

西村好史（早大理工総研）

量子分子動力学(QM-MD)計算は、系の電子状態と原子核の運動方程式をコンピュータ上で繰り返し解くことで原子・分子の運動を模擬し、物質・材料の構造・特性・ダイナミクスの微視的解析に資する技術である。経験的な古典力場に基づく MD 計算では取り扱いが困難な電子移動や化学反応が関与する現象を必要十分な精度で記述できる一方、計算コストの問題により計算規模が数百原子程度の簡単なモデル系に限定されるという困難を抱えている。我々は、線形スケールリング法・半経験的量子化学計算法・並列実装技術の融合によって数千原子以上の大規模 QM-MD 計算を現実的な計算時間で可能とするための手法・プログラムを開発してきた^{1,2)}。本研究では、金属サブナノ粒子とゼオライトが複合した複雑な反応場に対する大規模 QM-MD 計算により実験のみからは取得困難な活性点の原子ダイナミクスに関する情報を補完・説明可能とし、高効率 CO₂還元触媒システムの開発を支援することを目指している。

ゼオライト反応場との相互作用により金属サブナノ粒子の動的挙動が変化するかを調査するため、原子数 2-20 の銅サブナノ粒子に対して真空中・ゼオライト内包・ゼオライト表面のモデルを構築し、300 K あるいは 573 K で温度一定のシミュレーションを実行した。各ケースについて 50 ps のトラジェクトリを 4 本取得し、構造変化や電荷分布を比較解析した。図 1 A は Lindemann index³⁾と呼ばれる原子間距離の統計量に基づき熱的な構造揺らぎの度合いを記述する指標のサブナノ粒子数依存性である。Lindemann index は 0.1 で固相と液相の相転移の境界となることが知られており⁴⁾、ゼオライト反応場では銅サブナノ粒子の運動の流動性が真空中よりも増加することが数値的に示された。

金属サブナノ粒子による CO₂還元反応の動的過程を追跡するため、原子数 2-20 の白金サブナノ粒子に対して真空中・圧力 0.1 MPa の CO₂・圧力 1 MPa の CO₂条件下のモデルを構築し、300 K あるいは 573 K で温度一定のシミュレーションを実行した。各ケースについて 500 ps のトラジェクトリを 4 本取得し、化学種の経時変化を解析した結果、CO₂の白金サブナノ粒子への吸着後 C=O 結合の解離によって CO が生成する反応が観測された。図 1 B に示す Lindemann index の解析により、CO₂存在下では白金サブナノ粒子の構造揺らぎが真空中よりも大きい傾向にあることが示唆された。

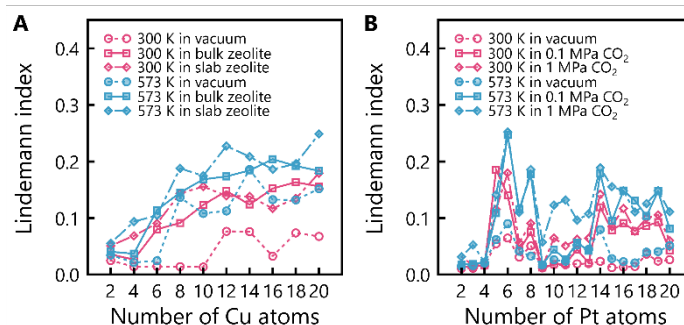


図 1. Lindemann index のサブナノ粒子数依存性。(A)真空中とゼオライト反応場の比較 (金属：銅)。(B) 真空中と CO₂存在下の比較 (金属：白金)。

- 1) H. Nishizawa, Y. Nishimura, M. Kobayashi, S. Irle, H. Nakai, *J. Comput. Chem.* **2016**, *37*, 1983.
- 2) Y. Nishimura, H. Nakai, *J. Comput. Chem.* **2019**, *40*, 1538.
- 3) F. A. Lindemann, *Phys. Z.* **1910**, *11*, 609.
- 4) S. K. Nayak, S. N. Khanna, B. K. Rao, P. Jena, *J. Phys.: Condens. Matter* **1998**, *10*, 10853.

PROFILE

西村好史（早稲田大学 理工学術院総合研究所 次席研究員（研究院講師））

①2013年名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻博士後期課程修了、博士（理学）。国立交通大學應用化学系博士後研究員、分子科学研究所理論・計算分子科学研究領域特任研究員、早稲田大学理工学研究所次席研究員を経て、2018年より現職。②量子化学・計算化学、特に量子分子動力学計算手法・プログラムの開発・実装③2017年日本化学会第97春季年会優秀講演賞（学術）④著書：該当なし⑤連絡先：y.nishimura@aoni.waseda.jp