



量子化学理論と計算機シミュレーションによるC₆₀ポリマーナノ細孔内の二酸化炭素固定化に関する反応機構解明

基礎工学研究科 物質創成専攻

准教授 北河 康隆

Researchmap <https://researchmap.jp/read0068726>

研究の概要

フラーレンC₆₀薄膜に電子線照射をすることでナノ細孔を有する1次元凹凸C₆₀ポリマーが生じます。このポリマー内でおこる、CO₂とH₂Oから炭酸イオンが生じる反応のメカニズムを量子化学理論に基づいた計算機シミュレーション（量子化学計算）により推定しました。その結果、まずCO₂がC₆₀ポリマーをブリッジする形でピン留めされ、構造歪みによるLUMOエネルギーの安定化とC₆₀ポリマー鎖表面の電荷分極の増大により活性化します。そこにH₂Oが接近することで遷移状態が安定化し反応が進行している可能性を示すことに成功しました。

研究の背景と結果

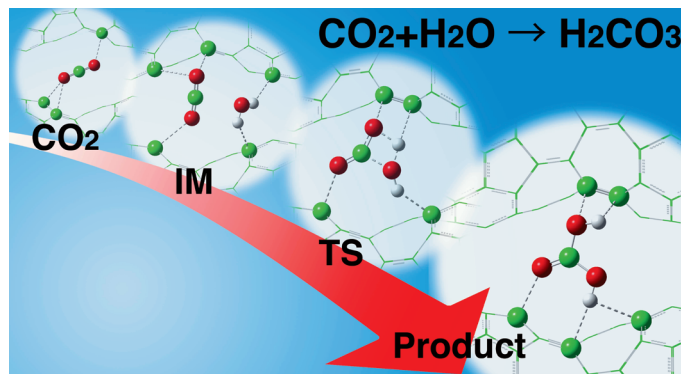
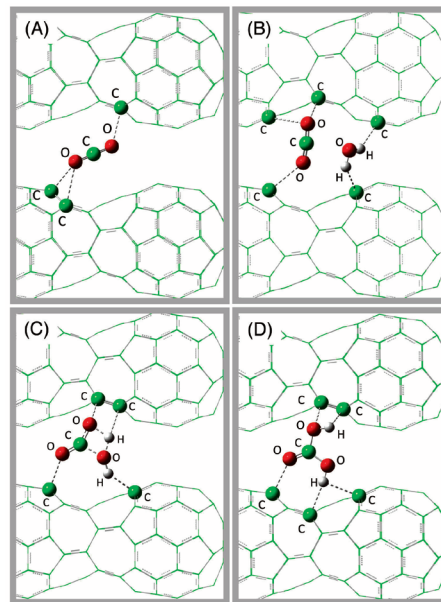
CO₂の固定化と再利用はSDGsの達成のために大変重要な課題です。しかし、安定なCO₂を効率よく化学反応させ利用する手段は、未だ確立していません。その解決の1つとして、ナノメートルサイズの空間（ナノ細孔）を有するゼオライトや金属有機骨格体などのナノ多孔質（ナノポーラス）材料の利用が挙げられます。ナノ細孔は、分子やイオンの貯蔵・交換・分離に利用できるのみならず、その狭小な空間に起因する特殊な反応場を提供することが知られており、現在では触媒・エネルギー貯蔵や医療・電子材料など広く応用されています。共同研究者の尾上順教授（名古屋大学）はこれまで、フラーレンC₆₀薄膜に電子線照射をすることで1 nm未満のナノ細孔を有する1次元凹凸C₆₀ポリマーが生成することを明らかにしました。さらに、このナノ細孔内でCO₂とH₂Oが反応し、炭酸イオンが生成することが実験により示されました。

私たちは、量子化学理論に基づいた計算機シミュレーション（量子化学計算）を実行することにより、この反応機構を明らかにすることを試みました。図に示したように1次元凹凸C₆₀ポリマー薄膜のモデル構造を構築し、ナノ空間内でのCO₂とH₂Oの挙動を調べたところ、C₆₀ポリマーをブリッジする形でピン留めされたCO₂が（図A）、構造歪みによるLUMOエネルギーの安定化と、ポリマー鎖表面の電荷分極の増大により活性化することがわかりました。そこにH₂Oが接近する（図B）ことで遷移状態が安定化され（図C）、結果として容易に反応が進行している（図D）可能性を示すことに成功しました。

このように、量子化学計算は実験では説明が難しい触媒反応機構を解明することができるのみならず、そこから得られた知見により、化合物の改良やひいては新たな触媒などのデザインを行うことができるため、SDGsの達成に向けた研究をさらに加速させることを可能とします。

研究の意義と将来展望

量子化学計算は、実験では説明が難しい触媒反応機構を解明することができるのみならず、そこから得られた知見により、化合物の改良や、ひいては新たな触媒などのデザインを可能とします。したがってSDGsの達成に向けた研究を今後さらに加速させることが可能となります。このように量子化学理論とそれに基づくコンピュータシミュレーションは、種々の化学現象の原理解明のための強力なツールであるのみならず、新規機能性材料開発においても、極めて有効なアプローチ法です。



特許

論文

参考URL

キーワード

Nakaya, Masato; Kitagawa, Yasutaka; Onoe, Jun et al. Immobilization of CO₂ at Room Temperature Using the Specific Sub-NM Space of 1D Uneven-Structured C₆₀ Polymer Film. Advanced Sustainable Systems. 2021; 5(1): 2000156. doi: 10.1002/adsu.202000156https://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2020/20201027_1<https://news.mynavi.jp/article/20201029-1444179/><https://research-er.jp/articles/view/93424>量子化学理論、計算機シミュレーション、触媒反応機構、CO₂固定