

令和 5 年 5 月 18 日現在

機関番号：82648

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02718

研究課題名(和文) 先進的量子状態理論に基づく不均一系触媒および光機能システム系の研究開発

研究課題名(英文) Advanced Electronic Structure Theory Study on Heterogeneous Catalysts and Photofunctional Systems

研究代表者

江原 正博 (Ehara, Masahiro)

大学共同利用機関法人自然科学研究機構(岡崎共通研究施設)・計算科学研究センター・教授

研究者番号：80260149

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、複雑・複合系の電子状態を精密に記述し、設計できる基礎理論の開発を行い、量子状態が重要となる不均一系触媒の触媒作用や光機能システム系の物性発現の微視的メカニズムを解明し、その知見に基づいて新規な触媒や材料の設計・制御に取り組んだ。具体的には、(1)合金微粒子の構造と触媒作用(凝縮相および固体表面)、(2)担持金属微粒子触媒および銅ゼオライト触媒の触媒作用、(3)分子-金属ナノ粒子系の合理的理論設計法の開発と応用、(4)修飾単層カーボンナノチューブの近赤外発光特性の理論解析・設計である。本研究課題では、複雑・複合系の設計理論の発展と実在系の有用な化学事象への応用を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題で取り組んだ不均一系触媒は、社会や産業界において広く利用されている。研究対象としては、化学品合成触媒、自動車排ガス浄化触媒、燃料電池など重要な触媒の基礎研究を実施し、高性能な触媒を開発する上で、重要な知見を得ることができた。修飾単層カーボンナノチューブの近赤外発光は、単一光子源のデバイスやバイオイメージングなどの先端技術への応用が期待されている。本研究課題で開発した量子逆設計理論は、「機能」に注目して分子系を最適化し、設計できることから、本研究で示した局在表面プラスモンの光物性の設計などで有用となる計算科学技術である。今後、様々な分野の学術研究に利用されることが期待できる。

研究成果の概要(英文)：In this research project, we have developed fundamental theories to precisely describe and to design the electronic states of complex and composite systems. We also have elucidated the mechanisms of catalytic reactions of heterogeneous catalysts and the physical properties of photofunctional systems where the quantum states play important roles; specifically, (1) structure and catalytic activity of alloy particles (condensed phase and solid surface), (2) catalytic activity of supported metal particle catalysts and copper zeolite catalysts, (3) developments and applications of rational theoretical design methods for molecule-metal nanoparticle systems, and (4) theoretical analysis and design of near-infrared luminescence properties of modified single-walled carbon nanotubes. We have achieved the development of design theories for complex and composite systems and their applications to useful chemical phenomena in real systems.

研究分野：理論化学

キーワード：量子逆設計理論 不均一系触媒 合金微粒子 担持微粒子触媒 燃料電池 光機能システム カーボンナノチューブ 近赤外発光

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

近年の不均一系触媒や光機能性材料の研究開発では、複雑な量子状態に基づく化学変換や物性制御が行われている。研究開発では量子システム系の複雑な電子状態を理論的に正しく理解することが必要であり、その要請に対応できる信頼性とスループットに優れた理論を開発し、適用することが求められる。複雑系の基礎理論の開発が進展しているが、信頼性や有用性の観点からは不十分であり、大規模系や表面を高精度に記述し、理論設計が可能な「複雑系の理論」が必要とされていた。

2. 研究の目的

本研究課題では、担体表面・凝縮相高分子マトリックスや分子-表面系などにおける強相関電子状態を研究する基礎理論の開発を行い、複雑・複合系である不均一系触媒や光機能システム系の微視的メカニズムを明らかにすることを目的とした。さらに得られた知見に基づいて新しい触媒や光機能システム系を設計し、実験と連携して研究開発することを目的とした。具体的には、以下の研究課題について、これまで独自に開発してきた先進的基礎理論をさらに発展させ、さらに新規な設計理論を導入することによって研究を展開した。当該分野で研究を推進している実験・理論分野の研究者との国内外の共同研究を実施し、理論開発と応用研究を実施した。

- (1)合金微粒子の構造と触媒作用(凝縮相および固体表面)
- (2)担持金属微粒子触媒および銅ゼオライト触媒の触媒作用
- (3)分子-金属ナノ粒子系の合理的理論設計法の開発と応用
- (4)修飾単層カーボンナノチューブの近赤外発光特性の理論解析・設計

3. 研究の方法

(1)合金微粒子の構造と触媒作用(凝縮相および固体表面)

合金微粒子は、量子効果や合金効果によって、バルク固体とは全く異なる触媒活性を示す。例えば、高分子に担持された凝縮相合金微粒子や表面担持合金微粒子触媒は、低温で多様な触媒反応を示す。しかし、合金微粒子の幾何構造や電子状態、触媒活性点、触媒サイクル、熱力学的安定性に関する理論研究は、未だ解明されていない点が多い。本研究課題では、大規模系に適用できる電子状態理論に基づいて、凝縮相および表面担持合金微粒子触媒の触媒作用を総合的に解明することを目的とした。これらの理論解析に基づいて、実験との協力により、新たな凝縮相合金微粒子触媒系を開発することを目的とした。結合が強固な C-F 結合活性化を行う凝縮相合金微粒子触媒、ヒドロシリル化反応の担持微粒子触媒などを研究した。

