

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2024年1月11日(11.01.2024)



(10) 国際公開番号  
**WO 2024/009918 A1**

(51) 国際特許分類:

*B01J 23/63* (2006.01) *B01J 23/656* (2006.01)  
*B01J 23/34* (2006.01) *B01J 23/755* (2006.01)  
*B01J 23/42* (2006.01) *B01J 23/888* (2006.01)  
*B01J 23/44* (2006.01) *B01J 23/889* (2006.01)  
*B01J 23/46* (2006.01) *B01J 23/89* (2006.01)  
*B01J 23/648* (2006.01) *C01C 1/04* (2006.01)  
*B01J 23/652* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/024491

(22) 国際出願日: 2023年6月30日(30.06.2023)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願 2022-107476 2022年7月4日(04.07.2022) JP

(71) 出願人: E N E O S 株 式 会 社 (ENEOS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008162 東京都千代田区大手町一丁目1番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 矢 山 由 洋 (YAYAMA, Yoshihiro); 〒1008162 東京都千代田区大手町一丁目1番2号 E N E O S 株式会社内 Tokyo (JP).  
宇賀神 拓也(UGAJIN, Takuya); 〒1008162 東京都千代田区大手町一丁目1番2号 E N E O S 株式会社内 Tokyo (JP).

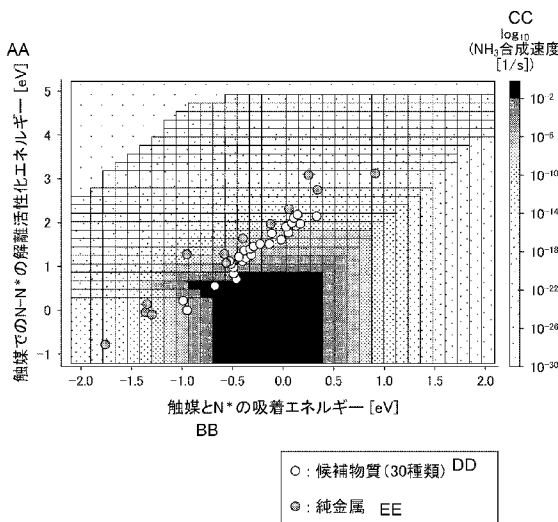
(74) 代理人: 伊東 忠重, 外(ITO, Tadashige et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号 丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 16階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK,

(54) Title: AMMONIA SYNTHESIS CATALYST AND AMMONIA SYNTHESIS METHOD

(54) 発明の名称: アンモニア合成触媒及びアンモニアの合成方法

【図19】



AA Dissociation activation energy of N-N\* in catalyst  
BB Adsorption energy of N\* to catalyst  
CC (NH<sub>3</sub> synthesis rate [1/sec])  
DD Candidate substance (30 types)  
EE Pure metal

(57) Abstract: An ammonia synthesis catalyst according to the present invention contains one or more components selected from the group consisting of IrSc, FePd<sub>3</sub>, MnTc<sub>3</sub>, IrY, CrPd<sub>3</sub>, MnPd<sub>3</sub>, RhY, Co<sub>3</sub>Pt, CrPt<sub>3</sub>, FeRh<sub>3</sub>, CrRh<sub>3</sub>, Ni<sub>3</sub>Ti, Ir<sub>3</sub>V, Pt<sub>3</sub>Ti, Co<sub>3</sub>Rh, Pd<sub>3</sub>Ti, Ni<sub>3</sub>Zr, Co<sub>3</sub>W, NiPd<sub>3</sub>, FeNi<sub>3</sub>, Ir<sub>3</sub>Mn, IrMn, MnPt, MnNi<sub>3</sub>, Ir<sub>3</sub>Re, MnRh, Pd<sub>3</sub>V, MnPt<sub>3</sub>, Rh<sub>3</sub>V, and Rh<sub>3</sub>Ti.

(57) 要約: 本発明に係るアンモニア合成触媒は、IrSc、FePd<sub>3</sub>、MnTc<sub>3</sub>、IrY、CrPd<sub>3</sub>、MnPd<sub>3</sub>、RhY、Co<sub>3</sub>Pt、CrPt<sub>3</sub>、FeRh<sub>3</sub>、CrRh<sub>3</sub>、Ni<sub>3</sub>Ti、Ir<sub>3</sub>V、Pt<sub>3</sub>Ti、Co<sub>3</sub>Rh、Pd<sub>3</sub>Ti、Ni<sub>3</sub>Zr、Co<sub>3</sub>W、NiPd<sub>3</sub>、FeNi<sub>3</sub>、Ir<sub>3</sub>Mn、IrMn、MnPt、MnNi<sub>3</sub>、Ir<sub>3</sub>Re、MnRh、Pd<sub>3</sub>V、MnPt<sub>3</sub>、Rh<sub>3</sub>V及びRh<sub>3</sub>Tiからなる群から選択された1種以上の成分を含む。

SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,  
UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

## 明 細 書

発明の名称： アンモニア合成触媒及びアンモニアの合成方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、アンモニア合成触媒及びアンモニアの合成方法に関する。

### 背景技術

[0002] 近年、水素エネルギーのエネルギーキャリア等の用途に応用することが可能な成分としてアンモニア ( $\text{NH}_3$ ) が注目されている。このようなアンモニアを合成する方法として、触媒として鉄系触媒を用いたハーバー・ボッシュ (HB) 法が工業的に利用されている。近年では、HB法よりも穏やかな条件でアンモニアを合成することを目的として、様々な種類のアンモニア合成触媒の研究が進められている。

[0003] 例えば、酸化プラセオジム担体にルテニウムを層状に担持したアンモニア合成触媒が開示されている（例えば、特許文献1参照）。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0004] 特許文献1：日本国特開2016-155123号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0005]  $\text{NH}_3$ をHB法を用いて合成する際、 $\text{NH}_3$ の合成は高温及び高圧の条件下で行われるため、 $\text{NH}_3$ の合成の際に生じる $\text{CO}_2$ 排出量の低減及びエネルギー効率の向上を図る観点から、 $\text{NH}_3$ をより効率的に合成することが可能な $\text{NH}_3$ 合成触媒が求められている。

[0006] 本発明の一態様は、 $\text{NH}_3$ をより効率よく合成することを可能とするアンモニア合成触媒を提供することを目的とする。

#### 課題を解決するための手段

[0007] 本発明の一態様は、

$\text{IrSc}$ 、 $\text{FePd}_3$ 、 $\text{MnTc}_3$ 、 $\text{IrY}$ 、 $\text{CrPd}_3$ 、 $\text{MnPd}_3$ 、 $\text{Rh}$

Y、 $\text{Co}_3\text{Pt}$ 、 $\text{CrPt}_3$ 、 $\text{FeRh}_3$ 、 $\text{CrRh}_3$ 、 $\text{Ni}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ir}_3\text{V}$ 、 $\text{Pt}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Co}_3\text{Rh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ni}_3\text{Zr}$ 、 $\text{Co}_3\text{W}$ 、 $\text{NiPd}_3$ 、 $\text{FeNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Mn}$ 、 $\text{IrMn}$ 、 $\text{MnPt}$ 、 $\text{MnNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Re}$ 、 $\text{MnRh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{V}$ 、 $\text{MnPt}_3$ 、 $\text{Rh}_3\text{V}$ 及び $\text{Rh}_3\text{Ti}$ からなる群から選択された1種以上の成分を含むアンモニア合成触媒である。

