

日本－インドネシア－タイ 国際共同研究 「材料（マテリアルズ・インフォマティクス）」 2022 年度 年次報告書	
研究課題名（和文）	マルチスケールシミュレーションによる二酸化炭素リサイクル反応過程の解明とデザイン
研究課題名（英文）	Multi-scale Simulations and Design for CO ₂ recycling related processes
日本側研究代表者氏名	森川 良忠
所属・役職	大阪大学・大学院工学研究科・教授
研究期間	2022 年 4 月 1 日 ～ 2025 年 3 月 31 日

1. 日本側の研究実施体制

氏名	所属機関・部局・役職	役割
森川 良忠	大阪大学・大学院工学研究科・教授	研究統括
濱田 幾太郎	大阪大学・大学院工学研究科・准教授	電極反応の理論的研究
濱本 雄治	大阪大学・大学院工学研究科・助教	電極反応の理論的研究

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

今年度は国際共同研究を立ち上げると共に、日本側研究チームは以下の目標を設定した。

まず、今年度はインドネシア、タイのチームと連携して、CO₂の水素化および電気化学的還元反応に関して研究を進める。密度汎関数理論(DFT)計算と機械学習法による原子間ポテンシャルを構築し、CuZn 表面の大規模で高精度な長時間分子動力学シミュレーションを実施し、CuZn 合金形成の原子レベルでの過程を明らかにすることを主要な目標とする。このシミュレーションに成功したならば、分子吸着系への展開を行う。

3. 日本側研究チームの実施概要

Cu/Zn 触媒における CO₂ 水素化反応については、反応の活性サイトが長年の論争点である。実験的に、Cu に Zn を添加していくとメタノール合成の反応速度が増加することが観測されているが、その活性サイトの構造や電子状態、反応経路に関しては未だ論争となっている。これは、反応の活性サイトが通常の状態では不安定であり、反応ガスとの相互作用によって触媒反応中に形成されると考えられるが、反応中の触媒の構造を実験的に観測することは極めて難しい。近年、大気圧 X 線光電子分光法や大気圧走査トンネル顕微鏡など、反応中の状態を観測する実験手法が開発されつつあるが、それでも現実の触媒反応中の触媒の構造や電子状態を観測することは難しい。一方、理論的には、密度汎関数法によって触媒の安定構造や反応経路を解明する研究はかなり進められているが、それでも、触媒表面構造に関しては、相応の構造を仮定して反応の研究が行われており、その妥当性について理論的には確立されていない。触媒反応中の構造をシミュレーションすることが難しい理由としては、同構造が準安定な構造であり、雰囲気ガスの存在によって初めて実現される構造であると考えられるからである。そのためには、雰囲気ガスを導入して有限温度での反応シミュレーションを行う必要があるが、第一原理電子状態計算によってそれらのシミュレーションを行うには空間スケール、時間スケールとも第一原理電子状態計算で取り扱えるサイズを遥かに超えており、従来の限界を超えるシミュレーションが必要である。本研究プロジェクトでは、機械学習法と組み合わせた原子間ポテンシャルを生成し、それを用いた有限温度分子動力学法を行うことによって、従来の第一原理シミュレーションを超えることを試みている。多数の原子を含む系の中の各原子に働く力は、その原子の近傍の原子配置によって決まると考えられる。そこで、各原子を中心として、その周りの局所環境から原子に働く力を機械学習法でポテンシャルフィッティングし予測する。機械学習ポテンシャルはニューラルネットワークを用いる方法やガウス過程回帰を用いる方法があり、これらを活用して研究を進めた。

今年度は、Cu 表面上の CO₂ の水素化に関しては、バンドン工科大学のグループと議論を進めながら研究を行った。Ag 触媒による CO₂ の還元反応に関しては、チュラロンコン大学の実験チームと連携して研究討論を行いながら研究を進めた。Cu 表面上での CuZn 表面合金形成過程についてガウス過程回帰を用いて DFT 計算の結果を再現する機械学習ポテンシャルを構築した。構築した機械学習ポテンシャルを用いて大規模長時間シミュレーションを実行し、表面合金形成の微視的過程を明らかにし、論文として出版を行った。次に、吸着分子として CO 分子を導入し、CO 分子の雰囲気下での Cu 表面上での小さなクラスター形成過程について研究を行った。効率的に学習データを作成することにより、力の誤差が 100meV/Å 以下の精度の高い機械学習ポテンシャルの構築に成功した。