

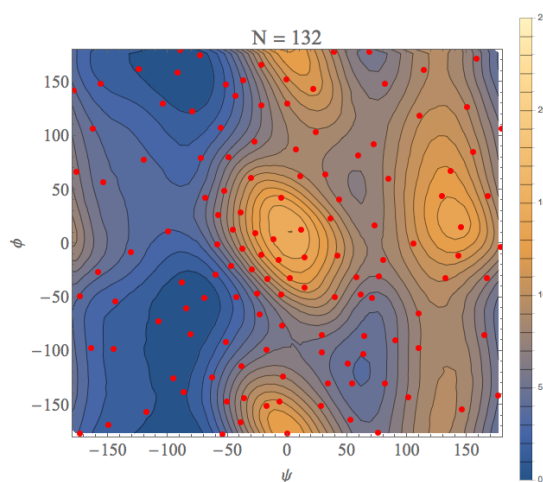
理論計算による構造探索及び機能触媒探索のとりくみ

Theoretical approach of structural search and new catalyst development

奥村光隆（大阪大学大学院理学研究科化学専攻）

分子構造変化や触媒反応などの反応機構を理論的に検討することは、近年大変重要な研究課題となってきた。

分子構造変化の自由エネルギー表面を探索する研究として自動アンブレラサンプリング法を用いた分子動力学シミュレーションを用いてアラニンジペプチドおよびアラニントリペプチドの構造探索の結果を報告する。この研究では、バイアスポテンシャルを高次元空間において自動的にバイアスポテンシャルが重なり合うようにサンプリングする方法を開発し、構造探索を自動化することに成功した。図1にアラニンジペプチドの二つの二面角を元にしたポテンシャル平面を示した。この図から、ポテンシャルの変化が少ないところではサンプリング点が疎になり、ポテンシャルが急に変化する点ではサンプリング点が密になっていることが解るとともに、安定点と遷移状態を探索することに成功していることが示された。[1]



次に、触媒機構探索としては、自動車排ガス浄化に向けた新規脱硝触媒開発として NiO/Cu コシェル構造の提案を行った計算結果を報告する。現在、自動車の次世代パワーユニット (PU) としては、モーターが最も有望な PU であるが、全世界規模で考えると、純粋なガソリンエンジン車や、ハイブリッド車の需要は依然高いことから、内燃機関が PU として今後も利用されることは明らかであり、さらに排ガスを浄化するとともに利用する貴金属を減少または、卑金属に代替していくことは非常に重要な研究課題である。そこで、我々は、金属の表面に酸化物薄膜を積層した構造での脱硝触媒反応活性の検討を行った。その結果、薄膜が十分に薄いときには、酸化物表面での NO 分解反応が容易に進行することが理論計算から明らかとなった。この結果は、卑金属である Cu の酸化と凝集による触媒劣化を防ぎつつ、酸化物上での NO 分解活性の発現が可能となる非常に興味深い結果を示せた。この活性発現は主に、酸化物と金属の接合界面形成によることが重要な因子であることも結果の解析から明らかとなった。

[1] Y. Mitsuta, S. Yamanaka, T. Kawakami, M. Okumura, *J. Comp. Chem.*, 39, 1913(2018).

[2] H. Koga, K. Tada, A. Hayashi, Y. Ato, M. Okumura, *Catal. Lett.*, 147, 1827 (2017).