## 発明の効果

[0008] 本発明の一態様は、 $\text{NH}_3$ をより効率よく合成することを可能とする。

## 図面の簡単な説明

[0009] [図1]触媒の選択方法が適用される触媒の選択システムの構成を示す図である。

[図2]データテーブルの一例を示す図である。

[図3]触媒を用いた $\text{NH}_3$ 合成の各素反応におけるエネルギーの大きさの関係の一例を示す図である。

[図4]触媒の選択装置の構成を示す機能ブロック図である。

[図5]活性マップの一例を示す図である。

[図6]触媒が鉄である場合の界面と $\text{NH}_3$ 合成速度との関係の一例を示す図である。

[図7]第1算出部の構成の一例を示す機能ブロック図である。

[図8]データテーブルの候補物質を並び替える時の説明図である。

[図9]第2算出部の構成の一例を示す機能ブロック図である。

[図10]触媒の選択装置のハードウェア構成を示すブロック図である。

[図11]触媒の選択方法を示すフローチャートである。

[図12]窒素の中間体と触媒との吸着エネルギーと、触媒での窒素の中間体の遷移状態の解離活性化エネルギーとの関係を示す活性マップの一例を示す図である。

[図13]第1エネルギー算出工程の一例を示すフローチャートである。

[図14]候補物質の記述子をプロットした結果の一例を示す図である。

[図15]第2エネルギー算出工程の一例を示すフローチャートである。

[図16] 30種類の2次スクリーニング候補物質をプロットした活性マップの一例を示す図である。

[図17] 基準触媒上での中間体又は遷移状態のエネルギーをDFT計算により算出したエネルギーと、横軸と同じ基準触媒上での中間体又は遷移状態のエネルギーを触媒の選択方法により算出したエネルギーとの相関を示す図である。

[図18] 触媒の選択方法により選択された触媒と、DFT計算を用いて作成した触媒の活性マップを比較した図である。

[図19] 触媒の選択方法により選択された30種類の合金を触媒の選択方法を用いて作成した活性マップにプロットした状態の一例を示す図である。

[図20] 触媒の製造方法の一例を示すフローチャートである。

[図21] CrRh合金の2310種類の構造の、Rhの比率と、エネルギーとの関係をプロットした図である。

[図22] IrMn合金の2310種類の構造の、Mnの比率と、エネルギーとの関係をプロットした図である。

[図23] 候補触媒及び参照触媒の、触媒と窒素の中間体 ( $N^*$ ) との吸着エネルギー ( $E_N$ ) と、候補触媒及び参照触媒により合成される  $NH_3$  合成速度の計算結果との関係を示す図である。

[図24] 参照触媒の、触媒と窒素の中間体 ( $N^*$ ) との吸着エネルギー ( $E_N$ ) と、合成される  $NH_3$  合成速度との実験結果を示す図である。

### 発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明の実施形態について、詳細に説明する。なお、説明の理解を容易にするため、各図面において同一の構成要素に対しては同一の符号を付して、重複する説明は省略する。また、本明細書において数値範囲を示す「～」は、別段の断わりがない限り、その前後に記載された数値を下限値及び上限値として含むことを意味する。

[0011] < $NH_3$  合成触媒>

本発明の実施形態に係る  $NH_3$  合成触媒について説明する。本実施形態に係

る $\text{NH}_3$ 合成触媒は、 $\text{IrSc}$ 、 $\text{FePd}_3$ 、 $\text{MnTc}_3$ 、 $\text{IrY}$ 、 $\text{CrPd}_3$ 、 $\text{MnPd}_3$ 、 $\text{RhY}$ 、 $\text{Co}_3\text{Pt}$ 、 $\text{CrPt}_3$ 、 $\text{FeRh}_3$ 、 $\text{CrRh}_3$ 、 $\text{Ni}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ir}_3\text{V}$ 、 $\text{Pt}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Co}_3\text{Rh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ni}_3\text{Zr}$ 、 $\text{Co}_3\text{W}$ 、 $\text{NiPd}_3$ 、 $\text{FeNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Mn}$ 、 $\text{IrMn}$ 、 $\text{MnPt}$ 、 $\text{MnNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Re}$ 、 $\text{MnRh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{V}$ 、 $\text{MnPt}_3$ 、 $\text{Rh}_3\text{V}$ 及び $\text{Rh}_3\text{Ti}$ の少なくとも1つ以上の成分を含む。これらの成分は、1種単独で含んでもよいし、2種以上を含んでもよい。

[0012] 本実施形態に係る $\text{NH}_3$ 合成触媒は、 $\text{IrSc}$ 、 $\text{FePd}_3$ 、 $\text{MnTc}_3$ 、 $\text{IrY}$ 、 $\text{CrPd}_3$ 、 $\text{MnPd}_3$ 、 $\text{RhY}$ 、 $\text{Co}_3\text{Pt}$ 、 $\text{CrPt}_3$ 、 $\text{FeRh}_3$ 、 $\text{CrRh}_3$ 、 $\text{Ni}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ir}_3\text{V}$ 、 $\text{Pt}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Co}_3\text{Rh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ni}_3\text{Zr}$ 、 $\text{Co}_3\text{W}$ 、 $\text{NiPd}_3$ 、 $\text{FeNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Mn}$ 、 $\text{IrMn}$ 、 $\text{MnPt}$ 、 $\text{MnNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Re}$ 、 $\text{MnRh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{V}$ 、 $\text{MnPt}_3$ 、 $\text{Rh}_3\text{V}$ 及び $\text{Rh}_3\text{Ti}$ の何れか1種の成分からなることが好ましい。

[0013] 本実施形態に係る $\text{NH}_3$ 合成触媒は、後述する、触媒の選択システム及び触媒の選択方法により選択したものである。上記触媒の選択システム等においては、 $\text{NH}_3$ 合成の素反応を解析して選択した記述子を用いているため、効率的かつ精度良く活性化エネルギーを下げる触媒を選択できる。このため、上記触媒の選択システム等により選択された触媒を $\text{NH}_3$ 合成に用いることで、 $\text{NH}_3$ 合成時の必要なエネルギーを下げるができるため、 $\text{NH}_3$ を効率よく合成することができる。

[0014]  $\text{NH}_3$ は、水素キャリアの有力候補の一つとして注目されている。 $\text{NH}_3$ は、一般に、 $\text{HB}$ 法を用いて合成されるが、高温高圧で行うため、 $\text{CO}_2$ 排出量の削減、エネルギー効率の観点から、 $\text{NH}_3$ を高効率で製造する上で、効率良く $\text{NH}_3$ を合成できる $\text{NH}_3$ 合成触媒を使用することは重要である。本実施形態に係る $\text{NH}_3$ 合成触媒は、 $\text{NH}_3$ を効率良く合成できるため、 $\text{NH}_3$ の製造の向上を図ることができる。

[0015] <触媒の選択システム>

図1は、触媒の選択方法が適用される触媒の選択システムの構成を示す図

である。図 1 に示すように、触媒の選択システム 1 は、触媒の選択装置 10 と、記憶部 20 と、機械学習ポテンシャル 30 とを有している。触媒の選択システム 1 では、触媒の選択装置 10、記憶部 20 及び機械学習ポテンシャル 30 は、通信ネットワーク 40 を介して接続され、触媒の選択装置 10、記憶部 20 及び機械学習ポテンシャル 30 への入力値と、触媒の選択装置 10、記憶部 20 及び機械学習ポテンシャル 30 の出力値は、通信ネットワーク 40 を介して送信されてよい。記憶部 20 及び機械学習ポテンシャル 30 の少なくとも一方は、クラウド上に格納されてもよい。

[0016] なお、本実施形態では、触媒の選択装置 10、記憶部 20 及び機械学習ポテンシャル 30 は、通信ネットワーク 40 を介して接続されているが、有線で接続されてもよい。また、触媒の選択システム 1 は、各構成を装置内に備えた、PC (Personal Computer) 等の単独の装置としてもよい。

[0017] 触媒の選択装置 10 は、機械学習ポテンシャル 30 を用いて、原料である  $H_2$  及び  $N_2$  から目的生成物である  $NH_3$  を合成する触媒反応のための  $NH_3$  合成触媒の候補を選択する。なお、触媒の選択装置 10 の詳細については後述する。

[0018] 記憶部 20 は、触媒及び吸着物質等の情報、機械学習ポテンシャル 30 を用いて最適化した触媒及び吸着物質の構造及びエネルギーと、スケーリングラインに対する乖離等を含むデータテーブルを記憶している。

[0019] データテーブルの一例を図 2 に示す。図 2 に示すように、データテーブルには、触媒及び吸着物質等の情報と、機械学習ポテンシャル 30 を用いて最適化した触媒及び吸着物質の構造及びエネルギーと、スケーリングラインに対する乖離等に関する情報が記録される。