(2)担持金属微粒子触媒および銅ゼオライト触媒の触媒作用

金属酸化物表面に担持された金属微粒子は剛健な不均一系触媒であるが、現在、理論設計は極めて困難である。これは主に触媒系が強相関電子系であり、反応活性点が複雑な構造を持つことによる。本研究課題では、大規模系の電子状態を精密に記述する電子状態理論を開発し、不均一系触媒の精密な理論解析・設計を行うことを目的とした。さらに実験と協力し、新規不均一系触媒の開発を実施する。具体的には、燃料電池で鍵となるグラフェンに担持した白金サブナノクラスターの構造および酸素還元反応、銅ゼオライト触媒による NO のアンモニア選択的還元反応(NH₃-SCR)などの理論解析を実施し、様々な担持金属微粒子触媒の研究を展開した。

(3)分子-金属ナノ粒子系の合理的理論設計法の開発と応用

光機能性分子と金属ナノ構造体間の励起子-プラズモン共鳴は、分子の光物性を大きく変化させ得ることが知られている。金属ナノ構造体の形状・大きさ・数・原子組成や分子系の種類、分子-金属ナノ構造体間の距離・相対配向は、制御可能であり、局在表面プラズモンを用いて光物性を操作する研究が展開している。しかし、設計の自由度が高いため、候補となる系の総数は容易に天文学的な数に及び、試行錯誤による効率的な材料の開発は困難である。最近我々は、光学物性の測定・計算の逆問題に基づく光機能性分子集合体の独自の合理的設計法を開発し、様々な分子と空間配置を含む 10²³ の莫大な候補群における効率的設計に成功した。本研究課題では、この方法を拡張し、分子励起子-局在表面プラズモン系の合理的設計法を確立し、新規な光学材料を設計することを目的とした。

(4)修飾単層カーボンナノチューブの近赤外発光特性の理論解析・設計

ナノ・バイオ系では、近赤外光を活用できる光機能分子の研究開発が進展している。単層カーボンナ

ノチューブ(SWNT)の化学修飾によって発光波長を近赤外領域で制御できることを実験と協力して示してきた。また、SWNTの化学修飾の位置選択性に関して、理論計算に基づいてClar構造の六員環が最大数になるように置換されるという傾向を見出した。本研究課題では、カイラル指数の異なるSWNTの化学修飾について、相対安定性やスピン密度、遷移エネルギーから検討することを目的とした。また、Clar構造の原理に基づいて、これらのSWNTについて近赤外領域の発光波長制御を試みた。

4. 研究成果

(1)合金微粒子の構造と触媒作用(凝縮相および固体表面)

①Pt-Pd合金触媒による強固なC-F結合の活性化

炭素-フッ素結合は最も不活性な有機官能基と考えられており、温和な条件下での選択的な変換は依然として困難である。本研究では、これまで過酷な条件を必要とすることが多かったC-F結合を低温でC-H結合に変換するための触媒として、高活性の白金-パラジウムナノアロイを開発し、理論計算によって反応経路やエネルギープロファイルを解明した(図1-1)。PtとPdの合金化はC-F結合解離を実現するために極めて重要であり、単体や物理的混合では反応は進行しない。

DFT計算の結果、白金サイトでのC-F結合の活性化に先立ち、2-プロパノールのO-H結合をPdサイトに酸化的付加することが重要であり、これによりC-F結合開裂の活性化エネルギーが低下することを明らかにした。したがって、PtとPdは独立に、しかし相乗的に作用して反応全体を促進することを明らかにした。本研究成果に基づいた凝縮相合金微粒子触媒のさらなる発展が期待される。

