

平成19年 2月 16日

氏名 南雲 亮



## 21世紀COEプログラム

拠点：大学院工学系研究科  
応用化学専攻、化学システム工学専攻、  
化学生命工学専攻、マテリアル工学専攻

“化学を基盤とするヒューマンマテリアル創成”

平成18年度リサーチ・アシスタント報告書

ふりがな 氏名	なぐも りょう 南雲 亮	生年月日
所属機関名	大学院工学系研究科 化学システム工学専攻 中尾研究室	
所在地	東京都文京区本郷7-3-1 工学部5号館	
申請時点での 学年	博士課程3年	
研究題目	計算法学的手法を利用した ゼオライト膜炭化水素混合系分離システムの開発	
指導教員の所属・氏名	化学システム工学専攻 中尾 真一教授	

I 研究の成果 (1000字程度)

(図表も含めて分かりやすく記入のこと)

COE 研究プロジェクト『計算化学的手法を利用したゼオライト膜炭化水素混合系分離システムの開発』の一環として、平成 16 年 10 月より研究を開始した。ゼオライト膜の分離選択性能を高精度に予測すべく、計算化学的なアプローチの活用を念頭に置き、研究を進めてきた。以下に、得られた成果の概要を示す。

ゼオライトの工業ベースへの更なる応用を推進する上では、スケールアップの観点から、ゼオライト固有のパフォーマンスを指標づける各種物性値の推算が不可欠となる。中でも、ゼオライト細孔内におけるゲスト分子の『拡散係数』は、触媒の反応活性や寿命、分離膜の透過選択性能など、あらゆるパフォーマンスと密接に関連するため、推算法の確立が強く求められている。こうした背景から、本プロジェクトでは、分子動力学(MD)法を駆使しながら、細孔内拡散係数の系統的な予測法の開発を進めている。しかし、MD 法による拡散係数の定量化が、事実上不可能な拡散系も数多い。一般に、細孔内拡散係数は、『活性化拡散』の傾向を示し、高温から低温にかけ、急激に減少する。従って、温度の低下とともに、拡散係数の定量は困難を極める。にもかかわらず、現在の計算機性能では、定量可能な拡散係数が、およそ  $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$  以上のオーダーに限定されてしまう。 $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$  未満の『遅い』拡散係数を、いかにして高精度に予測するか、これが急務の課題である。

この課題を解決すべく、我々は、『遷移状態理論(TST)』の徹底活用による予測法の確立を目指し、様々な検討を重ねた。この TST を活用する際には、自由エネルギー計算が必須の要件となる。しかし自由エネルギー計算は、エネルギーの評価に必要なサンプリングの達成が極めて困難であるという、宿命的な課題を抱えている。そこで我々は、高温条件下での MD 計算を実行することで、ゲスト分子の拡散速度を加速化し、十分なサンプリングの達成を図った。同時に、古典統計力学理論に基づき、様々な温度条件下における拡散係数を推算した。その結果、LTA 型ゼオライト細孔内における  $\text{CH}_4$  および  $\text{CF}_4$  の拡散現象をモデル系として、本手法に基づく予測値が、MD 法による計算値を高精度に再現した。同時に、 $10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$  オーダーの『遅い』拡散係数の予測を実現した。

以上より、本プロジェクトで得られた成果は、ナノ細孔内における『遅い』拡散係数の高精度かつ系統的な予測の実現に向け、その端緒を開くものである。

氏 名 南 雲 亮

- II (1) 学術雑誌等に発表した論文A (掲載を決定されたものを含む.)  
共著の場合、申請者の役割を記載すること。  
(著者、題名、掲載誌名、年月、巻号、頁を記入)

II (2) 学会において申請者が口頭発表もしくはポスター発表した論文

(共同研究者(全員の氏名)、題名、発表した学会名、場所、年月を記載)

○Ryo Nagumo, Hirmotsu Takaba, Shin-ichi Nakao

『Development of a Novel Molecular Simulation Technique  
to Estimate "Slow Diffusion" Coefficients in Zeolitic Micropore Systems』  
ZMPC2006(International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals)  
米子コンベンションセンター(鳥取県米子市)

2006年7月

○南雲 亮、高羽 洋充、中尾 真一

『計算法的手法を利用したゼオライト細孔内拡散係数の高速計算』

化学工学会 第38回秋季大会

福岡大学(福岡県福岡市)

2006年9月

○Ryo Nagumo, Hirmotsu Takaba, Shin-ichi Nakao

『Development of a Methodology To Predict "Slow Diffusion" Coefficients  
in Zeolite Nanopores, Combining Molecular Dynamics Simulation  
and Transition State Theory』

4th COE 21 International Symposium  
on Human-Friendly Materials Based on Chemistry

東京大学(東京都文京区)

2006年10月

○南雲 亮、高羽 洋充、中尾 真一

『遷移状態理論と分子動力学法を利用したゼオライト細孔内拡散係数の高速計算』

膜シンポジウム2006

京都大学(京都府京都市)

2006年11月

○南雲 亮、高羽 洋充、中尾 真一

『分子動力学法による自由エネルギー計算を利用したナノ細孔内拡散係数の高速計算』

第20回分子シミュレーション討論会

仙台国際センター(宮城県仙台市)

2006年11月