[0020] スケーリングラインに対する乖離は、同一触媒組成、同一結晶面において、機械学習ポテンシャル 30 を用いて最適化したエネルギーの座標 ( $N^*$  の吸着エネルギーと、 $N - N^*$  の解離活性化エネルギーとの座標) と、 $N^*$  の吸着エネルギーにおけるスケーリングライン上の座標との間の、 $N - N^*$  の解離活性化エネルギーの差である。そのため、スケーリングラインとの乖離は、 $N$

—  $N^*$  の解離活性化エネルギーについてのみ算出される。

[0021] 触媒は、単体の金属等でもよいし、複数の金属を含む合金でもよいし、金属を含む化合物でもよい。

[0022] 触媒の情報としては、触媒名（触媒組成）、触媒の結晶面の情報等が挙げられる。

[0023] 触媒名としては、例えば、 $CoRh$  等が挙げられる。

[0024] 触媒の結晶面としては、例えば、 $[001]$ 、 $[111]$ 、 $[211]$  等が挙げられる。

[0025] 吸着物質は、目的生成物の生成に用いられる成分であり、窒素 ( $N_2$ )、水素 ( $H_2$ ) である。

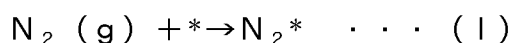
[0026] 吸着物質の情報としては、吸着物質名等が挙げられる。

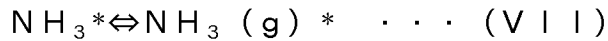
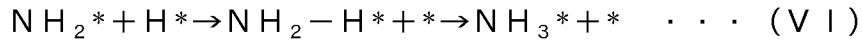
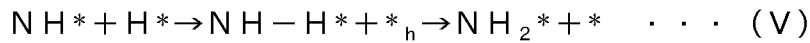
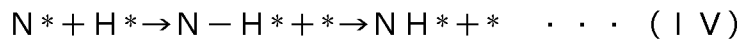
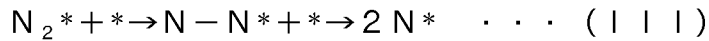
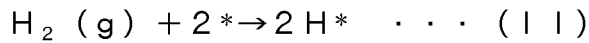
[0027] 吸着物質名としては、吸着物質なし、 $N^*$ 、 $N-N^*$  等が挙げられる。

[0028] 最適化した触媒及び吸着物質の構造としては、物質の中間体構造、遷移状態構造等が挙げられる。

[0029] 最適化した触媒及び吸着物質のエネルギーは、触媒反応のエネルギー等がある。触媒反応のエネルギーとしては、触媒反応において原料である  $H_2$  及び  $N_2$  から目的生成物である  $NH_3$  を合成する過程における複数の素反応に登場する反応成分のエネルギー等が挙げられる。反応成分は、原料、原料の中間体及び中間体の遷移状態等である。触媒において原料から目的生成物を合成する過程における素反応で生じる原料の中間体の遷移状態と触媒との解離活性化エネルギー、中間体と触媒との吸着エネルギー等が挙げられる。

[0030]  $NH_3$  合成の素反応は、例えば、下記の式 (I) ~ (VII) を含む。なお、式中、「\*」は、原料に含まれる元素、分子等の反応成分が吸着する触媒の表面の空の吸着サイトを意味する。式 (I) ~ (VII) において、原料は、 $N_2$ 、 $H_2$  であり、原料の中間体は、 $N_2^*$ 、 $H^*$ 、 $NH^*$ 、 $NH_2^*$ 、 $NH_3^*$  であり、中間体の遷移状態は、 $N-N^*$ 、 $N-H^*$ 、 $NH-H^*$ 、 $NH_2-H^*$  である。





[0031] これらの式における触媒を用いた $\text{NH}_3$ 合成の各素反応におけるエネルギーの大きさの関係の一例を図3に示す。図3に示すように、原料である $\text{H}_2$ 及び $\text{N}_2$ から目的生成物である $\text{NH}_3$ が合成される過程において、上記式(I)～(V I I)のうち、式(I I I)における、触媒での窒素の中間体の遷移状態である $\text{N}-\text{N}^*$ の解離活性化エネルギー( $E_{\text{N}-\text{N}}$ )が最も大きく、窒素の中間体である $\text{N}^*$ と触媒との吸着エネルギー( $E_{\text{N}}$ )が略一定になっており最も安定している。上記の各式の中でも、触媒での $\text{N}-\text{N}^*$ の解離活性化エネルギー( $E_{\text{N}-\text{N}}$ )と $\text{N}^*$ と触媒との吸着エネルギー( $E_{\text{N}}$ )とが、 $\text{NH}_3$ の合成に大きく影響するため、記述子として好適に用いることができる。

[0032] 機械学習ポテンシャル30は、原子の構造に関する情報からエネルギーを出力する、機械学習手法を用いた原子間ポテンシャルが適用される。機械学習ポテンシャルとしては、例えば、ニューラルネットワークポテンシャル(N N P : Neural Network Potential)、ガウス近似ポテンシャル(G A P : Gaussian Approximation Potential)、ペクトル隣接解析ポテンシャル(S N A P : Spectral Neighbor Analysis Potential)、モーメントテンソルポテンシャル(M T P : Moment Tensor Potential)等が挙げられる。これらの中でも、機械学習ポテンシャルとしては、ニューラルネットワークの持つ高い柔軟性の点から、N N Pが好ましい。N N Pとしては、M A T L A N T I S (登録商標)を使用してもよい。

[0033] [触媒の選択装置]

図4は、触媒の選択装置10の構成を示す機能ブロック図である。図4に示すように、触媒の選択装置10は、記述子選択部11、マップ作成部12

、準備部 13、第 1 算出部 14、第 1 プロット部 15、第 1 スクリーニング部 16、第 2 算出部 17、第 2 プロット部 18、第 2 スクリーニング部 19、絞り込み部 21 及び出力部 22 を有する。

[0034] 記述子選択部 11 は、上記式 (I) ~ (V I I) のような触媒反応の素反応に含まれる中間体構造又は遷移状態構造のエネルギーを記述子として選択する。

[0035] マップ作成部 12 は、記述子と触媒反応の反応性について表したマップ（活性マップ）を作成する。なお、活性マップに代えて、記述子と触媒反応の選択性について表したマップを作成してもよい。

[0036] また、活性マップでは、記述子と触媒の反応性（選択性）の関係性が明らかとなることから、記述子を入力すると触媒の反応性（選択性）を予測するモデルとみなし、直接、記述子から触媒の反応性を予測してもよい。活性マップをモデルとみなすことにより、第 1 算出部 14 及び第 2 算出部 17 において求めた記述子から直接触媒の反応性を予測し、データテーブル（図 8 参照）を用いて反応性に応じて候補物質をスクリーニングしてもよい。この場合、触媒の選択装置 10 は、第 1 プロット部 15 及び第 2 プロット部 18 を備えなくてもよい。

[0037] 活性マップの一例を図 5 に示す。図 5 は、 $\text{NH}_3$  合成における反応成分の素反応（上記の式 (I) ~ (V I I) 参照）のうちの 2 つの記述子と、 $\text{NH}_3$  の合成速度（ $\text{NH}_3$  合成速度）との関係を表す。なお、図 5 中の  $\text{NH}_3$  合成速度は、合成される  $\text{NH}_3$  の収率を表す。図 5 に示す活性マップで用いる 2 つの記述子を記述子 1 及び 2 とする。上述の通り、上記式 (I) ~ (V I I) のうち、触媒での窒素の中間体の遷移状態 ( $\text{N}-\text{N}^*$ ) の解離活性化エネルギー ( $E_{\text{N}-\text{N}}$ ) と窒素の中間体 ( $\text{N}^*$ ) と触媒との吸着エネルギー ( $E_{\text{N}}$ ) とが、 $\text{NH}_3$  の合成に大きく影響する。このため、記述子 1 及び 2 は、 $\text{N}^*$  と触媒との吸着エネルギー ( $E_{\text{N}}$ ) と、触媒での  $\text{N}-\text{N}^*$  の解離活性化エネルギー ( $E_{\text{N}-\text{N}}$ ) とを用いることが好ましい。

