

アニーリングマシンを用いた合金触媒の探索・解析支援ツールの開発 — 高効率な触媒開発に向けた触媒構造の理解 —

1. 背景

昨今の環境問題の解決に向けて、温室効果ガスを全体としてゼロとするカーボンニュートラルを目指す取り組みが日本のみならず世界中で行われている。こういった目標を達成するためには、石油などの地下資源の使用を減らして、水や二酸化炭素といった安定かつ持続可能な地上資源からエネルギーや化学品を製造する必要がある。このような安定な地上資源を高効率にエネルギーや化学品に転換するのは困難であり、様々な化学反応の活性化障壁を低下することができる触媒は重要な材料群である。そのため、高性能な触媒の開発はカーボンニュートラルの実現に資する化学であり、より高性能な触媒の開発に向けて最適な電子状態や金属配置を達成した触媒を創出する必要がある。中でも複数の金属種が混ざった合金触媒を用いた研究が広く行われており、その金属種の組み合わせや混ぜる金属種数を変えることにより最適な触媒を創出することができる。こういった合金触媒の開発に向けては合金の金属配置を得ることが不可欠だが、金属種が増えた多元合金では金属配置の情報を実験的かつ理論的に得ることが困難である。以上より、カーボンニュートラルの実現を目指した合金触媒開発の効率化に向けて、多元合金を含めた合金触媒の金属配置が得られる手法の構築が求められている。

2. 目的

本プロジェクトでは 2050 年カーボンニュートラルの実現に向けて、アニーリングマシンを利用した合金触媒の金属配置最適化を行うことで実現可能な金属配置探索手法を構築し、触媒開発を大幅に加速させることを目的とした。

3. ソフトウェア開発内容

本プロジェクトでは、1)アニーリングマシンによる 2 元合金系の金属配置探索と、2)アニーリングマシンによる多元合金系の金属配置探索と、3)探索した金属配置に対する解析と可視化、に関するソフトウェア開発を行った。

1) アニーリングマシンによる 2 元合金系の金属配置探索

本プロジェクトでは Au-Cu の 2 元合金を対象として検討を行った。金属配置のバイナリ化としては Au 元素が 0、Cu 元素が 1 となるように設定し、目的関数は各金属配置での形成エネルギーの関数とした。ここで、形成エネルギーの関数はクラスター展開法により構築され、クラスター展開法に必要なクラスターモデルの形成エネルギーはスーパーコンピュータ「富岳」を利用して Quantum Espresso により算出された。その結果、金属配置ごとの形成エネルギーを 2 次式で記述するには表現力が低く、3 次式で記述する必要があることが分かった。そこで、クラスター展開で 3 次式まで考慮することで定式化を行い、構築した式を用いてアニーリングマシンにより金属比

率ごとの最安定な金属配置を探索した。結果、既報で観測されている Au:Cu=1:1 で形成エネルギーが最安定となる構造を持つことが本アニーリングマシンによる手法でも確認された。また、合金の金属配置を求める際に要する計算回数を既存手法と比較したところ、組合せが最も多くなる金属比率に近づくほど本手法は他の手法よりも計算コストの観点で優れていることが分かった。(図 1)