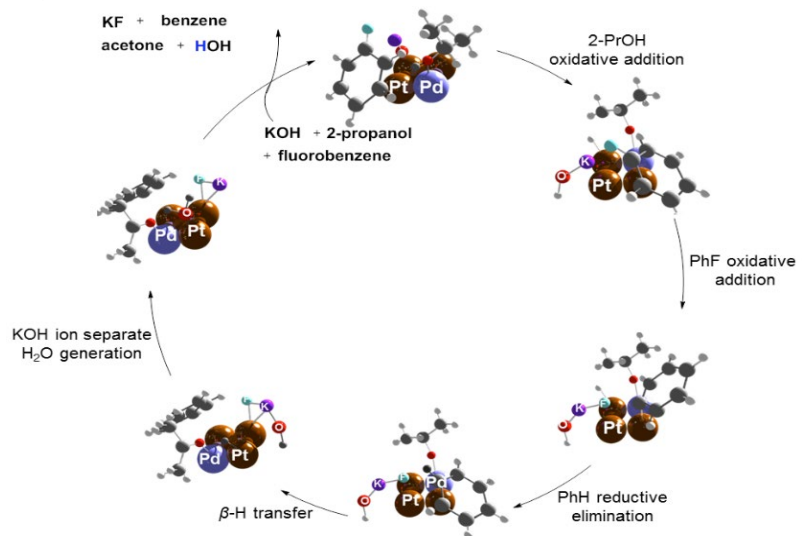


図1-1. Pt-Pd合金触媒によるC-F結合活性化の反応機構

②Pd-Au合金触媒によるヒドロシリル化反応のPdサイトと周辺サイトの重要性

内部アルキンや α, β -不飽和ケトンのヒドロシリル化反応を高効率で触媒するPd-Au担持合金微粒子触媒が開発された。本研究では、Pd-Au合金クラスターとPd-Au(111)表面における内部アルキンのヒドロシリル化反応の反応機構を研究した(図1-2)。反応はChalk-Harrod機構に従うこと、律速段階はPd-Au合金クラスターではヒドロメタル化であり、Pd-Au(111)表面ではSi-Cの還元的脱離であることを明らかにした。Pdサイトおよび周辺のPd-Auサイトが吸着や活性中心として重要であり、これは均一系触媒にはない不均一系合金触媒の特徴であることを示した。また、Au単体では、反応の活性障壁が高いこと、Pd単体では極めて安定な中間体が生成し、反応が進行しないことを示した。

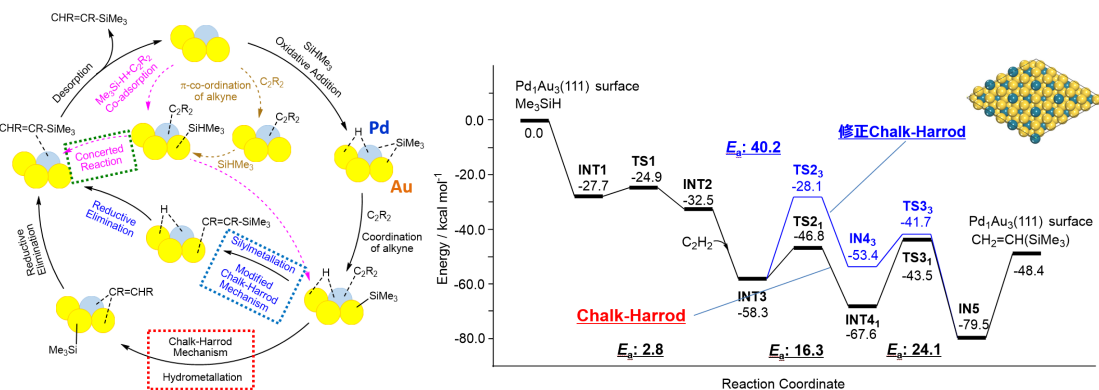


図1-2. Pd-Au合金触媒によるアレンのヒドロシリル化反応の反応機構(左)とエネルギープロファイル(右)

(2)担持金属微粒子触媒および銅ゼオライト触媒の触媒作用

①グラフェンに担持した白金サブナノクラスターの構造および酸素還元反応活性

燃料電池の負極には白金電極が用いられているが、酸素還元反応(ORR)はPtをナノ粒子化することにより活性化される。しかし、サイズ依存性や活性サイトに関する分子論的理解は十分ではない。本研究では、ガラス状炭素に担持したPtサブナノクラスター(Pt_n, n=3-9)が、汎用のPt/C電極よりも質量比活性が極めて高いことを見出し、理論解析を実施した(図2-1)。理論解析では、グラフェン上のPtクラスター(Pt_n, n=4-8)の安定構造を数種類提示し、XAFSスペクトルと比較することによって、Ptクラスターの吸着安定構造を決定した。さらに反応の活性点を部分状態密度から理論的に特定し、酸素還元反応のエネルギープロファイルを計算することによって、過電圧を理論的に明らかにした。

