

# 反応経路自動探索法を用いたクラスター触媒の理論研究

(北大院理) 岩佐 豪

tiwasa@sci.hokudai.ac.jp

数十個程度の原子から構成されるクラスターは、バルクとは異なり、元素・サイズ・電荷に構造や電子状態が強く依存するノンスケーラブルな物理化学的および触媒的性質を持つことが知られており、光電子デバイス、センサーおよび触媒の新材料として期待されている。例えば化学的に安定な金を、ナノ粒子やクラスターにすることで、CO 酸化反応などの触媒活性を示すようになる。触媒活性を含む様々な物性が、原子数に強く依存することから、原子数を適切に選択することで望みの性能を持つ触媒を創成できる可能性があり、材料開発の面からも期待されている。このようなクラスターに基づく革新的な材料の理解と設計に対して理論的アプローチは必要不可欠である。

クラスターの理論研究では、まず与えられた組成における最安定構造を探索し、その後、最安定構造が示す物理・化学的性質を解明していくのが従来の方法である。安定構造の探索のために、大域的構造探索法（例えば basin-hopping (BH) 法や遺伝的アルゴリズムなど）が開発され、様々な原子クラスターの構造探索に利用されてきた。しかし、これらの手法は、化学反応の研究には適さない。また、クラスターは通常の分子に比べると柔軟に形状変化しうる多自由度の系であり、遷移状態の特定、すなわち反応経路探索はかなりの困難であった。しかし、反応経路自動探索法 (GRRM) の開発によって、その状況は変わりつつある。クラスター触媒における低エネルギー領域の異性体構造とその異性化経路の探索が非常に効率的に行えるようになり、系統的な議論が可能になってきた。GRRM を用いた最近の理論的研究からは、必ずしも最安定な構造のクラスターが最も高い触媒活性を持つとは限らず、準安定な異性体が低い活性障壁を持つ場合があることも分かってきた [1]。

本研究では、GRRM に実装されている人工力誘起反応 (AFIR) 法を用いたクラスター触媒の研究として、自動車排ガス浄化触媒における貴金属代替を指向した汎用元素クラスターの触媒活性に関する成果を報告する。具体的には  $\text{Cu}_{13}$  クラスター[2]および  $\text{Au} \cdot \text{Ag} \cdot \text{Cu}$  の 4 量体クラスター[3]を触媒とした、NO 吸着・解離反応を調べた結果を報告する。また、最近の取り組みとして、配位子修飾された金クラスターの触媒機構に関して現在研究を進めているので、その現状についても紹介したい。

- [1] M. Gao, A. Lyalin, M. Takagi, S. Maeda, T. Taketsugu, *J. Phys. Chem. C* **119**, 11120 (2015).  
[2] T. Iwasa, T. Sato, M. Takagi, M. Gao, A. Lyalin, M. Kobayashi, K. Shimizu, S. Maeda, T. Taketsugu, *J. Phys. Chem. A*, **123**, 210-217 (2019). [3] Y. Kondo, R. Takahara, H. Mohri, M. Takagi, S. Maeda, T. Iwasa, T. Taketsugu, *J. Comput. Chem. Jpn.*, **18**, 64-69 (2019).