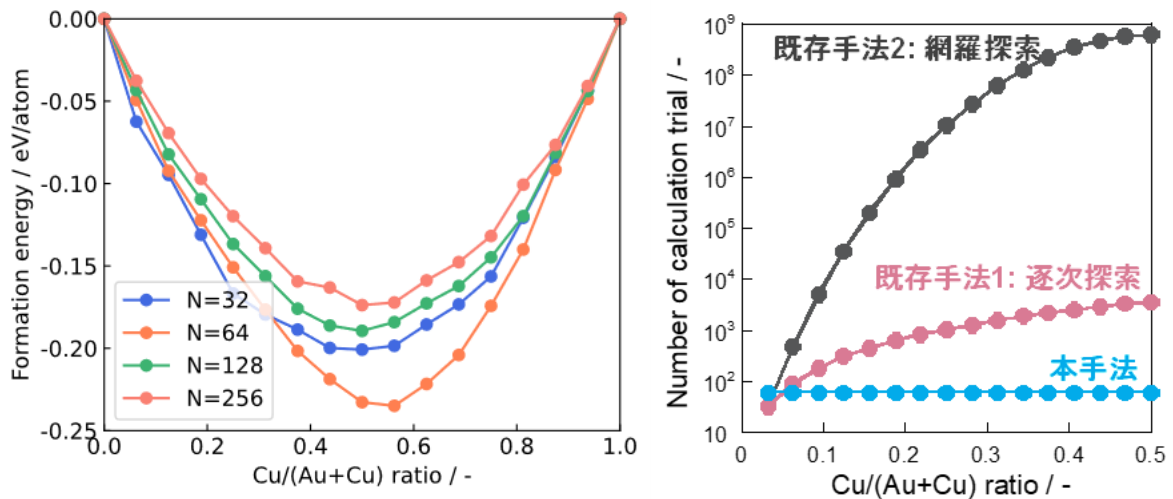


図 1. 2 元合金系におけるアニーリング結果とその計算回数

2) アニーリングマシンによる多元合金系の金属配置探索

多元合金系への応用に向けて、2 元合金系で構築したプログラムを多元系に拡張し、Pt-Ru-Ir (3 元合金)と Ru-Rh-Pd-Ag-Os-Ir-Pt-Au (8 元合金)を対象として検討を行った。2 元合金系では各金属位置に 1bit を設定してバイナリで金属種の区別ができるが、多元合金系では 3 種以上の金属種をバイナリ化するため、各金属位置に金属種数分の bit を設定することで多元合金の金属配置のバイナリ化を行った。結果として、使用する bit 数が増加するため、検討する系の金属数が著しく制限されるものの、指定した組成での金属配置をアニーリングマシンによる最適化により求めることができた。(図 2)

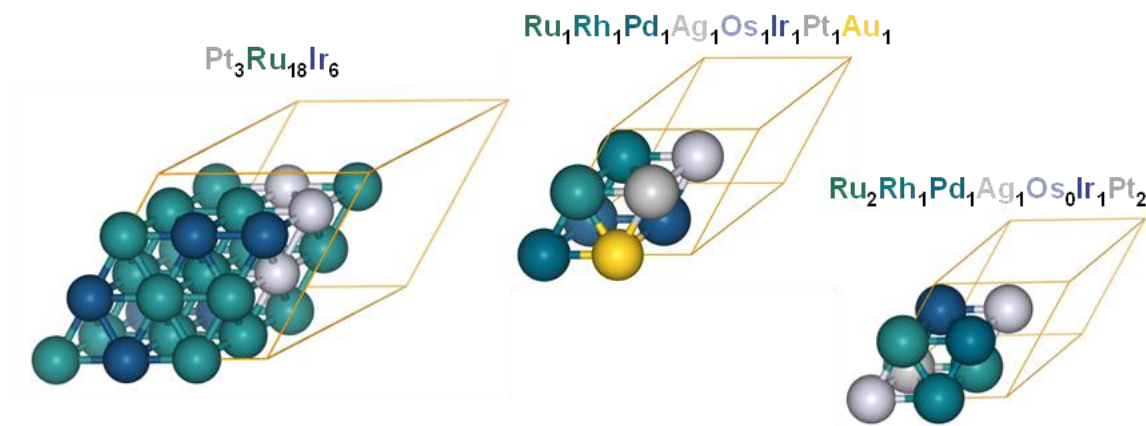


図 2. 多元合金における金属配置探索の例

3) 探索した金属配置に対する解析と可視化

アニーリングマシンで得られた形成エネルギーが最小となる金属配置に対して、種々の解析および可視化を行った。触媒化学研究者が得たい情報として、組成ごとのエネルギー変化や動径分布関数やX線回折スペクトルがあるため、それらの解析と可視化ができるプログラムを構築した。実際に実装できた可視化結果を図3に示す。

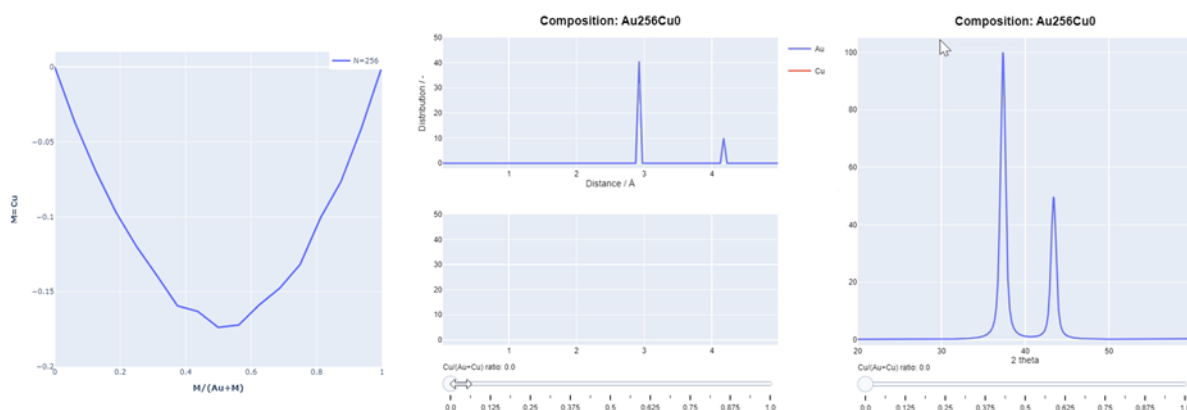


図3. 2元合金系に対する組成ごとの可視化
(左から、エネルギー変化、同径分布関数、X線回折スペクトル)