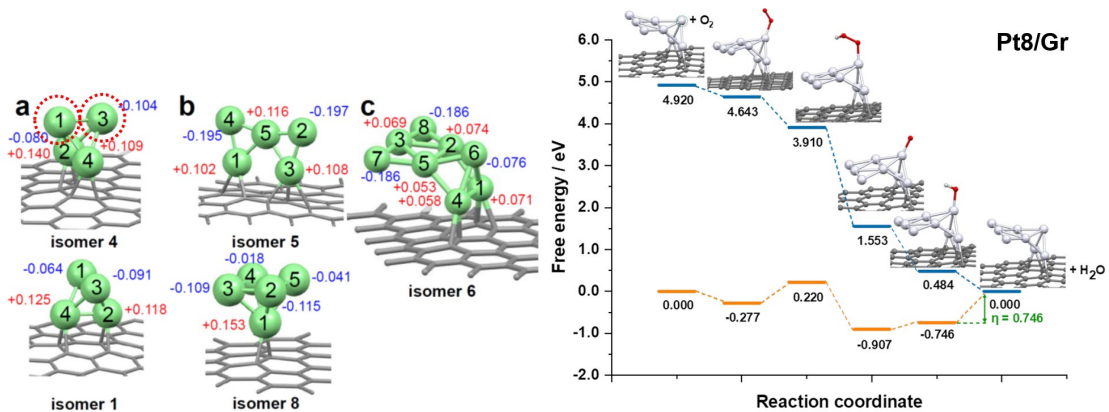


図2-1. グラフェンに担持したPtサブナノクラスターの構造(右)とORRのエネルギープロファイル

②銅交換ゼオライトにおけるNOのアンモニア-選択的還元反応(NH₃-SCR)のケージ依存性

銅交換ゼオライトのNOのNH₃による選択的触媒還元反応(NH₃-SCR)はディーゼル車の排ガス浄化触媒に応用されている。最近、実験で *cha*, *gme*, *aft* ケージを持つ銅交換ゼオライトの活性が系統的に調査された。しかし、その反応機構や触媒活性のケージ依存性の起源は理論的に未解明である。本研究では、DFT計算を用いて、銅交換ゼオライトのNH₃-SCRについて、触媒サイクルの還元・酸化過程の両方のプロセスを解析し、ケージ依存性を調査した(図2-2)。反応過程のエネルギーバリアを比較した結果、*cha* および *aft* ケージが *gme* ケージよりも性能が優れていることを理論的に示した。また、近年注目されているNH₃に配位した銅二量体によるO₂分子の活性化の機構についても検討し、同様に *gme* ケージよりも *cha* および *aft* ケージが有利であることを示した。

Largest energy barriers (rate-determining step): kJ/mol

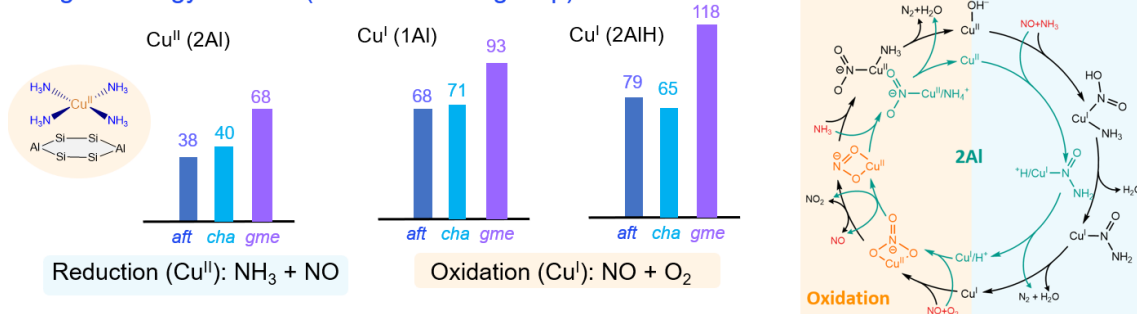


図2-2. 銅交換ゼオライトのNH₃-SCRのケージ依存性

(3)分子-金属ナノ粒子系の合理的理論設計法の開発と応用

分子の光物性は金属ナノ粒子近傍で大きく増幅され、分子-金属ナノ粒子系は多様な光機能をもつ。分子-金属ナノ粒子系の機能のポテンシャルを引き出すには、適切な設計指針が必要である。本研究では、量子逆設計理論および量子最適制御理論を開発・実装し、所望の光物性を発現する最適な分子-金属ナノ粒子系と入射電場の設計を行った(図3)。逆設計理論では、「機能空間」の勾配に基づく最適化と探索を行い、「化学空間」の設計を行う。本研究では、分子を時間依存配置間相互作用法で記述し、金属ナノ粒子を誘電体モデルに基づく境界要素法で記述して分子-金属ナノ粒子系を表現することにより、各要素の最適化問題に帰着した。また、入射電場は量子最適制御理論で最適化した。これらの理論により、分子種・空間配置、金属ナノ粒子の金属種・形状、入射電場の最適化に成功した。本手法は、分子-金属ナノ粒子系と入射電場の設計方法として有望であり、分子プラズモニクスシステ

ムへの適用が期待される。

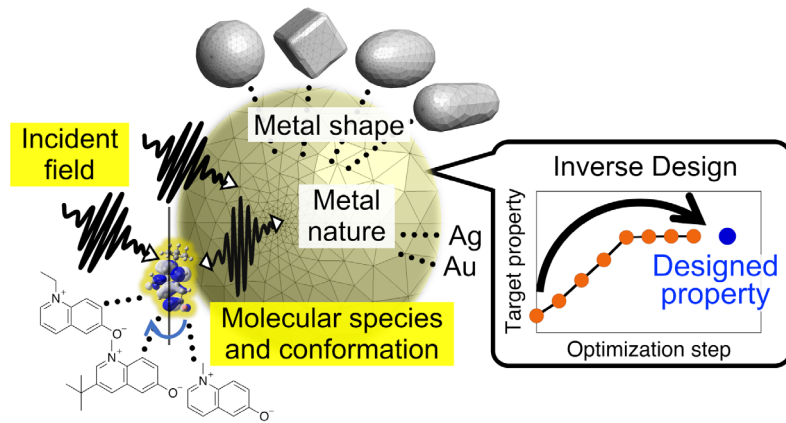


図 3. 分子-金属ナノ粒子系および入射電場の最適化

(4) 修飾単層カーボンナノチューブの近赤外発光特性の理論解析・設計

単層カーボンナノチューブ (SWNT) に量子欠陥を導入することによって、赤色シフトしたピークを持つ発光強度が向上するが、化学修飾と発光波長の精密制御は依然として困難である。本研究では、SWNT を段階的に化学修飾することで、部位特異的な機能化と発光を制御できることを、実験的・理論的に示した。数種類のカイラル指数の SWNT について、Bu-SWNT-Bu および Bu-SWNT-H 付加体は、各々 E_{11}^{**} 発光 (>1200nm) および E_{11}^* 発光 (~1100 nm) が支配的であった (図 4)。DFT/TD-DFT 法により、SWNT の 1,2-および 1,4-付加体の熱力学的安定性と遷移エネルギーに基づいて付加サイトと発光特性を系統的に帰属した。その結果、付加基の立体障害と R 値 ((n, m) -SWNT における $\text{mod}(n-m, 3)$) が、付加サイトと局所バンドギャップの大きさを制御する重要な因子であることを示した。

