

提出日 2024年3月11日

氏名:安村 駿作

所属:生産技術研究所

学年または身分:助教

**研鑽タイトル Research Title**

微視的速度論解析に立脚した計算先導固体触媒開発

**渡航先 Visited Institution**

アイントホーヘン工科大学(TU/e)、オランダ

**渡航期間 Traveling Period**

2024年1月16日～2024年2月15日

**研修概要 Research outline**

本研修では、微視的反応速度論に立脚した計算科学先導触媒開発に取り組んだ。固体触媒研究は未だに「絨毯爆撃的なスクリーニング」から脱却できていない。近年、均一系触媒(分子触媒)等の分野で計算先導の触媒開発が成功を収めている。一方で固体触媒では、反応物/生成物の吸脱着、結合の生成/開裂、活性サイトの構造変化などが同時多発的に進行するため、計算先導開発は困難を極める。微視的反応速度論は、触媒表面で起こる素反応の活性化障壁を見積もり、解析することで、実際に触媒試験と比較可能な値(反応速度、転化率、選択率など)をシミュレーションできる手法である。受け入れ研究者の Ivo Filot 博士はこの手法の第一人者である。実験者である私が彼のもとで最先端のシミュレーションを行うことで、計算科学が先導した固体触媒開発が可能であると考え、滞在先で取り組んだ。

**研修先について About the laboratory visited**

オランダのアイントホーヘンにあるアイントホーヘン工科大学の Emiel Hensen グループに滞在した。同グループは、実験チームと計算チームを同じラボ内に持っていることが特徴で、日々それぞれの視点からの議論が生まれる環境を構築している。今回私は、主に計算チームに滞在したが、頻繁に実験チームとも非常に有意義なディスカッションを行うことができた。ラボの学生たちも非常にフレンドリーに接してくれ、地元のサッカーチームである FC Eindhoven の観戦にも一緒に出かけた。今後の学会などでも会う約束をし、連絡先なども交換したので、今後も親睦を深めていきたいと考えている。

**研修内容 What you learned**

現地ではまず、ニューラルネットワークポテンシャル(NNP)を用いた活性点形成シミュレーションに取り組んだ。MOF-74 の構造を出発構造とし、MOF の熱分解シミュレーションを行った(図1)。Ni, Co, Zn, Mg の MOF-74 をモデリングし、673K で 1ns の分子動力学シミュレーションを行った後、M-M 結合の配位数ポテンシャルにバイアスポテンシャルをかけ、メタダイナミクスシミュレーションを行った。その結果、Co や Zn はアモルファス化したが、Ni は構造中にクラスター構造が生成した。また Mg の場合、元々の構造が保たれたままであった。この2つの MOF を混ぜて熱分解を行うと Mg-MOF-74 の中に Ni クラスターが生成することを着想しマイクロキネティクス計算を行った。Ni-MOF-74 中に生成した Ni クラスターを Mg-MOF-74 の中に入れ CO<sub>2</sub> 水素化反応の素反応を行った。23 種の素反応を解析し、活性化障壁を求めた(表 1)。今後はこの結果を用いて継続的に Ivo 博士と連絡をとりながら、マイクロキネティクス解析を続けていく。