[0038] 活性マップは、例えば、記述子を用いた *Microkinetics* によ

り作成できる。本実施形態では、触媒が $\text{NH}_3$ 合成触媒であり、 $\text{NH}_3$ 合成反応を生じさせる場合であるため、記述子としては、上述の通り、上記の $\text{NH}_3$ 合成における反応成分の素反応（上記の式（I）～（VII）参照）の式中の、 $\text{N}^*$ と $\text{N}-\text{N}^*$ のエネルギーを用いることが好ましい。 $\text{N}^*$ と $\text{N}-\text{N}^*$ のエネルギーを記述子とすると、触媒の反応速度の大きさに基づいて複数の触媒間に直線関係があるように現すことができるため、反応速度の大きさに基づいて活性が高い領域を視覚的に簡易に把握できるマップが得られる。活性マップに現される直線は、後述するように、触媒の反応速度の閾値となるスケールライン（図5参照）として用いることができる。

[0039] ここで、記述子を用いたMicrokineticsを説明するに当たり、一般的なMicrokineticsを説明する。一般的なMicrokineticsは、以下の通り、素反応列挙、エネルギー計算及び反応速度計算からなる。

1. 素反応列挙：

$\text{NH}_3$ 合成に関する素反応を全て書き出す。

2. エネルギー計算：

特定の触媒の表面（例えば、触媒の（111）面）で、書き出した素反応に含まれる全ての中間体及び遷移状態のエネルギーを機械学習ポテンシャル30で計算する。

3. 反応速度計算：

求めたエネルギーを反応速度式に変換し、連立常微分方程式を解くことで、上述の「1. 素反応列挙」で求めた各素反応の反応速度を得る。そして、 $\text{NH}_3$ 合成に関する素反応の（VII）式の「 $\text{NH}_3^* \rightleftharpoons \text{NH}_3(\text{g})^*$ 」の速度を出力して、触媒の表面（例えば、触媒の（111）面）における $\text{NH}_3$ 合成速度を得る。

[0040] 次に、記述子を用いたMicrokineticsを説明する。記述子を用いたMicrokineticsの実行手順は、以下の通りである。

1. 準備：

1-1.  $\text{NH}_3$  合成に関する全ての素反応を記述する。

1-2.  $\text{NH}_3$  合成に関する素反応において生じる、全ての中間体と遷移状態を算出する。例えば、いくつかの基準触媒に関して、全ての中間体と遷移状態を算出する。即ち、これらの基準触媒を用いた時に生じる、全ての中間体と遷移状態を計算する。そして、全ての中間体と遷移状態の中から、記述子に用いる2つの反応成分（例えば、中間体又は遷移状態）だけを選んで、2つの記述子（例えば、 $\text{N}^*$ の吸着エネルギー、 $\text{N}-\text{N}^*$ の解離活性化エネルギー）を計算する。その他のパラメータ（例えば、中間体のエネルギー、遷移状態のエネルギー）は、記述子からの線形回帰で取得する。

2. 活性マップ作成：

2つの記述子の値を定めると、書き出した全ての素反応に含まれる全ての中間体及び遷移状態のエネルギーを線形回帰から得ることができ、上記の、一般的な *Microkinetics* の「3. 反応速度計算：」で説明した *Microkinetics* により  $\text{NH}_3$  合成速度を得ることができる。任意の範囲で2つの記述子の値を変えて  $\text{NH}_3$  合成速度をそれぞれ算出することにより、図5に示すような活性マップを得ることができる。

3. 新規触媒スクリーニング：

新しい触媒に対しては、既に、上記の「2. 活性マップ作成：」で2つの記述子エネルギーと  $\text{NH}_3$  合成速度の関係性が明らかとなっていることから、2つの記述子（例えば、 $\text{N}^*$ の吸着エネルギー、 $\text{N}-\text{N}^*$ の解離活性化エネルギー）だけを計算することで、その触媒の合成速度を知ることができる。

[0041] 一般的な *Microkinetics* を行うためには、上述の通り、素反応に含まれる全ての中間体及び遷移状態のエネルギーを計算する必要があるため、膨大な数のパラメータを計算する必要がある。これに対し、記述子を用いた *Microkinetics* を行う際は、事前に基準触媒上で素反応中の全ての中間体及び遷移状態のエネルギーを計算しておくことで、未知の触媒に対しても二つの記述子に相当する計算だけで済む。二つの記述子を X 軸-Y 軸でプロットし、活性マップを作成すると、活性マップから直感的に

触媒の反応速度が高い領域（後述する、高活性領域）に属する $\text{NH}_3$ 合成触媒を把握できる。

[0042] なお、記述子は、2つに限定されず、1つ又は3つ以上でもよく、触媒の反応速度に影響のある記述子を用いるのがよい。また、上記の、その他のパラメータの算出には、線形回帰だけでなく、非線形回帰手法等を用いてもよい。

[0043] 図4に示すように、準備部13は、触媒の候補物質を複数種類準備する。

[0044] 触媒の候補物質は、 $\text{NH}_3$ の合成に使用されている材料、 $\text{NH}_3$ の合成への使用が検討されている材料、 $\text{NH}_3$ の合成に使用されたことがない材料等である。材料は、金属単体でもよいし、複数の金属を含む合金でもよいし、金属の酸化物、窒化物、炭化物等の金属化合物でもよい。候補物質は、一の候補物質の表面の1種類の元素が別の異なる元素に置換された物質を、一の候補物質とは異なる他の候補物質として含んでよい。

[0045] 触媒の候補物質の数は、特に限定されず適宜選択可能であり、例えば、数十個、数百個、数千個等でもよい。

[0046] 候補物質は、結晶面が異なる表面を複数有する場合、候補物質は、結晶面が異なる表面毎に複数準備してもよい。候補物質の表面に現れる候補物質の結晶面によって、候補物質と元素との反応速度が異なる傾向にある。例えば、触媒が鉄（Fe）である場合における、鉄の表面の結晶面と $\text{NH}_3$ 合成速度との関係の一例を図6に示す。図6に示すように、触媒が鉄である場合、触媒の表面の結晶面によって $\text{NH}_3$ 合成速度は異なり、結晶面が（111）面又は（211）面である場合は、他の結晶面の場合よりも、触媒は、高い $\text{NH}_3$ 合成速度を有する。そのため、候補物質の表面は、結晶面毎に複数準備することが好ましい。

[0047] 図4に示すように、第1算出部14は、準備部13で用意した候補物質を全て固定した状態で、候補物質を用いた触媒反応に関する記述子を算出する。

[0048] 本実施形態では、記述子として、候補物質の表面に原料（ $\text{N}_2$ 、 $\text{H}_2$ ）由来

の物質を含む反応成分の中間体が吸着する第 1 中間体エネルギー、及び候補物質の表面に反応成分の中間体の遷移状態が吸着した後、反応成分が 2 以上の物質に分離する分離素反応における第 1 遷移状態エネルギーを含む第 1 エネルギーを算出する。

[0049] なお、全て固定した状態とは、候補物質が  $N_2$  及び  $H_2$  と反応する際に、候補物質の位置や結晶構造が動かないと仮定し、固定された状態を意味する。

[0050] また、第 1 算出部 14 は、第 1 中間体エネルギー又は第 1 遷移状態エネルギーのみを第 1 エネルギーとして算出してもよい。

[0051] 第 1 算出部 14 は、機械学習ポテンシャル 30 を用いて、記述子を算出することが好ましい。第 1 算出部 14 は、機械学習ポテンシャル 30 を用いることで、密度汎関数理論 (DFT) に基づく第一原理計算 (DFT 計算) 等を用いた場合と比較して記述子の算出時間を短縮できる。

[0052] 第 1 算出部 14 は、記述子の算出を 1 回の計算で決めてもよいし、複数回 (例えば、10 回) の計算で決めてもよい。複数回計算する場合は、複数回の計算値の平均値を用いてもよいし、複数の計算値の最大値又は最小値でもよい。

[0053] 記述子が第 1 中間体エネルギーである場合、第 1 算出部 14 は、候補物質を全て固定した状態で、素反応に含まれる候補物質の表面における原料由来の物質を含む反応成分の吸着位置を変化させ、候補物質と反応成分とを含む中間構造体について、構造の最適化を行うことが好ましい。これにより、第 1 算出部 14 は、安定な構造を有する中間構造体を選択できる。