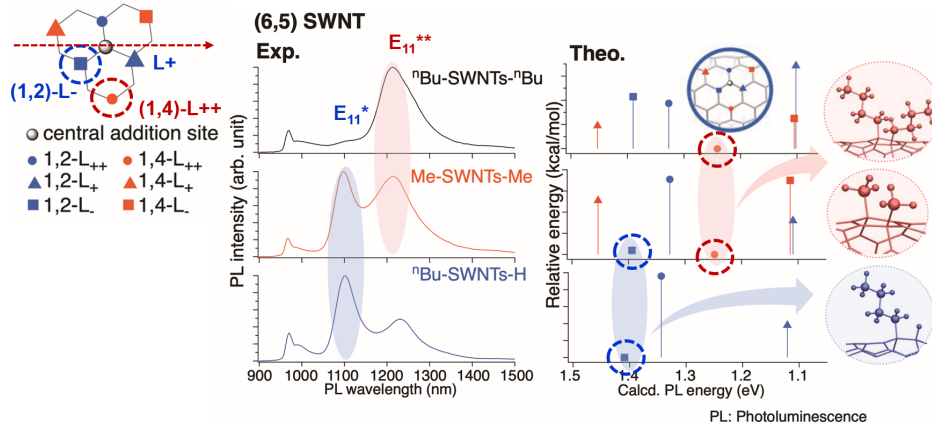


図 4. 単層カーボンナノチューブの化学修飾による近赤外発光の波長制御

まとめと謝辞

本研究課題では、不均一系触媒や光機能性材料の複雑な電子状態を研究のための理論開発と応用研究を実施した。上記で報告した研究以外にも多くの興味深い化学事象の研究を展開することができた。特に、量子逆設計理論を開発し、そのポテンシャルを示すことができた。これらの研究においては、多くの国内外の実験研究者や理論研究者との共同研究を推進し、単なる理論モデルの研究ではなく、実在系を対象とした研究を実施することができた。これらの研究成果を基に、関連研究をさらに発展していきたいと考えている。

本研究課題を通じて共同研究の機会をいただきました共同研究者の先生方々に感謝いたします。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計38件（うち査読付論文 38件 / うち国際共著 17件 / うちオープンアクセス 18件）