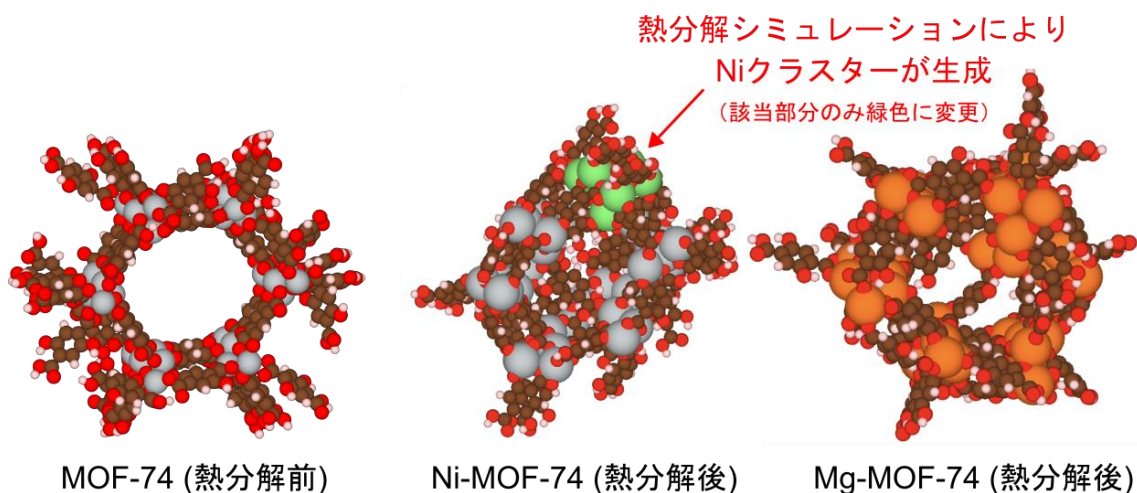


図1 ニューラルネットワークポテンシャルを用いた熱分解シミュレーション

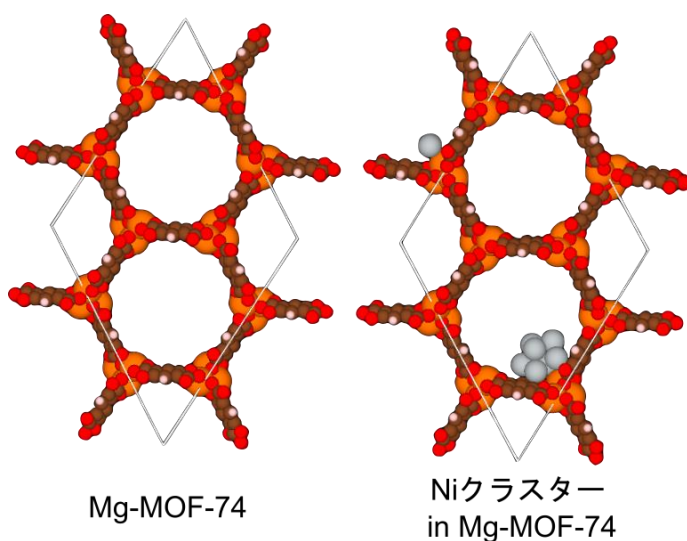


図2 Mg-MOR-74 内の Ni クラスター

表1 素反応の活性化エネルギー

	Elementary Reaction	Ea (forward)	Ea (backward)
1	$\text{CO}_2^* + * \rightleftharpoons \text{CO}^* + \text{O}^*$	133.4	161.5
2	$\text{CO}^* + * \rightleftharpoons \text{C}^* + \text{O}^*$	357.1	252.8
3	$\text{C}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{CH}^* + *$	72.6	147.5
4	$\text{CH}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{CH}_2^* + *$	60.6	51.4
5	$\text{CH}_2^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{CH}_3^* + *$	49.0	118.4
6	$\text{CO}_2^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{COOH}^* + *$	142.1	98.6
7	$\text{COH}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{HCOH}^* + *$	174.9	267.8
8	$\text{HCOH}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{H}_2\text{COH}^* + *$	87.4	122.5
9	$\text{H}_2\text{COH}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{H}_3\text{COH}^* + *$	68.6	122.8
10	$\text{CO}_2^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{HCOO}^* + *$	61.0	130.5
11	$\text{HCOO}^* + * \rightleftharpoons \text{HCO}^* + \text{O}^*$	181.5	102.1
12	$\text{HCO}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{H}_2\text{CO}^* + *$	55.1	43.7
13	$\text{H}_2\text{CO}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{H}_3\text{CO}^* + *$	65.7	117.9
14	$\text{COOH}^* + * \rightleftharpoons \text{CO}^* + \text{OH}^*$	17.5	118.5
15	$\text{COH}^* + * \rightleftharpoons \text{CO}^* + \text{H}^*$	66.5	240.0
16	$\text{COH}^* + * \rightleftharpoons \text{C}^* + \text{OH}^*$	152.4	194.4
17	$\text{H}_2\text{COH}^* + * \rightleftharpoons \text{CH}_2^* + \text{OH}^*$	72.8	147.3
18	$\text{H}_3\text{COH}^* + * \rightleftharpoons \text{CH}_3^* + \text{OH}^*$	122.5	223.9
19	$\text{HCO}^* + * \rightleftharpoons \text{CO}^* + \text{H}^*$	1.7	66.8
20	$\text{HCO}^* + * \rightleftharpoons \text{CH}^* + \text{O}^*$	125.5	185.0
21	$\text{H}_3\text{CO}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{H}_3\text{COH}^* + *$	153.6	76.1
22	$\text{OH}^* + \text{H}^* \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}^* + *$	136.7	73.6
23	$\text{OH}^* + \text{OH}^* \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}^* + \text{O}^*$	62.9	11.7

**研修先で特に印象に残ったこと The most impressive thing**

滞在の最終日にオランダのカーニバル期間に入った。普段は非常に静かなオランダ人たちが思い思いに仮装し、朝まで踊り明かしていた姿は非常に印象に残った。私が滞在していた大学内のパブでも同様のイベントが行われており、研究室メンバー全体で参加した。普段は忙しくなかなか会う機会がなかった Emiel Hensen 教授とも下のような写真を撮ることができ、現地のお祭りがラボの親睦を深める非常に良い機会となっていた。研究室のトップともフランクにコミュニケーションを取れる機会を設けることは研究室運営に非常に重要であることを再認識した。



※研修先でのご自分の写真を数枚添付してください。Please add your photos taken at the destination.