

ディビジョン番号	3
ディビジョン名	理論化学・情報化学・計算化学

大項目	3. 計算化学
中項目	3-1. シミュレーション
小項目	3-1-4. 固体触媒

<p>概要（200字以内）</p> <p>固体触媒研究における計算機シミュレーションの役割として、反応雰囲気等の外的条件による触媒表面の構造と反応のダイナミクス解明に対する期待が高まっている。今後、これまで開発されてきた各種シミュレーション技術を、この課題解決に向けて有機的に連携させて、新たな解析技術の開発と方法論の確立を図るとともに、それら技術を実際問題に広く適用し検証を行う仕組み作りが必要と考えられる。</p>	
<p>現状と最前線</p> <p>固体触媒研究において、実際の反応条件下で触媒表面がどのように変化し触媒反応がいかに進行するかを解明することは、触媒設計にとって本質的かつ最も重要な課題である。目的とする触媒反応を高効率で進行させるためには、固体触媒表面はどのような構造であるべきか、また、その表面構造にすることによって、いかに副反応を抑制して主反応を進行させることができるのかというメカニズムを明らかにしていくことが、固体触媒研究において計算機シミュレーションが果たす重要な役割であろう。</p> <p>固体触媒研究における計算機シミュレーション技術は、この10年程の間で第一原理計算手法と並列計算機の普及により飛躍的に進歩した。その結果、クリーンな結晶表面の構造変化や、清浄表面における小分子の吸着・解離等の化学反応素過程については、数多くの第一原理シミュレーションによる報告がなされ、その機構解明と理解が大きく進んだ⁽¹⁾。</p> <p>このように、第一原理シミュレーションは機構解明という点で非常に強力なツールであるが、これまでの報告例の多くは触媒表面として結晶から切り出した清浄表面を用いるなど、極めて理想的な状態を仮定しているケースがほとんどである。しかしながら、実際の触媒反応系においては、温度・圧力・反応雰囲気などによって固体触媒表面そのものがダイナミックに変化していると考えられる。反応雰囲気等の外的条件によって触媒表面の構造や活性点がどのように変化するかという問いに対して、従来のモデルの枠を超えた計算機シミュレーションへの期待は非常に大きい。そのような観点では、酸素被覆率の異なる触媒表面モデルを用いて自</p>	

由エネルギーの温度変化を調べ、高活性な触媒表面とはどういうものかを議論した報告や⁽²⁾、アルミニウムナノ粒子表面の酸化膜形成過程を、電荷平衡法によるシミュレーションで明らかにした報告などがなされて来ており⁽³⁾、今後、より現実に近い条件での触媒構造の解明に向けての新たな展開が期待できる。

シミュレーションによって固体触媒表面の構造が得られたとしても、その表面構造において目的とする触媒反応が進行するかどうかを明らかにし、そのメカニズムを解明しなければ、触媒設計は完結しない。固体触媒表面で起こる化学反応には、数多くの反応経路が存在すると考えられるが、そのような多数の経路の中から目的の反応経路をいかに効率よくグローバルに探索するかということも重要である。現状ではある程度定義された経路に沿って遷移状態探索を行うことが多いが、メタダイナミクス法⁽⁴⁾は、反応の出発点と到達点の間でのグローバルなポテンシャルサーチにより反応経路を得ようとするもので、超臨界水中の化学反応や生体分子中のプロトン輸送などに応用されている。こうした手法が、より広範な触媒表面反応に応用され、どのような触媒表面であれば副反応を抑制しつつ主反応を選択的に進行させることができるかという知見を与えることが可能になれば、触媒構造と反応を総括的にシミュレーションできるようになるものと期待される。技術的にはすでに量子古典ハイブリッド手法への展開も試みられているが、前述の電荷平衡法のような経験的手法への応用展開の可能性も示されれば、高速シミュレーションによる触媒探索の新たな展開が見えてくると期待される。

今後は、固体触媒表面の構造と反応のダイナミクス解明という切り口で、現状の要素技術を連携させた新たな解析技術の開発や方法論の確立が求められるとともに、それら技術を広く実際問題に適用して検証する仕組み作りも重要であろうと考えられる。

- 【参考文献】 (1) B. Hammer and J. K. Norskov, *Nature* **376**, 238 (1995)
(2) W. Hofer et al. *Properties of Single Organic Molecules on Crystal Surfaces*. (2006) Imperial College Press.
(3) 月刊機能材料 2005年11月号 p. 29 (シーエムシー出版)
(4) ナノシミュレーション技術 2006年7月 (共立出版)

将来予測と方向性

- ・ 5年後までに解決・実現が望まれる課題
固体触媒表面ダイナミクス解明に向けた各種シミュレーション技術の連携
開発技術や方法論の検証研究の実施
- ・ 10年後までに解決・実現が望まれる課題
反応雰囲気等の外的条件を考慮した固体触媒表面の構造・反応ダイナミクスの解明

キーワード

固体触媒、第一原理シミュレーション、電荷平衡法、メタダイナミクス

(執筆者： 石田 雅也)