

電子やイオン等の能動的制御と反応  
2020年度採択研究代表者

2022年度  
年次報告書

中田 彩子

物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクニクス研究拠点  
主幹研究員

担体の電子状態制御による金属ナノ粒子触媒活性化の機構解明と設計

## 研究成果の概要

本課題では、研究者らが開発している大規模第一原理計算を用いて、金属ナノ粒子触媒と担体との接続界面における構造や電子状態を詳細に解析する。担体がナノ粒子に与える影響を解析し、特に担体に欠陥を導入した際に、担体の構造や電子状態が変化することで金属ナノ粒子触媒の活性にどのような影響を与えるか、そのメカニズムの解明を目指す。

2022年度では、前年度までに得られた孤立ナノ粒子および担持ナノ粒子触媒の安定構造における電子状態の詳細な解析に取り組んだ。大規模系において特異な電子状態の変化を示す原子を目の目で見つけ出すのは困難であり、これまではドメイン知識に基づき見当をつけて解析していた。そこで2022年度では、機械学習手法を用いて、大規模系の中から特異な電子状態を示す原子を客観的に効率よく判別することを試みた。

孤立ナノ粒子における各原子の電子状態を主成分分析(PCA)により解析した結果、ナノ粒子化による電子状態の変化は主に表面、表面第2層までであり、それより内側はバルクの状態に収束していることが示された。この傾向は、粒子サイズに依らない一般的な傾向であることも確認された。PCAによりサイト依存性も明確に解析することができた。

担持ナノ粒子についても解析を行った。PCAによって担持によって電子状態が大きく変化した原子が明示され、それらは接続界面の原子であることが確認された。一方で、接続界面からやや離れているものの、孤立系からは電子状態が変化した頂点原子があることも判明した。

担体の欠陥についても、機械学習力場を用いた安定構造探索を開始した。

また、同さきがけ領域内の共同研究として、金属酸化物クラスターで修飾した金ナノ粒子触媒に関する理論計算を行った。様々なクラスターの配向についてDFT計算を行い、金ナノ粒子と相互作用するサイトを検証した。

### 【代表的な原著論文情報】

- 1) “Large-scale DFT methods for calculations of materials with complex structures”, J. Phys. Soc. Jpn., 91, 091011 (2022).
- 2) “Supported Anionic Gold Nanoparticle Catalysts Modified Using Highly Negatively Charged Multivacant Polyoxometalates”, Angew. Chem. Int. Ed., 61, e202205873 (2022).