

平成23年度北海道大学情報基盤センター共同研究成果報告書

1. 研究領域番号 A 1 大規模計算機シミュレーション
2. 研究課題名 酸素発生触媒の第一原理シミュレーション
3. 研究期間 平成23年4月27日 ～ 平成24年3月31日
4. 研究代表者

氏 名	所属機関・部局名	職 名	備 考
中山 哲	北海道大学・大学院理学研究院	助教	

5. 研究分担者

氏 名	所属機関・部局名	職 名	備 考
片山 建二	中央大学・理工学部応用化学科	准教授	
大宮 学	北海道大学・情報基盤センター	教授	

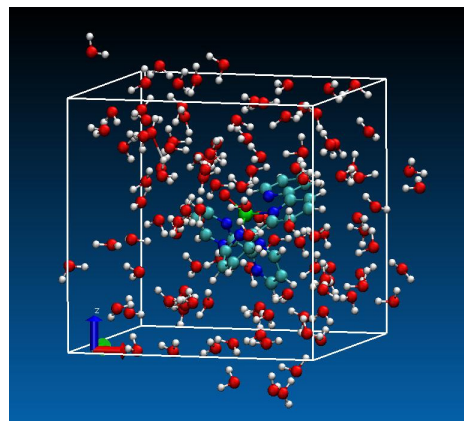
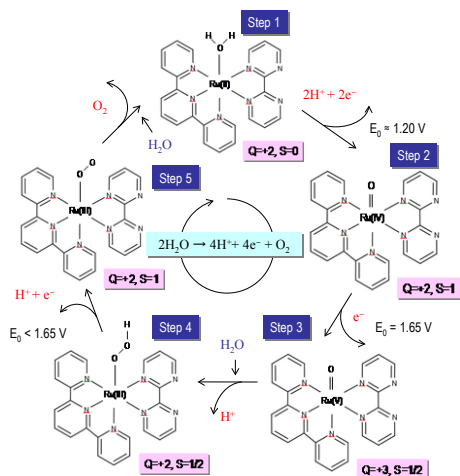
6. 共同研究の成果

水を酸素と水素に分解する高効率な触媒の開発は、社会の持続的発展に不可欠なクリーンエネルギー生成のための重要な課題である。特に水の酸化は4電子4プロトン移動を伴う複雑な化学プロセスであり、高効率に反応を進行させる革新的触媒の開発に注目が集まっている。酸素発生触媒では、溶媒である水分子との電子・プロトンの授受により反応が進行するため、水分子も触媒分子と同様に電子状態計算により取り扱うことで、現実的かつ定量的な議論が可能となる。また、触媒反応は常温で起こる複雑な化学プロセスであるため、ポテンシャル曲面の極小点や遷移状態を探索する従来の孤立分子を対象とした取り扱いでは本質的な理解は難しく、自由エネルギー曲面による議論が適切である。

本研究では、金属錯体を用いる水分解・酸素発生触媒の Car-Parrinello 法による第一原理分子動力学シミュレーションを行い、酸素発生機構を微視的観点から解明し、さらに新規触媒の合理的設計への指針を与えることを目標とした。具体的には、実験報告例のあるルテニウム単核錯体 $[\text{Ru}(\text{tpy})(\text{bpm})(\text{H}_2\text{O})]^{2+}$ による水からの酸素発生機構を取り上げ、反応に関与する水も露に電子状態計算に取り込んだ反応シミュレーションを行った。この錯体に対して、実験的に提唱されている反応機構の各ステップに対し自由エネルギー計算を行い、それぞれの機構について比較を行い、実際に起こりうる反応機構を分子論的観点から理解した。その際、活性サイト周辺の水分子の配位数等、柔軟かつ多次元の変数にも拡張可能な Metadynamics 法を適用して自由エネルギー計算を行い、様々な集団変数を用いることで多様な観点から解析を行った。

(研究成果のつづき)

本研究で使用した CPMD プログラムパッケージは並列計算に適しており、主に 1 台の論理ノードを使用し、SMT 機能を有効にした 64 論理コアで計算を行った。本研究で計算対象とした系では並列効率は非常に高かった。研究室で所有する PC Workstation には Infiniband (SDR)が実装されているが、それよりも遥かに高い効率であり、本共同研究により大きな成果を上げることができた



$[\text{Ru}(\text{tpy})(\text{bpm})(\text{H}_2\text{O})]^{2+} + 114 \text{ H}_2\text{O}$
1070 electrons / 393 atoms