[0054] なお、最適化とは、所定の構造の際のエネルギーが最も低くなるような最適値を求めることをいう。なお、以下の最適化も同様の意味である。

[0055] 第 1 算出部 14 は、候補物質に対する反応成分の吸着位置が最適であり、かつ候補物質と反応成分の中間体との第 1 中間体エネルギーが最も安定した構造を抽出することが好ましい。これにより、第 1 算出部 14 は、低精度であるが短時間で反応成分の中間体の第 1 中間体エネルギーを取得できる。

[0056] また、第 1 算出部 14 は、図 7 に示すように、第 1 構造最適化部 141、

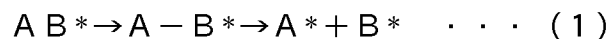
第2構造最適化部142及び第1遷移状態エネルギーの取得部143を有することが好ましい。これにより、第1算出部14は、記述子が中間体の遷移状態の遷移状態エネルギーである場合に、低精度であるが短時間で第1遷移状態エネルギーを取得できる。

[0057] 第1構造最適化部141は、1分子から2分子になる分離素反応に含まれる候補物質の表面における反応成分の候補物質と反応成分とを含む中間構造体について構造の最適化を行い、第1最適化構造を算出する。即ち、第1構造最適化部141は、1分子から2分子になる分離素反応において、候補物質の構造を全て固定した状態で、候補物質と反応成分とを含む中間構造体について構造の最適化を行い、第1最適化構造を算出する。

[0058] 第2構造最適化部142は、反応成分の候補物質と反応成分とを含む2以上の物質に分離した際の構造の最適化を行い、第2最適化構造を算出する。

[0059] 第1遷移状態エネルギーの取得部143は、第1構造最適化部141で得られた第1最適化構造と第2構造最適化部142で得られた第2最適化構造とから遷移状態エネルギーである第1遷移状態エネルギーを算出する。

[0060] 例えば、 $AB^*$ は、候補物質に吸着している状態の分子であり、 $A-B^*$ は、 $AB^*$ から $A^*$ と $B^*$ とに分離する過程における $AB^*$ の遷移状態の分子であり、 $A^*$ は、A分子の中間体であり、 $B^*$ は、B分子の中間体であるとして、1分子の $AB^*$ が $A^*$ 及び $B^*$ の2分子になる反応が、以下の反応式(1)のように進行するとする。



[0061] 上記式(1)のように、 $AB^*$ が1分子から2分子になる分離素反応が生じる場合には、第1構造最適化部141は、候補物質の構造を全て固定した状態で、 $AB^*$ を候補物質の表面上に配置し、候補物質と $AB^*$ とを含む中間構造体の構造の最適化を行う。

[0062] 第2構造最適化部142は、 $A^*$ 及び $B^*$ からなる2分子になるように、構造の最適化を行う。

[0063] 第1遷移状態エネルギーの取得部143は、 $AB^*$ である1分子と、 $A^*$ 及

びB\*からなる2分子を、NEB (Nudged Elastic Band) 法を用いて、AB\*である1分子がA\*及びB\*からなる2分子となる時に要する遷移状態エネルギーを第1遷移状態エネルギーとして算出する。

[0064] 図4に示すように、第1プロット部15は、第1算出部14で算出した記述子である第1エネルギー（第1中間体エネルギー及び第1遷移状態エネルギーを含むエネルギー）に基づいて候補物質を、マップ作成部12で表示した活性マップ（図5参照）上にプロットして、第1プロット付きマップを作成する。

[0065] 第1スクリーニング部16は、第1プロット部15で作成した第1プロット付きマップを基に候補物質をスクリーニングして、1次スクリーニング候補物質を選択する。即ち、第1スクリーニング部16は、スクリーニング方法として、活性が高い（NH<sub>3</sub>合成速度が高い）触媒を含む高活性領域にプロットされた候補物質を1次スクリーニング候補物質として絞る。

[0066] 高活性領域は、候補物質をプロットした活性マップ上にスケーリングライン（図5参照）を設けて、そのスケーリングラインに対して所定値以上小さい範囲としてもよい。また、触媒によるNH<sub>3</sub>の生成エネルギーよりも所定値未満の範囲による候補物質の絞り込みを行ってもよい。NH<sub>3</sub>合成速度が所定値以上となる範囲としてもよい。NH<sub>3</sub>合成速度の所定値は、好ましくは10<sup>-4</sup> [1/s] 以上である。

[0067] 更に絞り込まれる候補物質の数は、設定される高活性領域の範囲等に応じて適宜選択可能であり、例えば、5個～30個が好ましく、8個～55個がより好ましく、10個～20個がさらに好ましい。

[0068] なお、活性マップは、上述の通り、記述子を用いたMicrokineticicsにより作成できる。記述子としては、上記のNH<sub>3</sub>合成における反応成分の素反応（上記の式(Ⅰ)～(VⅡ)参照）の式中の、N\*とN-N\*のエネルギーを用いることで、活性マップには、後述する、Co、Rh、Ru、Cu、Fe、Re等の金属単体等の基準触媒に直線関係があるように現すことができる。この直線をスケーリングライン（図5参照）として用いるこ

とができる。

[0069] なお、生成エネルギーは、下記式（i）より算出される。生成エネルギーが0未満（生成エネルギー<0）の場合は、合金が金属単体より安定であることを示す。

$$\text{生成エネルギー} = E_{\text{Alloy}} - N_A \times E_{\text{A (bulk)}} - N_B \times E_{\text{B (bulk)}} \quad \cdots (i)$$

（式中、 $E_{\text{Alloy}}$ は、合金ABのバルクエネルギーであり、 $E_{\text{A (bulk)}}$ は、金属Aのバルクエネルギーであり、 $E_{\text{B (bulk)}}$ は、金属Bのバルクエネルギーであり、 $N_A$ は、合金中の金属Aの原子数であり、 $N_B$ は、合金中の金属Bの原子数である。）

[0070] スケーリングラインに対して所定値以上小さい範囲は、合成する目的生成物、用いる物質の種類等に応じて適宜選択されるが、 $\text{NH}_3$ 合成触媒の場合、例えば、スケーリングラインに対して0.25 eV以上小さい範囲とすることが好ましい。

[0071] 生成エネルギーよりも所定値未満の範囲は、合成する目的生成物、用いる物質の種類等に応じて適宜選択されるが、 $\text{NH}_3$ 合成触媒の場合、例えば、生成エネルギーよりも0.05 eV/atom未満の範囲とすることが好ましい。

[0072] 絞られる1次スクリーニング候補物質の数は、候補物質の数と、後述する2次スクリーニング候補物質の数等に応じて適宜選択可能であり、例えば、数十種類でよいし、数百種類でよい。

[0073] また、第1スクリーニング部16は、活性マップ上に候補物質をプロットして1次スクリーニング候補物質を絞る際、図8に示すように、候補物質1、2、3・・・N（Nは1以上の整数）に関する情報のみをリストにしたデータテーブルを用いてもよい。候補物質のみをリストにしたデータテーブル中の候補物質を高活性領域に含まれる順に並べ替えて、高活性領域に含まれる閾値以上にある候補物質を1次スクリーニング候補物質と絞ってよい。第1スクリーニング部16は、この並び替えたデータテーブルを用いて、第1

プロット部 15 により活性マップ上に候補物質をプロットして、1 次スクリーニング候補物質を絞ってよい。

[0074] 図 4 に示すように、第 2 算出部 17 は、1 次スクリーニング候補物質に対して、1 次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、1 次スクリーニング候補物質を用いた触媒反応に関する記述子を算出する。

[0075] 本実施形態では、記述子として、第 1 エネルギーと同様、1 次スクリーニング候補物質の表面に記述子に用いられる反応成分 ( $N_2$ 、 $H_2$ ) の中間体が吸着する第 2 中間体エネルギーと、1 次スクリーニング候補物質の表面に反応成分が吸着した後、反応成分が 2 以上の物質に分離する分離素反応における第 2 遷移状態エネルギーを含む第 2 エネルギーを算出する。

[0076] なお、触媒の表面を緩和した状態とは、触媒が動くようにした状態であり、触媒の表面から数層（例えば、2 層程度）動いて構造が変化できる状態として、実際の触媒の動きに近い状態とすることをいう。

