

ディビジョン番号	12
ディビジョン名	触媒化学

大項目	9. 計算化学
中項目	9-2. 分子シミュレーション、計算科学
小項目	9-2-1. 構造解析、反応機構解析

概要（200字以内）

不均一触媒の例として排気浄化触媒用反応器の概念図を図1に示す。物理的・化学的に異なる現象が階層的に関連し合っており、全体の特性を決めている。それぞれに時空間スケールが異なっており、現状では互いの関連を定量的に記述する理論が無い。

現在、各階層での大規模かつ高精度なシミュレーションの挑戦とともに階層間の関連を理論的に記述することがより一般的な立場から進められており、不均一触媒系の総合的理解に繋がるものと期待される。

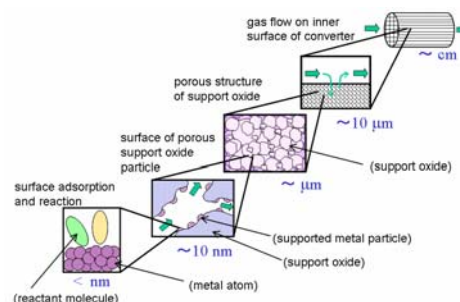


図1 排気浄化用触媒反応器の階層構造

現状と最前線

図1の最上段とその下の階層では、流体、熱拡散および反応速度式の計算によって現象を定量的に把握可能である。上から二段目の基材への気体の出入りについても、最上段での気体の濃度変化を記述する方程式における境界条件の設定によって評価できる。一方、上から三段目の酸化担体における多孔質構造内部での気体の運動を計算することは、従来の流体計算法では膨大な境界条件の設定を必要とするためにほぼ不可能であった。これに対し格子ボルツマン法(LBM)は多孔体内部の流体や熱拡散の計算に有利な方法であると考えられ、拡散方程式版のLBMも含めて近年活発に研究が進められている。多孔体構造自体をモデル化する方法も発展させて行く必要があるが、今後重要な予測/解析法として定着して行くものと考えられる。

下から二段目の階層では分子動力学計算のような方法では対象の規模が大きすぎて部分的な計算がようやく可能な程度である。従来の流体計算等は対象が微視的過ぎて適切な方法とは言えず、分子論的な記述と連続体理論に基づく記述との狭間にあたる階層になっている。異なる物理法則に基づく理論の間の定量的な関係の把握が強く要求される。同じ階層での固体側の問題は酸化担体上での金属微粒子の挙動である。この問題は、最近フェーズフィールド法(PFM)という方法を用いて系統的に計算予測できる見通しが立ちつつある。図2にPFMを用いて計算したカーボン担体上の白金微粒子の担持状態の結果を例示した。表面の組織構造と白金微粒子の担持状態との相関が見えている。この方法は相状態を記述する自由エネルギー汎関

数を用いて系の相分離や組織構造変化を計算するものであり、担持金属微粒子の凝集機構解析への適用は比較的自然的な拡張といえる。金属および担体の種類による違いを定量的に知るためには界面エネルギーの詳細な情報が必要となるため、金属微粒子を丸ごと計算できるような大規模な電子状態計算が要求される。また同時に、このような大規模電子状態計算とPFMの計算とを整合性良く共同させられるような理論の確立も要求される。

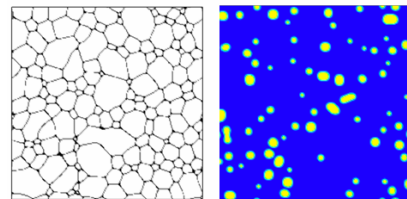


図2 カーボン担体表面の組織構造(左)とフェーズフィールド法による白金微粒子の分散構造(右)

図1の最下段の階層では、形状を有する表面上での分子吸着/反応を詳細に知ることが要求される。金属微粒子の形状を考慮できる電子状態計算の実現が要求される階層である。平滑表面における分子吸着/反応の電子状態計算は現状でも定量性の良い信頼できる結果を与えるが、担体の影響も考慮できるような大規模電子状態計算の実現と微粒子形状の影響を効果的に取り入れた電子状態理論の開発が必要となる。

これに対し地球シミュレータ等の超大型計算機による大規模電子状態計算(図3-a)と微粒子形状を静電的境界条件(電子状態に直接影響を与える)として取り入れた理論モデル(図3-b)の開発が進められている。ここでも、量子力学による記述と古典論による記述といった異なる物理法則に基づく理論の間の定量的な関係の把握が強く要求されている。

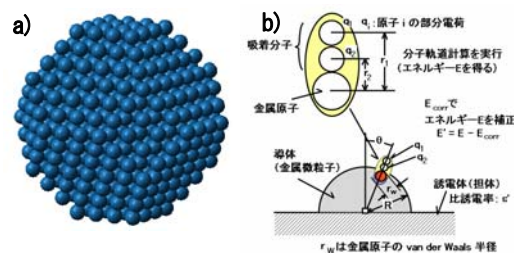


図3 a) 電子状態計算の対象とした白金576原子からなるクラスター. b) 微粒子形状を静電的境界条件として取り入れた電子状態計算の理論モデル.

ここで紹介したような取り扱いは電極触媒等でも重要であり、今後発展させるべきものと考えられる。また、単にシミュレーション法の開発という観点からだけではなく、不均一な系を理解して行くための処方箋を得ることのためにも重要であると考えられる。

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

1000 電子系の大規模電子状態計算の実現、粗視化動力学法の系統的な整理、ナノ不均一場における化学反応理論の構築

- ・ 10年後までに解決・実現が望まれる課題

異なる物理法則に基づく理論の間の定量的な関係の把握

キーワード

不均一触媒、階層構造、マルチスケールシミュレーション、大規模電子状態計算、粗視化動力学シミュレーション

(執筆者：(株)豊田中央研究所 兵頭志明、倉本圭、山川俊輔)