

持続可能社会の実現に向けた金属電極触媒の第一原理計算 First-principles calculations of metal electrode catalysts for achieving a sustainable society

大谷 実

筑波大学 計算科学研究センター

1. 研究目的

現在、我が国および諸外国は、温室効果ガスの一つである二酸化炭素の排出量と吸収量が均衡するカーボンニュートラルによる持続可能社会を目指す取り組みを行なっている。このために、「化石燃料に代替する脱炭素燃料である水素を水から高効率かつ低コストで生成・運用(グリーン水素)」「化石燃料使用により発生した CO_2 を還元し、合成燃料へ変換する(カーボンサイクル)」といった多角的視点を持った技術基盤の開発が重要となる。

グリーン水素技術では、水の電気分解や燃料電池反応は特に重要であり、これまで多くの微視的な立場からの研究がある。しかし、金属表面における水分子の相互作用は複雑であり、完全に理解されたとは言い難い状況である。例えば、金属表面に吸着した水分子の表面拡散において、単分子の水よりも 2 分子ダイマーの拡散が早いなど直感と反する実験結果も報告されている。また、固液界面においても、金属表面に特異吸着した水分子が非常に大きい電気二重層キャパシタンスを発現する可能性があるなど興味深い実験が報告されているが、まだ理論的・実験的にもその原因は明らかになっていない。

また、カーボンサイクル技術では、Cu が C2 合成燃料のチャンピオン材料であるが、そのファラデー効率などは低く、実用性に至っていないという課題がある。そのため、Cu を超えるより高効率な合金触媒が求められている。

本研究では、金属電極表面への分子吸着とそのダイナミクスを念頭に置いて、第一原理計算手法による 1) 金属表面における水分子の吸着・拡散、および、2) 合金属表面における C, CO 分子の吸着 を申請者らが開発した、有効遮蔽媒質(ESM)法と古典溶液理論(RISM)を組み合わせた ESM-RISM 法や機械学習手法などを用いて実施する。1) 2) の課題に対して ESM および ESM-RISM を用いた第一原理計算を行うことにより金属との相互作用を正確に表現することで、理論的な知見を獲得し、さらに機械学習手法組み合わせることで新たな合金材料の提案を行うことを目的とする。

2. 研究成果の内容

本研究では、機械学習手法である証拠理論と DFT 計算を用いた C2 選択的な電気化学的 CO_2 還元反応 (eCO_2RR) 触媒のスクリーニングを実施した、無機材料データベースである ICSD に登録された FCC および BCC 構造の三元系までの合金に対し、(100)および(110)面での CO および C 吸着エネルギーを評価した。その後、証拠理論に基づいて C2 選択的な合金をスクリーニングする推奨システムを構築し、354 個のスラブが C2 選択条件を満たすことを確認した。さらに、データを用いた第 2 および第 3 のスクリーニングを行い、

最終的に 415 個の等組成四元系合金による C2 選択的スラブを特定した。

3. 学際共同利用プログラムが果たした役割と意義

C2 選択的 eCO₂RR 触媒のスクリーニングには、数百から数千に及ぶ合金スラブについての第一原理計算が必要であり、これらの計算は非常に高い計算資源を要するため、高性能計算基盤（スパコン）なしでは現実的に難しい。学際共同利用プログラムを通じたスパコンの利用により、これらの計算を短期間で実行することができ、研究の進行が大幅に加速された。

4. 今後の展望

本研究は、理論計算、機械学習を融合したデータ駆動型科学の典型例として、スパコンの支援があることで、こうした先進的手法が現実の研究に応用可能となり、今後の材料設計や触媒開発の在り方に対する重要な指針を得た。今後は、FCC、BCC の派生型構造以外の複雑な結晶の表面へ拡張、RISM による溶媒和効果を取り入れた計算の高度化とそれによる触媒性能予測の高精度化を行なっていく予定である。

5. 成果発表

(1) 学術論文

“Screening Multicomponent Alloys Using Evidence Theory and High-Throughput DFT Calculations for C2-Selective eCO₂RR”,
Fumiaki Kuroda, Masaya Ibe, Minoru Otani, J. Phys. Chem. C **128**, 41 17302 (2024).

(2) 学会発表

“証拠理論とハイスループット DFT 計算による C2 選択的 eCO₂RR 多元合金の探索” 黒田文彬, 井部将也, 大谷実（日本物理学会第 79 回年次大会, 口頭発表）

(3) その他

使用計算機	使用計算機に ○	配分リソース※		
		当初配分	移行*	追加配分
Cygnus	○	25200		24200
Pegasus				
Wisteria/BDEC-01	○	78400		
※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。 * バジェット移行を行った場合、「+2000」「-1000」のように記入				