[0077] また、第 2 算出部 17 は、第 2 中間体エネルギー又は第 2 遷移状態エネルギーのみを第 2 エネルギーとして算出してもよい。

[0078] 第 2 算出部 17 は、第 1 算出部 14 と同様、機械学習ポテンシャル 30 を用いて、記述子を算出することが好ましい。第 2 算出部 17 は、機械学習ポテンシャル 30 を用いることで、DFT 計算等を用いた場合と比較して記述子の算出時間を短縮することができる。

[0079] 記述子が第 2 中間体エネルギーである場合、第 2 算出部 17 は、1 次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、第 1 算出部 14 と同様、素反応に含まれる 1 次スクリーニング候補物質の表面における原料由来の物質を含む反応成分の吸着位置を変化させ、1 次スクリーニング候補物質と反応成分とを含む中間構造体について、構造の最適化を行うことが好ましい。これにより、第 2 算出部 17 は、安定な構造を有する中間構造体を選択できる。

[0080] 第 2 算出部 17 は、第 1 算出部 14 と同様、1 次スクリーニング候補物質に対する反応成分の吸着構造が正しく、かつ 1 次スクリーニング候補物質と反応成分の中間体との第 2 中間体エネルギーが最も安定した構造を抽出する

ことが好ましい。構造の最適化を行うことで、第1構造最適化部141において構造の最適化を行う場合と同様に、候補物質に吸着している状態の分子の構造（例えば、 $AB^*$ 構造）から変化する場合がある。第2算出部17は、そのような構造を除外できるため、高精度に反応成分の第2中間体エネルギーを取得できる。

[0081] また、第2算出部17は、図9に示すように、第1構造最適化部171、第2構造最適化部172及び第2遷移状態エネルギーの取得部173を有することが好ましい。これにより、第2算出部17は、記述子が中間体の遷移状態の遷移状態エネルギーである場合に、高精度に第2遷移状態エネルギーを取得できる。

[0082] 第1構造最適化部171は、1分子から2分子になる分離素反応に含まれる1次スクリーニング候補物質の表面における、1次スクリーニング候補物質と反応成分とを含む中間構造体について構造の最適化を行い、第1最適化構造を算出する。即ち、第1構造最適化部171は、1分子から2分子になる分離素反応において、1次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、1次スクリーニング候補物質と反応成分とを含む中間構造体について構造の最適化を行い、第1最適化構造を算出する。

[0083] 第2構造最適化部172は、第2構造最適化部142と同様に、反応成分について、2以上の物質に分離した際の分離構造の最適化を行い、第2最適化構造を算出する。

[0084] 第2遷移状態エネルギーの取得部173は、第1遷移状態エネルギーの取得部143と同様、第1構造最適化部171で得られた第1最適化構造と第2構造最適化部172で得られた第2最適化構造とから遷移状態エネルギーである第2遷移状態エネルギーを算出する。

[0085] 例えば、上述の通り、 $AB^*$ は、候補物質に吸着している状態の分子であり、 $A-B^*$ は、 $AB^*$ から $A^*$ と $B^*$ とに分離する過程における $AB^*$ の遷移状態の分子であり、 $A^*$ は、A分子の中間体であり、 $B^*$ は、B分子の中間体であるとして、1分子の $AB^*$ が $A^*$ 及び $B^*$ の2分子になる反応が、上記の反応式

(1) のように進行するとする。

[0086] 上記式 (1) のように、 $AB^*$  が 1 分子から 2 分子になる分離素反応において、第 1 構造最適化部 171 は、1 次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、第 1 構造最適化部 141 と同様に、 $AB^*$  を 1 次スクリーニング候補物質の表面上に配置し、1 次スクリーニング候補物質と  $AB^*$  とを含む中間構造体の構造の最適化を行う。

[0087] 第 2 構造最適化部 172 は、 $A^*$  及び  $B^*$  からなる 2 分子になるように、分離構造の最適化を行う。

[0088] 第 2 遷移状態エネルギーの取得部 173 は、第 1 遷移状態エネルギーの取得部 143 と同様に行い、 $AB^*$  である 1 分子が  $A^*$  及び  $B^*$  からなる 2 分子となる時に要する遷移状態エネルギーを第 2 遷移状態エネルギーとして算出する。

[0089] 図 4 に示すように、第 2 プロット部 18 は、第 2 算出部 17 で算出した記述子である第 2 エネルギーに基づいて 1 次スクリーニング候補物質を、活性マップ (図 5 参照) 上にプロットして第 2 プロット付きマップを作成する。

[0090] 第 2 スクリーニング部 19 は、第 2 プロット部 18 で作成した第 2 プロット付きマップを基に 1 次スクリーニング候補物質をスクリーニングして、2 次スクリーニング候補物質を選択する。即ち、第 2 スクリーニング部 19 は、スクリーニング方法により、第 2 プロット付きマップの高活性領域にプロットされた 1 次スクリーニング候補物質を 2 次スクリーニング候補物質として選択できる。

[0091] 1 次スクリーニング候補物質をスクリーニングする方法は、上記の第 1 スクリーニング部 16 において候補物質を 1 次スクリーニング候補物質に絞る場合と同様であるため、詳細は省略する。

[0092] 選択される 2 次スクリーニング候補物質の数は、1 次スクリーニング候補物質の数等に応じて適宜選択可能であり、例えば、数十種類でよいし、数百種類でよい。

[0093] 絞り込み部 21 は、第 2 スクリーニング部 19 で選択された 2 次スクリー

ニング候補物質を、触媒安定性又は触媒コスト等に基づいて絞り込む。

[0094] 絞り込まれる２次スクリーニング候補物質の数は、選択される２次スクリーニング候補物質の数等に応じて適宜選択可能であり、例えば、数種類でよいし、数十種類でよい。

[0095] 出力部２２は、第２スクリーニング部１９で選択された２次スクリーニング候補物質又は絞り込み部２１で絞り込まれた２次スクリーニング候補物質を、表示等により出力する。

[0096] なお、本実施形態においては、触媒の選択装置１０は、準備部１３での候補物質の数に応じて、第１算出部１４、第１プロット部１５及び第１スクリーニング部１６、又は第２算出部１７、第２プロット部１８及び第２スクリーニング部１９を備えなくてもよい。即ち、触媒の選択装置１０は、候補物質を全て固定した状態での計算、又は候補物質の表面を緩和した状態での計算を省略して、候補物質を絞り込んでもよい。

[0097] (触媒の選択装置１０のハードウェア構成)

次に、触媒の選択装置１０のハードウェア構成の一例について説明する。図１０は、触媒の選択装置１０のハードウェア構成を示すブロック図である。図１０に示すように、触媒の選択装置１０は、情報処理装置（コンピュータ）で構成され、物理的には、演算処理部であるＣＰＵ（Central Processing Unit：プロセッサ）１０１、主記憶装置であるＲＡＭ（Random Access Memory）１０２及びＲＯＭ（Read Only Memory）１０３、入力デバイスである入力装置１０４、出力装置１０５、通信モジュール１０６並びにハードディスク等の補助記憶装置１０７等を含むコンピュータシステムとして構成することができる。これらは、バス１０８で相互に接続されている。なお、出力装置１０５及び補助記憶装置１０７は、外部に設けられていてもよい。

[0098] ＣＰＵ１０１は、触媒の選択装置１０の全体の動作を制御し、各種の情報処理を行う。ＣＰＵ１０１は、ＲＯＭ１０３又は補助記憶装置１０７に格納された、例えば後述する触媒の選択方法や触媒の選択プログラムを実行して

、触媒の選択を行うことができる。

[0099] RAM 102は、CPU 101のワークエリアとして用いられ、主要な制御パラメータや情報を記憶する不揮発RAMを含んでもよい。

[0100] ROM 103は、基本入出力プログラム等を記憶する。触媒の選択プログラムはROM 103に保存されてもよい。

[0101] 入力装置104は、キーボード、マウス、操作ボタン、タッチパネル、表示画面等の入力デバイスであり、使用者に入力された情報を指示信号として受け付け、その指示信号をCPU 101に出力する。

[0102] 出力装置105は、モニタディスプレイ等の表示装置、スピーカー、プリンタ等の印刷装置等である。出力装置105では、例えば、モニタディスプレイ等の表示装置に触媒の選択結果等の情報が表示され、入力装置104や通信モジュール106を介した入力操作に応じて表示する画面が更新される。