1. 著者名 P. Zhao, M. Ehara	4. 巻 158
2. 論文標題 Theoretical Insights into the Support Effect on the NO Activation over Platinum-Group Metal Catalysts	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 J. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 134701-134701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0145586	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Y. Maeda, R. Morooka, P. Zhao, D. Uchida, Y. Konno, M. Yamada, M. Ehara	4. 巻 127
2. 論文標題 Controlling Near-Infrared Photoluminescence Properties of Single-Walled Carbon Nanotubes by Substituent Effect in Stepwise Chemical Functionalization	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C.	6. 最初と最後の頁 2360-2370
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c06153	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Hu, P. Zhao, K. Nakano, R. D. J. Oliver, J. Pascual, J. A. Smith, T. Yamada, M. A. Truong, R. Murdey, N. Shioya, T. Hasegawa, M. Ehara, M. B. Johnston, K. Tajima, Y. Kanemitsu, H. J. Snaith, A. Wakamiya	4. 巻 35
2. 論文標題 Synergistic Surface Modification of Tin/Lead Perovskite Solar Cells	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2208320-2208320
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202208320	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Y. Shui, G. Pei, P. Zhao, M. Xiong, S. Li, M. Ehara, T. Yang	4. 巻 157
2. 論文標題 Understanding Electronic Structures, Chemical Bonding, and Fluxional Behavior of Lu ₂ @C _{2n} (2n = 76 - 88) by a Theoretical Study	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 J. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 184306-184306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0100652	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Shiraogawa, G. Dall'Osto, R. Cammi, M. Ehara, S. Corni	4. 巻 24
2. 論文標題 Inverse Design of Molecule-Metal Nanoparticle Systems Interacting with light for the Desired Photophysical Properties	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 22768-22777
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CP02870K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 P. Zhao, K. Ueda, R. Sakai, M. Ehara, A. Satsuma, S. Sakaki	4. 巻 605
2. 論文標題 Surface Modification of MCr2O4 (M = Mg and Zn) by Cu-Doping: Theoretical Prediction and Experimental Observation of Enhanced Catalysis for CO Oxidation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Appl. Sur. Sci.	6. 最初と最後の頁 154681-154681
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2022.154681	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Z. Lei, M. Endo, H. Ube, T. Shiraogawa, P. Zhao, K. Nagata, X.-L. Pei, T. Eguchi, T. Kamachi, M. Ehara, T. Ogawa, M. Shionoya	4. 巻 13
2. 論文標題 N-Heterocyclic Carbene-based C-centered Au(I)-Ag(I) Clusters with Intense Phosphorescence and the Organelle-selective Translocation in Cells	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Commun.	6. 最初と最後の頁 4288-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-022-31891-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 M. Han, S. Tashiro, T. Shiraogawa, M. Ehara, M. Shionoya	4. 巻 95
2. 論文標題 Substrate-Specific Activation and Long-Range Olefin Migration Catalysis at the Pd Centers in a Porous Metal-Macrocyclic Framework	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn	6. 最初と最後の頁 1303-1307
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20220185	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 S. Hu, P. Zhao, B. Li, P. Yu, L. Yang, M. Ehara, P. Jin, T. Akasaka, X. Lu	4. 巻 61
2. 論文標題 Cluster-Geometry-Associated Metal-Metal Bonding in Trimetallic Carbide Clusterfullerenes	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 11277-11283
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.2c01399	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Nakashima, R. Tanibe, H. Yoshida, M. Ehara, M. Kuzuhara, T. Kawai	4. 巻 61
2. 論文標題 Self Regulated Pathway Dependent Chirality Control of Silver Nanoclusters	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 e202208273-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202208273	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 J. Yin, M. Ehara, S. Sakaki	4. 巻 24
2. 論文標題 Single Atom Alloys vs Phase Separated Alloys in Cu, Ag, and Au atoms with Ni(111) and Ni, Pd, and Pt atoms with Cu(111): A Theoretical Exploration	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 10420-10438
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d2cp00578f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Morisawa, E. Tanimura, M. Ehara, H. Sato	4. 巻 75
2. 論文標題 Attenuated Total Reflection-Far-Ultraviolet Spectroscopy and Quantum Chemical Calculation Study of the Electronic Structure of Top Surface and Bulk of Polyethylenes with Different Crystallinity	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Appl. Spectrosc.	6. 最初と最後の頁 971-979
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1177/00037028211013425	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 J. U. Davis, Jr., Q.M. Phung, T. Yanai, M. Ehara, T. Sommerfeld	4. 巻 125
2. 論文標題 Lifetimes of Be ₃₂ - and Mg ₃₂ - Cluster Dianions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. A	6. 最初と最後の頁 3579-3588
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.1c00770	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 W. Ishii, S. Katao, Y. Nishikawa, Y. Okajima, A. Hatori, M. Ehara, T. Kawai, T. Nakashima	4. 巻 57
2. 論文標題 The Emergence of Intense Near-infrared Photoluminescence by Photoactivation of Silver Nanoclusters	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chem. Commun	6. 最初と最後の頁 6483-6486
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CC02119B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 J. Kodchasee, C. Chanloi, P. Khemthong, B. Uapipatanakul, M. Ehara, K. Bobuatong	4. 巻 11
2. 論文標題 Catalytic Oxidation of Benzyl Alcohol to Benzaldehyde on Au ₈ and Au ₆ Pd ₂ Clusters: A DFT Study on the Reaction Mechanism	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Catalysts	6. 最初と最後の頁 720-720
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/catal11060720	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 A. Junkaew, M. Ehara, L. Huang, S. Namuangruk	4. 巻 623
