

グラフェンオキサイドモデルと吸着の検討

東大院新領域 佐々木岳彦

〈序〉グラフェンオキサイド (GO) は広表面積、親水性、酸性、修飾が容易であるなどの性質を有するため、触媒担体として広く利用されている。当研究室でもアミノプロピル基で修飾して、二酸化炭素とスチレンオキサイドからのカーボネート生成反応の触媒に利用したり[1],イオン液体を固定化し、更に金属塩を導入して触媒として利用する[2]などの研究を行っている。GO を利用した触媒に関しての反応機構を解明する上では GO そのものの構造モデルを求める必要がある。本研究では GRRM により GO の推定構造を求め、AFIR により吸着特性について検討を行った。

〈方法〉GRRM17[3]と Gaussian09 を使用した。計算レベルとしては、HF/STO-3G を用いた MIN 及び IADDF 計算を行い、求められた最安定構造について B3LYP/6-31G により構造最適化を行った。吸着特性については AFIR 計算 (GAMMA=200) により行った。

〈結果と考察〉 グラフェンシートのモデルとしては、 $C_{54}H_{20}$ を用いた。GO に関しては、カルボキシル基、水酸基、エポキシ基の導入が一般に想定されている。エポキシ基を導入することで、その位置に平面構造から凸状の変位が導入されることがわかった。カルボキシル基、水酸基、エポキシ基を 3 個導入して MIN 計算を行った後、IADDF 計算を実施したところ、カルボキシル基と水酸基の回転異性体が求まり、エポキシ基については移動が見られなかった。図 1 に求められた構造モデルを示す。エポキシ基およびカルボキシル基により歪みが誘起されていることがわかる。この得られた GO モデルに関して水分子の吸着現象を MC-AFIR 計算により検討した。エポキシ基に隣接して水分子が吸着する状態と物理吸着状態に対応した状態が求められ、GO の

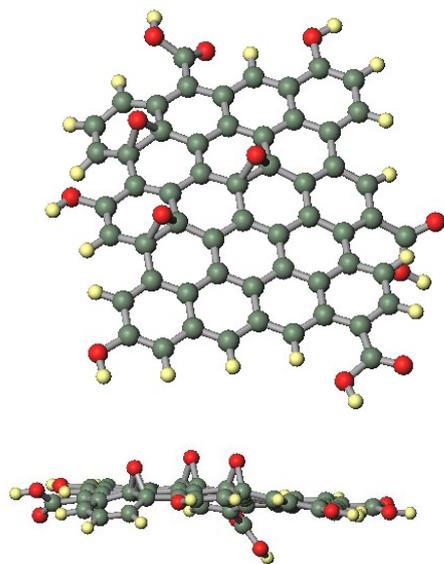


図 1 GO モデル分子の構造 (Top and side view) 親水的な性質と対応づけられる。

References

- [1] Vitthal B. Saptal, Takehiko Sasaki, Kei Harada, Daisuke Nishio-Hamane, Bhalchandra M. Bhanage, *ChemSusChem*, 9(2016), 644-650.
- [2] V.K. Gaikwad, V.B. Saptal, K. Harada, T. Sasaki, D. Nishio-Hamane, and B.M. Bhanage, *ChemNanoMat*, in press.
- [3] S. Maeda et al., *J. Comput. Chem.* 2018, 39, 233.