[0103] 通信モジュール106は、ネットワークカード等のデータ送受信デバイスであり、外部のデータ収録サーバ等からの情報を取り込み、他の電子機器に解析情報を入力する通信インタフェースとして機能する。

[0104] 補助記憶装置107は、SSD (Solid State Drive)、及びHDD (Hard Disk Drive)等の記憶装置であり、例えば、触媒の選択装置10の動作に必要な各種のデータ、ファイル等を格納する。

[0105] 触媒の選択装置10の各機能は、RAM 102等の主記憶装置又は補助記憶装置107から所定のコンピュータソフトウェア（触媒の選択プログラムを含む）を読み込ませ、CPU 101により実行することで、RAM 102等の主記憶装置又は及び補助記憶装置107等におけるデータの読み出し及び書き込みを行うと共に、入力装置104、出力装置105及び通信モジュール106を動作させることで実現される。

[0106] よって、図4に示す、触媒の選択装置10の各部は、触媒の選択装置10を備えたコンピュータにおいて、プロセッサが予め記憶されている所定のコ

ンピュータソフトウェア（触媒の選択プログラムを含む）を実行することで、ソフトウェアおよびハードウェアが協働して実現される。

[0107] 触媒の選択プログラムは、例えばコンピュータが備える主記憶装置又は補助記憶装置 107 内に格納させておくことができる。また、触媒の選択プログラムは、インターネット等の通信回線に接続されたコンピュータ上に格納し、触媒の選択プログラムの一部又は全部を通信回線を介してダウンロードさせることで提供してもよい。さらに、触媒の選択プログラムは、通信回線を介して提供又は配布するように構成してもよい。

[0108] 触媒の選択プログラムは、その一部又は全部が、CD-ROM及びDVD-ROM等の光ディスク、フラッシュメモリ等の半導体メモリ等、持ち運び可能な記憶媒体に格納された状態から、コンピュータ内に記録（インストールを含む）してもよい。

[0109] <触媒の選択方法>

触媒の選択方法について説明する。触媒の選択方法は、上述の触媒の選択システム1を用いて行うことができる。このため、既に説明した事項は説明を一部省略する。

[0110] 図11は、触媒の選択方法を示すフローチャートである。図11に示すように、触媒の選択方法は、原料である $H_2$ 及び $N_2$ から目的生成物である $NH_3$ を生成する触媒反応に用いる $NH_3$ 合成触媒の選択方法である。

[0111] 触媒の選択方法では、記述子選択部11により、上記式(1)～(V11)のような触媒反応の素反応に含まれる中間体構造又は遷移状態構造のエネルギーを記述子として選択する（記述子選択工程：ステップS11）。

[0112] 触媒反応の記述子としては、候補物質の表面に反応成分が吸着する際の吸着エネルギーと、候補物質の表面に反応成分が吸着した後、反応成分が2以上の物質に分離する分離素反応における遷移状態エネルギーとを用いることが好ましい。候補物質の表面に反応成分が吸着する際の吸着エネルギーとしては、例えば、触媒と窒素の中間体( $N^*$ )との吸着エネルギー( $E_N$ )が用いられる。候補物質の表面に反応成分が吸着した後、反応成分が2以上の物

質に分離する分離素反応における遷移状態エネルギーとしては、触媒での窒素の遷移状態 ( $N-N^*$ ) の解離活性化エネルギー ( $E_{N-N}$ ) が用いられる。

[0113] 本実施形態では、触媒の選択方法は、 $NH_3$  合成反応に含まれる素反応を解析して、 $NH_3$  合成に最も影響が大きい素反応に関するエネルギーを記述子として選択して用いているため、 $NH_3$  を効率よく合成できる触媒を精度良く選択できる。

[0114] 次に、マップ作成部 12 により、記述子と触媒反応の反応性について表した活性マップを作成する（活性マップ作成工程：ステップ S 12）。

[0115] 触媒反応の記述子が、触媒と窒素の中間体 ( $N^*$ ) との吸着エネルギー ( $E_N$ ) と、触媒での窒素の遷移状態 ( $N-N^*$ ) の解離活性化エネルギー ( $E_{N-N}$ ) である場合の活性マップの一例を図 12 に示す。

[0116] 次に、準備部 13 により、触媒の候補物質を、数千種類（例えば、2000 種類）用意する（準備工程：ステップ S 13）。

[0117] なお、ここでは、用意する候補物質の種類は、数千種類としたが、これに限定されず、適宜任意の数としてよい。

[0118] 次に、第 1 算出部 14 により、準備部 13 で用意した候補物質を全て固定した状態で、候補物質を用いた触媒反応に関する記述子を算出する（第 1 算出工程：ステップ S 14）。

[0119] 本実施形態では、上述の通り、記述子として、候補物質の表面に記述子に用いられる原料 ( $N_2$ 、 $H_2$ ) 由来の物質を含む反応成分の中間体が吸着する第 1 中間体エネルギー、及び候補物質の表面に反応成分の中間体の遷移状態が吸着した後、中間体の遷移状態が 2 以上の物質に分離する分離素反応における第 1 遷移状態エネルギーを含む第 1 エネルギーを算出してよい。

[0120] 第 1 算出工程（ステップ S 14）は、第 1 算出部 14 により、機械学習ポテンシャル 30 を用いて、候補物質の記述子を算出することが好ましい。

[0121] 第 1 エネルギーの算出は、1 回の計算で決めてもよいし、複数回（例えば、10 回）の計算で決めてもよい。複数回計算する場合は、複数の計算値の平均値を用いてもよいし、複数の計算値の最大値又は最小値でもよい。

- [0122] 第1算出工程（ステップS14）は、記述子が第1中間体エネルギーである場合には、第1算出部14により、候補物質を全て固定した状態で、素反応に含まれる候補物質の表面における原料由来の物質を含む反応成分の吸着位置を変化させ、候補物質と反応成分とを含む中間構造体について、構造の最適化を行うことが好ましい。これにより、安定な構造を有する中間構造体を選択できる。
- [0123] そして、第1算出工程（ステップS14）は、第1算出部14により、候補物質に対する反応成分の吸着構造が正しく、かつ候補物質と反応成分の中間体との第1中間体エネルギーが最も安定した構造を抽出することが好ましい。これにより、候補物質と反応成分の中間体との第1中間体エネルギーが低精度であるが短時間で算出される。
- [0124] また、第1算出工程（ステップS14）は、図13に示すように、第1構造最適化工程（ステップS141）、第2構造最適化工程（ステップS142）及び第1遷移状態エネルギーの取得工程（ステップS143）を含むことが好ましい。これにより、記述子が中間体の遷移状態の第1遷移状態エネルギーが低精度であるが短時間で算出される。
- [0125] 第1構造最適化工程（ステップS141）は、第1構造最適化部141により、1分子から2分子になる分離素反応に含まれる候補物質の表面における反応成分の候補物質と反応成分とを含む中間構造体について構造の最適化を行い、第1最適化構造を算出する。即ち、第1構造最適化工程（ステップS141）は、第1構造最適化部141により、1分子から2分子になる分離素反応において、候補物質の構造を全て固定した状態で、候補物質と反応成分とを含む中間構造体について構造の最適化を行い、第1最適化構造を算出する。
- [0126] 第2構造最適化工程（ステップS142）は、反応成分の候補物質と反応成分とを含む2以上の物質に分離した際の構造の最適化を行い、第2最適化構造を算出する。
- [0127] 第1遷移状態エネルギーの取得工程（ステップS143）は、第1構造最

適化工程（ステップS 1 4 1）で得られた第1最適化構造と第2構造最適化工程（ステップS 1 4 2）で得られた第2最適化構造とから遷移状態エネルギーである第1遷移状態エネルギーを算出する。

[0128] 例えば、上述の通り、 $AB^*$ は、候補物質に吸着している状態の分子であり、 $A-B^*$ は、 $AB^*$ から $A^*$ と $B^*$ とに分離する過程における $AB^*$ の遷移状態の分子であり、 $A^*$ は、A分子の中間体であり、 $B^*$ は、B分子の中間体であるとして、1分子の $AB^*$ が $A^*$ 及び $B^*$ の2分子になる反応が、上記の反応式（1）のように進行するとする。

