

デジタルスクリーニングを用いた排ガス浄化用合金触媒の開発

(本田技術研究所¹) ○三上仁志¹・廣瀬 哲¹・竹折浩樹¹・迫田昌史¹・岡山竜也¹
Development of exhaust gas purification alloy catalyst in automobiles Using Digital Screening
(¹Honda R&D Co., Ltd) ○Hitoshi Mikami,¹ Satoshi Hirose,¹ Hiroki Takeori,¹ Masafumi Sakota,¹ Tatsuya Okayama¹

The creation of new materials is essential for the evolution of new products. However, because it depends on the researcher's experience, intuition, and luck, the conventional method limits the search range of elements and compositions and takes a lot of time. In addition to the conventional methods such as catalyst synthesis, activity evaluation, and mechanism elucidation by TEM and spectroscopic analysis, we have developed a digital screening method to search all elements comprehensively by utilizing the electronic structure calculation by first-principles calculation and unknown data prediction technology by machine learning¹⁻²⁾.

The surface electronic state is an important factor in catalysis, setting surface properties as response variable for digital screening. We have shown that the activity of supported metal catalysts is highly correlated with the charge and valence band states by XPS and XAFS analysis, and the charge distribution and Density of state by First-principles calculation³⁻⁴⁾. In Catalyst support effect, the adsorption property changes mainly due to the change in the charge distribution at the interface between the activity metal and the support. The alloy effect changes the gas adsorbed species due to the change in the electronic state of the supported metal.

In order to improve the purification performance and reduce the amount of precious metals used in automotive exhaust gas purification catalysts, we focused on the change of electronic state and improvement of activity by alloy catalysts. This article introduces the development of Pd alloy catalysts for high activity automobile catalysts using the digital screening method.
Keywords : Digital screening, First-principles calculation, Machine learning, Automotive catalyst, Alloy catalyst

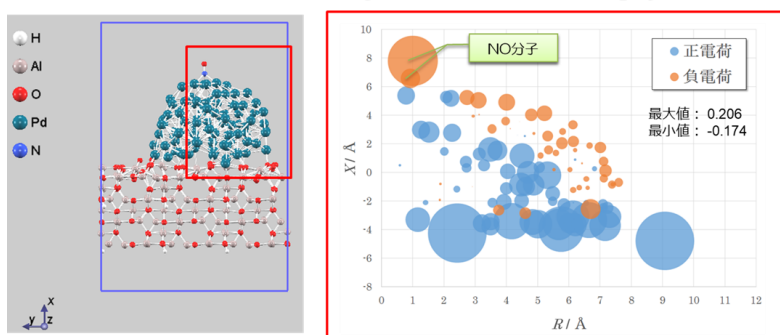
自動車に限らず新製品や製品進化には、新材料創出が必要不可欠であるが、従来は研究者の経験、勘と運に頼るため、元素、組成の探索範囲が限定されることがや多くの時間を必要とすることが問題となっている。我々は網羅的かつ効率的に材料探索をする手法として、触媒合成、活性評価による実験的スクリーニングと TEM 観察、分光分析などを用いたメカニズム解明といった従来手法に加え、第一原理計算による電子状態計算と機械学習による未知データ予測の技術を活かした全元素を網羅的に探索するデジタルスクリーニングの手法構築に取り組んできた¹⁻²⁾。

触媒作用は、材料の表面電子状態が重要因子となることが知られており、デジタルスクリーニングの目標変数には、計算可能な表面物性を設定する必要がある。我々は担持金属触媒の反応性と XPS 分析、XAFS 分析による電荷、価電子帯状態や密度汎関数理論による電荷分布や電子状態密度 (DOS) が高い相関性を有すことを明らかにし

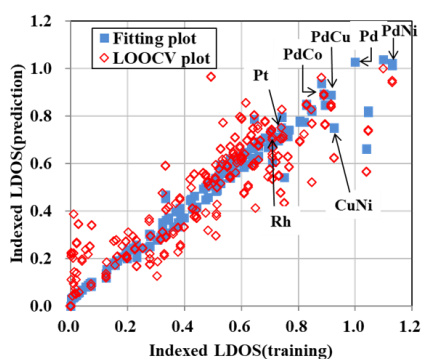
てきた^{3,4)}。担体効果は、主に担持金属と酸化物担体の界面での電荷分布変化によりガス吸着性が変化する。合金効果は、金属と担体界面から遠い担持金属の電子状態変化によりガス吸着状態が変化する。このように反応ガスに影響を与える電荷分布や価電子帯状態が触媒活性を決定づける因子であり、目標変数に設定する。

自動車排ガス浄化触媒の課題である浄化性能の向上と貴金属使用量の低減に対し、合金触媒による電子状態変化と反応性向上に着目した。使用可能な元素約 60 種類の 2 元素組合せ約 2000 通りから目標の表面電子状態となる合金候補をデジタルスクリーニングにより選定し、効率的に高活性なパラジウム合金触媒を創出した取組み詳細と今後の展望について紹介する。

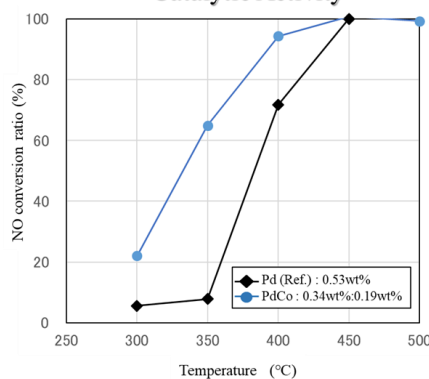
Mulliken charge distribution of Pd/Al₂O₃



Fitting result and LOOCV result



Catalytic Activity



- 1) Materials Research Method using Smart Materials Informatics, A. Furukawa, T. Ikeda, T. Okayama, *Honda R&D Technical Review*, **2017**, 29, 84.
- 2) Search for Alloy Catalyst for Automobile Exhaust Gas by Means of Integrated Flow of Experiments, First-principles Calculation, and Materials Informatics, S. Hirose, H. Mikami, M. Sakota, H. Takeori, T. Okayama, *Honda R&D Technical Review*, **2020**, 32, 97.
- 3) Perovskite lattice oxygen contributes to low-temperature catalysis for exhaust gas cleaning, T. Higo, K. Ueno, Y. Omori, H. Tsuchiya, S. Ogo, S. Hirose, H. Mikami, Y. Sekine, *RSC Adv.*, **2019**, 9, 22721.
- 4) Elucidation of Hydrocarbon Purification Mechanism of Catalyst for Lean Burn Engine Using Surface Analysis and Ab-initio Calculation with Large-scale Cluster Model, Y. Matsuo, S. Hirose, H. Takeori, T. Okayama, *Honda R&D Technical Review*, **2019**, 31, 86.