2. 論文標題 Facet-Dependent Catalytic Activity of Anatase TiO ₂ for the Selective Catalytic Reduction of NO with NH ₃ : A Dispersion-Corrected Density Functional Theory Study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Appl. Catal. A	6. 最初と最後の頁 118250-118250
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcata.2021.118250	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Y.-L. Shen, P. Zhao, J. Jin, J. Han, C. Liu, Z. Liu, M. Ehara, Y.-P. Xie, X. Lu	4. 巻 50
2. 論文標題 A Comparative Study of [Ag11(iPrS)9(dppb)3]2+ and [Ag15S(sBuS)12(dppb)3]+: Templating effect on Structure and Photoluminescence	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Dalton Trans.	6. 最初と最後の頁 10561-10566
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1DT01111A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 R. Inoue, T. Naota, M. Ehara	4. 巻 16
2. 論文標題 Origin of the Aggregation Induced Phosphorescence of Platinum(II) Complexes: The Role of Metal-Metal Interactions on Emission Decay in the Crystalline State	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chem. Asian J.	6. 最初と最後の頁 3129-3140
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/asia.202100887	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 P. Zhao, M. Ehara, A. Satsuma, S. Sakaki	4. 巻 125
2. 論文標題 Theoretical Study of the Propene Combustion Catalysis of Chromite Spinel: Reaction Mechanism and Relation between the Activity and Electronic Structure of Spinel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C	6. 最初と最後の頁 25983-26002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c06760	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 A. Ohnuma, K. Takahashi, H. Tsunoyama, T. Inoue, P. Zhao, A. Velloth, M. Ehara, N. Ichikuni, M. Tabuchi, A. Nakajima	4. 巻 12
2. 論文標題 Enhanced Oxygen Reduction Activity of Size-Selected Platinum Subnanocluster Catalysts: Ptn (n=3-9)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Catal. Sci. Tech.	6. 最初と最後の頁 1400-1407
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CY00573A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 X.-L. Pei, P. Zhao, H. Ube, Z. Lei, K. Nagata, M. Ehara, M. Shionoya	4. 巻 144
2. 論文標題 Asymmetric Twisting of C-Centered Octahedral Gold(I) Clusters by Chiral N-Heterocyclic Carbene Ligation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 J. Am. Chem. Soc.	6. 最初と最後の頁 2156-2163
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.1c10450	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Yoshida, J. Kumar, M. Ehara, Y. Okajima, F. Asanoma, T. Kawai, T. Nakashima	4. 巻 93
2. 論文標題 Impact of Enantiomeric Ligand Composition on the Photophysical Properties of Chiral Ag ₂₉ Nanoclusters	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 834-840
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20200089	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 T. Shiraogawa, M. Ehara	4. 巻 124
2. 論文標題 Theoretical Design of Photofunctional Molecular Aggregates for Optical Properties: An Inverse Design Approach	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C	6. 最初と最後の頁 13329-13337
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c01730	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 R. N. Dhital, K. Nomura, Y. Sato, S. Haesuwannakij, M. Ehara, H. Sakurai	4. 巻 93
2. 論文標題 Pt-Pd Nanoalloy for the Unprecedented Activation of Carbon-Fluorine Bond at Low Temperature	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 1180-1185
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20200112	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 M.-Y. Li, Y.-X. Zhao, Y.-B. Han, K. Yuan, K.-N. Zhang, Y.-Q. Chen, M. Ehara, S. Nagase, X. Zhao	4. 巻 7
2. 論文標題 Covalent Interactions Depended on the Distances between Metals and Fullerenes for Thermodynamically Stable M@C78 (M = La, Ce, and Sm)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Inorg. Chem. Frontier	6. 最初と最後の頁 2538-2547
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0QI00428F	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Y.-X. Zhao, K. Yuan, Y.-B. Han, M.-Y. Li, M. Ehara, X. Zhao	4. 巻 59
2. 論文標題 Theoretical Insight into Thermodynamically Optimal U@C84: Three-Electron Transfer Rather Than Four-Electron Transfer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Inorg. Chem.	6. 最初と最後の頁 12650-12658
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.0c01756	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 R. Nag, R. Curik, M. Tarana, M. Polasek, M. Ehara, T. Sommerfeld, J. Fedor	4. 巻 22
2. 論文標題 Resonant States in Cyanogen NCCN	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 23141-23147
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CP03333B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 G. Pei, P. Zhao, S. Xu, X. Zhao, C. Kong, Z. Yang, M. Ehara, T. Yang	4. 巻 9
2. 論文標題 Stabilities, Electronic Structures, and Bonding Properties of Iron Complexes (E1E2)Fe(CO)2(CNArTripp)2 (E1E2=BF, CO, N2, CN-, or NO+)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ChemistryOpen	6. 最初と最後の頁 1195-1201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/open.202000248	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Y. Pathak, K.S. Juneja, G. Varma, M. Ehara, U. Deva Priyakumar	4. 巻 22
2. 論文標題 Deep Learning Enabled Inorganic Material Generator (DING)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 26935-26943
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/DOCP03508D	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 S. Kinoshita, Y. Harabuchi, Y. Inokuchi, S. Maeda, M. Ehara, K. Yamazaki, T. Ebata	4. 巻 23
2. 論文標題 Substitution Effect on the Nonradiative Decay and trans-cis Photoisomerization route: A Guideline to Develop Efficient Cinnamate Based Sunscreens	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 834-845
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/DOCP04402D	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 P. Zhao, M. Ehara, A. Satsuma, S. Sakaki	4. 巻 393
