(Pd, Ir, Cu, Fe, Au)が溶液中で行うクロスカップリング反応などに高い触媒活性を示すことを報告していました<sup>(1)-(5)</sup>。私は新たにルテニウムナノ粒子を合成し、ゲルベ反応( $\beta$ -分岐アルコール生成反応の一種

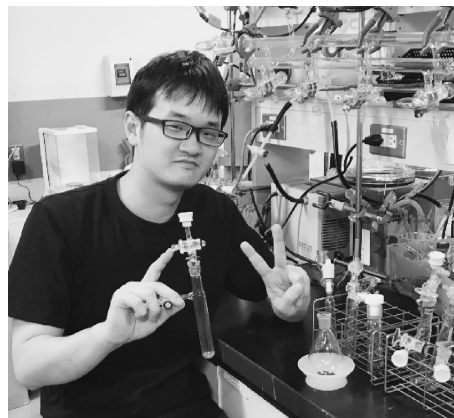


図1 著者と主に使用する実験機器。

であり、触媒存在下で二分子の原料アルコールが脱水反応を伴い反応が進行する。)を試しました。この反応には従来の固体触媒では高温高圧条件による副生成物の制御が困難であり、錯体反応系では高価な金属と反応制御剤が必須という課題が残されています。新たに合成したルテニウムナノ粒子触媒で実験を行うと選択性、反応条件、触媒金属価格のすべての課題を解決し、かつ触媒量はごく少量で目的の反応が進行することがわかりました。反応後のガスクロマトグラフのチャートを見たとき相当舞い上がっていたのを今でも覚えています。高い触媒活性、特に選択性を説明するため触媒の詳細なキャラクタリゼーションに取り掛かりました。有機化学では反応の収率さえ高ければよいという時代もありましたが、昨今では触媒の詳細な分析がなければ論文としては評価されません。XPSによるルテニウムの電子状態の評価は我々の主張や想定反応機構をより盤石なものとするため必須となります。ところが液相法でナノ粒子を合成しますと、実験操作としては非常に簡単ですが分析の際には逆に溶媒が問題となります。特に用いた溶媒の沸点が高く、適切なデータを得るためかなり試行錯誤しました。試料調製のノウハウもなく依頼測定をしても解釈に悩まされ、研究が行き詰まっていました。その時、本学で現在水素貯蔵材料を研究されており、当研究室と共同研究を行っている近藤亮太准教授に材料・表面分析に必要な知識、サンプル調製、測定と解析について相談に乗っていただき難しかった測定をやり遂げることができました。バルクの金属を取り扱うサンプル調製は有機化学者からすると、気を付けなければいけない点、器具がかなり違うので新鮮で楽しいものでした。XPS測定するとナノ粒子の最表面ルテニウムは原料から還元された状態にあることが判明しました。この結果と他の実験と組み合わせ反応機構を詳細に提案でき、研究が大きく前進しました(図1)。

先生とのお話の中で印象に残っているのは「自分の頭で測定原理、装置の構成をよく理解し、試料調製に必要なことをよく考えること」です。問題を明確にして、解決するプロセスを専門分野から離れて他分野との間で経験できたことは今後の研究者人生を豊かにしてくれると感謝しております。共同研究でディスカッションする中で、改めて自身のそれまで

測定してきたデータを他分野の人に説明し、解釈、情報の伝え方を考えなおす場面も多々ありました。一般的な説明の必要性を感じた一方、異分野交流は過去の経験からくる先入観もなく、疑問や興味深い点をやり取りできる機会であり、新しいアイデアや工夫が生まれやすいと感じたため、今後も積極的に他分野との交流をしたいと考えております。

### 3. 研究生活を振り返って

ナノ材料の面白さとその利用法を探索していくテーマに惹かれ現在の研究室を選択しました。振り返ってみると研究開始半年に満たないうちから、ずいぶん生意気に先輩や先生に意見し、「聞くは一時の恥、聞かぬは一生の恥」と恥ずかしげもなく分からないことは聞き、時には叱られ学べたことが現在の自分を作っていると思います。この研究テーマは必要な測定が非常に多く、設備面や知識等を考えると自分の努力だけではどうにもならない部分がありました。これほどまでに自由にアイデアを試させてもらえ、意見もいただける現在の環境というのは大変貴重に感じます。

博士課程の抱負として、金属触媒も反応も自分オリジナルのものを見つけない熱意があります。物理化学や材料科学の

知識もまだまだ足りないと感じますが、自分のアイデアを認めてもらうための工夫・努力を惜しまないことを忘れずに、研究者として思いを達成できればと考えております。最後にこの場をお借りしまして普段研究をご指導いただいております関西大学大洞康嗣教授、研究の遂行に普段から大変お世話になっており今回の寄稿を薦めていただきました近藤亮太准教授、共同研究にかかわる皆様に深く御礼申し上げます。

### 文 献

- (1) M. Hyotanishi, Y. Isomura, H. Yamamoto, H. Kawasaki and Y. Obora: *Chem. Commun.*, **47**(2011), 5750–5752.
- (2) K. Oikawa, S. Itoh, H. Yano, H. Kawasaki and Y. Obora: *Chem. Commun.*, **53**(2017), 1080–1083.
- (3) Y. Isomura, T. Narushima, H. Kawasaki, T. Yonezawa and Y. Obora: *Chem. Commun.*, **48**(2012), 3784–3786.
- (4) R. Azuma, S. Nakamichi, J. Kimura, H. Yano, H. Kawasaki, T. Suzuki, R. Kondo, Y. Kanda, K. I. Shimizu, K. Kato and Y. Obora: *Chem. Cat. Chem.*, **10**(2018), 2378–2382.
- (5) H. Yamamoto, H. Yano, H. Kouchi, Y. Obora, R. Arakawa and H. Kawasaki: *Nanoscale*, **4**(2012), 4148–4154.

(2019年5月14日受理) [doi:10.2320/materia.58.402]  
(連絡先: 〒564-8680 吹田市山手町 3-3-35)