Chemical and Photochemical Water Oxidation by [RuCl ($NC^{NHC}O$)(DMSO)(py)] Type Complexes

ملخص البحث :

يُعد دمج الليجاندات سالبة الشحنة في المتراكبات استراتيجية واعدة لتطوير مُحفّزات لأكسدة الماء ذات ثبات عالي و جهد أكسدة منخفض. في هذا السياق، يُقدم هذا البحث تخليق ليجاند جديد من نوع الكماشة (pincer ligand) قائما علي *1-(pyridin-2-ylmethyl)-3-methylcarboxylate-imidazolium*، ليتم بعدها دراسة تأثير الاستبدالات في العمود الفقري ل ليجاند الإيميدازوليدين والليجاندات الأحادية الرأسية على تفاعل واستقرار متراكبات الروثينيوم لتلك الليجاندات كعوامل حفزية في أكسدة الماء. أثبتت المتراكبات الأربعة المُحضرة فاعليتها كعوامل حفز في أكسدة الماء كهربيا، كيميائيًا، وكيميائيًا-ضوئيًا في ظل الظروف الحامضية.وقد وُجد أن المتراكبات التي تضم مانحًا أقوى للإلكترونات لها جهد أكسدة أقل وعمر أطول. في ظل الظروف الحمضية، نتج عن أكسدة الماء الكيميائي باستخدام ثنائي أمونيوم نترات السيريوم كعامل مؤكسد محاكي لأكسدة الماء كهربيا أرقام دوران (turnover number) تتراوح من 2322 إلى 1728 للمتراكبات المُستخدمه. في عملية أكسدة الماء المستحثة بالضوء والتي تَستخدم نظام ثلاثي المكونات (العامل الحفاز، الصبغة، مستقبل الإلكترونات) تم تحقيق رقم دوران (turnover number) قدره 136 باستخدام المتراكب **2**، والذي أظهر قدرة تحفيزية تفوق العديد من المحفزات المماثلة. أظهر هذا البحث أن استخدام ليجاندات الكاربين الحرة (NHCs) بالإضافة إلى البيريدينات المستبدلة، يمكن أن تكون وسيلة مناسبة جدا للتحكم في فاعلية واستقرار محفزات أكسدة الماء. وبالتالي يمكن أن يؤدي التنسيق العقلاني بين هذين الشقين إلى تحضير محفزات أكسدة الماء ذات فعالية ملحوظة وثباتية عالية.

Published in: ***ChemCatChem*** **(2017), 9 (13), 2565-2573.**