2. 論文標題 Theoretical Insight into Oxidation Catalysis of Chromite Spinel MCr ₂ O ₄ (M=Mg, Co, Cu, and Zn): Volcano Plot for Oxygen-vacancy Formation and Catalytic Activity	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Catal.	6. 最初と最後の頁 30-41
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcat.2020.11.006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Yonezawa, T. Shiraogawa, M. Han, S. Tashiro, M. Ehara, M. Shionoya	4. 巻 16
2. 論文標題 Mechanistic Studies on Photoinduced Catalytic Olefin Migration Reactions at the Pd(II) Centers of a Porous Crystal, Metal-Macrocyclic Framework	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chem. Asian J.	6. 最初と最後の頁 202-206
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/asia.202001306	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 S. Xu, M. Li, G. Pei, P. Zhao, X. Zhao, G. Wu, C. Kong, Z. Yang, M. Ehara, T. Yang	4. 巻 125
2. 論文標題 Stabilities, Electronic Structures, and Bonding Properties of 20-Electron Transition Metal Complexes (Cp)2TMO and their One-Dimensional Sandwich Molecular Wires (Cp = C5H5, C5(CH3)H4, C5(CH3)5; TM = Cr, Mo, W)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. A,	6. 最初と最後の頁 721-730
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.0c07402	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 P. Zhao, B. Boekfa, K. Shimizu, M. Ogura, M. Ehara	4. 巻 11
2. 論文標題 Selective Catalytic Reduction of NO with NH3 over Cu-Exchanged CHA, GME, and AFX Zeolites: A DFT Study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Catal. Sci. Tech.	6. 最初と最後の頁 1780-1790
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0cy02342f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Ogura, Y. Shimada, T. Ohnishi, N. Nakazawa, Y. Kubota, T. Yokoi, M. Ehara, K. Shimizu, N. Tsunoji	4. 巻 11
2. 論文標題 AFX Zeolite for Use as a Support of NH3-SCR Catalyst Mining through AICE Joint Research Project of Industries-Academia-Academia	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Catalysts	6. 最初と最後の頁 163-163
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/catal11020163	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 M. Li, Y. Zhao, K. Yuan, Y. Han, J. Zhang, Y. Wu, M. Ehara, S. Nagase, X. Zhao	4. 巻 8
2. 論文標題 Lithium-Bromine Exchange Reaction on C60: First Theoretical Proposal of Stable Singlet Fullerene Carbene without Heteroatom	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Org. Chem. Frontier	6. 最初と最後の頁 1551-1562
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0QQ001589J	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 A. Takamatsu, K. Tamai, S. Hosokawa, T. Tanaka, M. Ehara, R. Fukuda	4. 巻 13
2. 論文標題 Oxidation and Storage Mechanisms for Nitrogen Oxides on Variously Terminated (001) Surfaces of SrFeO ₃ - and Sr ₃ Fe ₂ O ₇ - Perovskites	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Appl. Mater. Interface	6. 最初と最後の頁 7216-7226
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acсами.0c20724	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 N. Takagi, M. Ehara, S. Sakaki	4. 巻 6
2. 論文標題 Theoretical Study of NO Dissociative Adsorption onto 3d Metal Particles M ₅₅ (M = Fe, Co, Ni, and Cu): Relation between the Reactivity and Position of the Metal Element in the Periodic Table	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 4888-4898
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.0c05838	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 11件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 M. Ehara
2. 発表標題 Inverse Design Approach of Photofunctional Molecular Aggregates and Molecule-Nanocluster Systems
3. 学会等名 Workshop 2022 on Multiscale Simulation of Complex Reacting Systems (StudyCamp2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 M. Ehara and T. Shiraogawa, P. Zhao
2. 発表標題 Theoretical Design of Photofunctional Molecular Aggregates and Molecule-Nanocluster Systems for Optical Properties with Inverse Design Approach
3. 学会等名 The 10th Asian Pacific Conference of Theoretical & Computational Chemistry (APCTCC) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 江原正博
2. 発表標題 多孔性分子結晶PdII-MMFによる光照射オレフィン移動反応の反応機構
3. 学会等名 IQCE量子科学探索講演会2022「量子化学で探る化学の最先端」(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 江原正博
2. 発表標題 不均一系触媒・クラスター触媒の理論・計算科学
3. 学会等名 触媒学会 界面分子変換研究会ワークショップ「固体触媒の活性構造を知る」(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 江原正博
2. 発表標題 分子集合体・金属クラスターのキラル光物性に関する理論的研究
3. 学会等名 計算アストロバイオロジー2022(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 M. Ehara
2. 発表標題 Theoretical Studies on Photofunctional Systems and Heterogeneous Catalysts
3. 学会等名 第41回CMD3ワークショップ(先端事例講義)大阪大学エマージングサイエンスデザインR3センター(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 M. Ehara
2. 発表標題 Theoretical Studies on Heterogeneous and Nanocluster Catalysts: Collaborations with Experiment
3. 学会等名 The 8th International Symposium of Institute for Catalysis: Novel Approaches for Next Generation Catalysis (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Ehara
2. 発表標題 Theoretical Chemistry for Complex Systems: Nanocluster and Heterogeneous Catalysts
3. 学会等名 The 2nd IMS-SKKU-UJN symposium on Molecular Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Ehara
2. 発表標題 Theoretical Chemistry for Complex Systems: Pd-Au Nanocluster and Heterogeneous Catalysts
3. 学会等名 Pacifichem 2021: Symposium (#393) Triangle of Heterogeneous Catalysis, Surface Science, and Theory (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Ehara
2. 発表標題 Theoretical Design of Photofunctional Molecular Aggregates for Optical Properties: An Inverse Design Approach
3. 学会等名 Japan-Norway Bilateral Symposium from Fundamental Chemistry to Porous Materials: Theory and Experiment (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 江原正博
2. 発表標題 不均一系触媒の構造と機能に関する理論研究
3. 学会等名 第126回触媒討論会「コンピューターの利用」(招待講演)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

自然科学研究機構 計算科学研究センター 江原研究室
<http://tc.ims.ac.jp/>

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
米国	Southeastern Louisiana University			
タイ	NANOTEC	Kasetsart University	VISTEC	他1機関
イタリア	University of Padova	University of Parma		
チェコ	Czech Academy of Sciences			
中国	Wuhan University	Xi'an Jiaotong University		

共同研究相手国	相手方研究機関			
インド	IIIT Hyderabad			
英国	University of Oxford			