多元合金系に対しても同様に可視化を行うことで合金構造の理解を加速できるツールの実現を目指した。ここではtkinterによるGUIを利用して、スライダーの操作で組成を変化させた際のスペクトル変化をインタラクティブに確認できるようにプログラムを構築した。

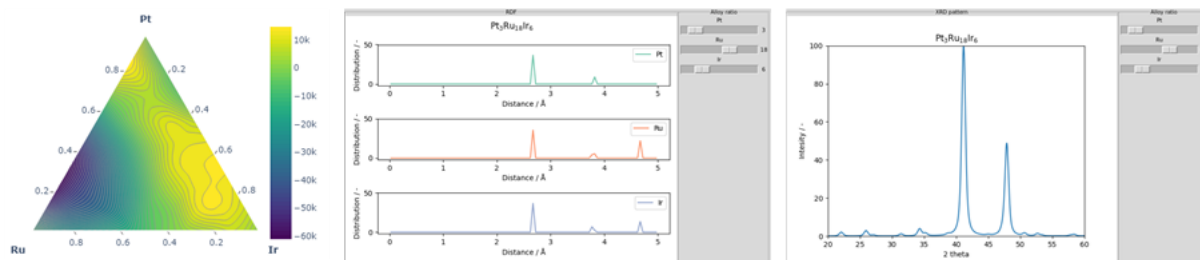


図4. 3元合金系に対する組成ごとの可視化
(左から、エネルギー変化、同径分布関数、X線回折スペクトル)

4. 新規性・優位性

多元合金の金属配置の理解に向けて実験的な観測を行うことは困難であり、理論的な予測においても計算コストと精度の間にトレードオフが存在している。その一方、本プロジェクトで開発したプログラムでは少ない計算コストで形成エネルギーの定式化を行うだけで、各組成の金属配置をアニーリングマシンによる探索により予測することができる点で優位性があると考えられる。また、近年高い触媒性能や特異な材料特性を示すことが報告されている3種以上の多元合金に対しても同様の金属配置

の探索およびその結果の可視化を行うことができ、多元合金の構造理解に対して新規性があると言える。

5. 期待されるユーザー価値と社会へのインパクト

本プロジェクトで開発したソフトウェアは主に触媒研究を行う研究者をユーザーとして想定しており、ユーザーが合金を用いた触媒を解析する際に利用することができる。これまでの手法ではより良い金属比率を探索するためには多くの時間を要するが、本ソフトウェアでは使用する金属種を入力していくつかの形成エネルギーの量子化学計算を行うだけで、各金属比率での金属配置を現実的な時間で得ることができる。各比率での金属配置とその物理化学的解析結果が得られれば、実験的に観測されたスペクトルなどと比較して最適な合金構造を予測することが可能となり、得られた金属配置の構造データに対して触媒反応の原料との相互作用の強さを量子化学計算で算出することで最適な電子状態を与える金属比率の探索が可能となる。以上のように金属種の入力と少しの量子化学計算を必要とする本ソフトウェアにより合金触媒開発の加速が期待される。また、アニーリングマシンによる最適化の結果から触媒化学研究者が求める情報の可視化まで一貫して出力できる点はユーザーとして出力結果が理解しやすい形になっていると考える。

上記で想定している触媒研究は日本に絞っても複数の大学や研究所で行われており、合金触媒に注目した論文数も近年増加傾向にある。そのため、本ソフトウェアは日本内外での触媒研究に対して大きな波及効果を持つことが予想される。さらに、合金の用途は触媒のみならず高機能材料として様々な用途にも応用されている。そういった高機能材料の創出という幅広い分野においても本プロジェクトでの成果は研究開発を加速できると考えられる。以上の波及により、二酸化炭素の燃料化や水素のエネルギー化などにおいて最適な触媒の創出が進み、2050年カーボンニュートラルの実現を達成することが期待できる。

6. 氏名（所属）

三瓶 大志（早稲田大学大学院 先進理工学研究科 応用化学専攻）

七種 紘規（早稲田大学大学院 先進理工学研究科 応用化学専攻）