[0129] 上記式（1）のように、 $AB^*$ が1分子から2分子になる分離素反応が生じる場合には、第1構造最適化工程（ステップS 1 4 1）は、第1構造最適化部1 4 1により、候補物質の構造を全て固定した状態で、 $AB^*$ を候補物質の表面上に配置し、候補物質と $AB^*$ とを含む中間構造体の構造の最適化を行う。

[0130] 第2構造最適化工程（ステップS 1 4 2）は、 $A^*$ 及び $B^*$ からなる2分子になるように、構造の最適化を行う。

[0131] 第1遷移状態エネルギーの取得工程（ステップS 1 4 3）は、第1遷移状態エネルギーの取得部1 4 3により、 $AB^*$ である1分子と、 $A^*$ 及び $B^*$ からなる2分子を、NEB（Nudged Elastic Band）法を用いて、 $AB^*$ である1分子が $A^*$ 及び $B^*$ からなる2分子となる時に要する遷移状態エネルギーを第1遷移状態エネルギーとして算出して算出する。

[0132] 次に、図1 1に示すように、第1プロット部1 5により、第1算出工程（ステップS 1 4）で算出した記述子である第1エネルギー（第1中間体エネルギー及び第1遷移状態エネルギーを含むエネルギー）に基づいて候補物質を、マップ作成工程（ステップS 1 2）で作成した活性マップ（図1 2参照）上にプロットして、第1プロット付きマップを作成する（第1プロット工程：ステップS 1 5）。

[0133] 次に、第1スクリーニング部1 6により、第1プロット工程（ステップS 1 5）で作成した第1プロット付きマップを基に候補物質をスクリーニング

して、1次スクリーニング候補物質を選択する（第1スクリーニング工程：ステップS16）。

[0134] 即ち、第1スクリーニング部16により、活性が高い（ $\text{NH}_3$ 合成速度が高い）触媒を含む高活性領域にプロットされた候補物質が1次スクリーニング候補物質として絞られる。

[0135] なお、高活性領域の設定方法及び意味は、上述の通りであるため、詳細は省略する。

[0136] 1次スクリーニング候補物質は、例えば、100種類～500種類に絞られる。なお、絞られる1次スクリーニング候補物質の数は、上述の通り、候補物質の数と、2次スクリーニング候補物質の数等に応じて適宜選択可能であり、例えば、数十種類でよいし、数百種類でよい。

[0137] 候補物質の記述子をプロットした結果の一例を図14に示す。なお、図14は、図12と同様、記述子として、触媒と窒素の中間体（ $\text{N}^*$ ）との吸着エネルギー（ $E_{\text{N}}$ ）と、触媒での窒素の遷移状態（ $\text{N}-\text{N}^*$ ）の解離活性化エネルギー（ $E_{\text{N}-\text{N}}$ ）との関係を示す活性マップを示す。また、プロットした点を明確に示すため、 $\text{NH}_3$ 合成速度（ $\text{NH}_3$ の収率）を常用対数（ $\log_{10}$ ）に換算した値の表示は省略する。

[0138] また、第1スクリーニング工程（ステップS16）は、第1スクリーニング部16により、活性マップ上に候補物質をプロットして1次スクリーニング候補物質を絞る際、上述のように、候補物質1、2、3・・・N（Nは1以上の整数）に関する情報のみをリストにしたデータテーブルを用いてよい（図8参照）。そして、候補物質のみをリストにしたデータテーブル中の候補物質を高活性領域に含まれる順に並べ替えて、高活性領域に含まれる閾値以上にある候補物質を1次スクリーニング候補物質として絞ってよい。第1スクリーニング部16により、この並び替えたデータテーブルを用いて、第1プロット部15により活性マップ上に候補物質をプロットして、1次スクリーニング候補物質を絞ってよい。

[0139] 次に、図11に示すように、第2算出部17により、1次スクリーニング

候補物質に対して、１次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、１次スクリーニング候補物質を用いた触媒反応に関する記述子を算出する（第２算出工程：ステップＳ１７）。

[0140] 本実施形態では、記述子として、第１エネルギーと同様、１次スクリーニング候補物質の表面に記述子に用いられる反応成分（ $N_2$ 、 $H_2$ ）の中間体が吸着する第２中間体エネルギーと、１次スクリーニング候補物質の表面に反応成分が吸着した後、反応成分が２以上の物質に分離する分離素反応における第２遷移状態エネルギーを含む第２エネルギーを算出する。

[0141] 第２算出工程（ステップＳ１７）は、第１算出工程（ステップＳ１４）と同様、第２算出部１７により、機械学習ポテンシャル３０を用いて、１次スクリーニング候補物質の第２エネルギーを算出することが好ましい。

[0142] 第２算出工程（ステップＳ１７）は、記述子が第２中間体エネルギーである場合、第２算出部１７により、１次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、第１算出工程（ステップＳ１４）と同様、１次スクリーニング候補物質と反応成分とを含む中間構造体について、構造の最適化を行うことが好ましい。これにより、安定な構造を有する中間構造体を選択できる。

[0143] そして、第２算出工程（ステップＳ１７）は、第２算出部１７により、第１算出工程（ステップＳ１４）と同様、１次スクリーニング候補物質に対する反応成分の吸着位置が正しく、かつ１次スクリーニング候補物質と反応成分の中間体との第２中間体エネルギーが最も安定した構造を抽出することが好ましい。これにより、反応成分の第２中間体エネルギーが高精度に算出される。

[0144] また、第２算出部１７により、第１算出工程（ステップＳ１４）と同様、図１５に示すように、第１構造最適化工程（ステップＳ１７１）、第２構造最適化工程（ステップＳ１７２）及び第２遷移状態エネルギーの取得工程（ステップＳ１７３）を含むことが好ましい。これにより、中間体の遷移状態の遷移状態エネルギーが高精度に算出される。

[0145] 第１構造最適化工程（ステップＳ１７１）は、第１構造最適化部１７１に

より、1分子から2分子になる分離素反応に含まれる1次スクリーニング候補物質の表面における、1次スクリーニング候補物質と反応成分とを含む中間構造体について構造の最適化を行い、第1最適化構造を算出する。即ち、第1構造最適化工程（ステップS171）は、第1構造最適化部171により、1分子から2分子になる分離素反応において、1次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、1次スクリーニング候補物質と反応成分とを含む中間構造体について構造の最適化を行い、第1最適化構造を算出する。

[0146] 第2構造最適化工程（ステップS172）は、第2構造最適化部172により、第2構造最適化部142と同様に、反応成分について、2以上の物質に分離した際の分離構造の最適化を行い、第2最適化構造を算出する。

[0147] 第2遷移状態エネルギーの取得工程（ステップS173）は、第2遷移状態エネルギーの取得部173により、第1遷移状態エネルギーの取得部143と同様、第1構造最適化工程（ステップS171）で得られた第1最適化構造と第2構造最適化工程（ステップS172）で得られた第2最適化構造とから遷移状態エネルギーである第2遷移状態エネルギーを算出する。

[0148] 例えば、上述の通り、 $AB^*$ は、候補物質に吸着している状態の分子であり、 $A-B^*$ は、 $AB^*$ から $A^*$ と $B^*$ とに分離する過程における $AB^*$ の遷移状態の分子であり、 $A^*$ は、A分子の中間体であり、 $B^*$ は、B分子の中間体であるとして、1分子の $AB^*$ が $A^*$ 及び $B^*$ の2分子になる反応が、上記の反応式（1）のように進行するとする。

[0149] 上記式（1）のように、 $AB^*$ が1分子から2分子になる分離素反応が生じる場合には、第1構造最適化工程（ステップS171）は、第1構造最適化部171により、1次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、第1構造最適化工程（ステップS141）と同様、 $AB^*$ を1次スクリーニング候補物質の表面上に配置し、1次スクリーニング候補物質と $AB^*$ とを含む中間構造体の構造の最適化を行う。

[0150] 第2構造最適化工程（ステップS172）は、 $A^*$ 及び $B^*$ からなる2分子になるように、分離構造の最適化を行う。

- [0151] 遷移状態エネルギーの取得工程（ステップS 1 7 3）は、第2遷移状態エネルギーの取得部1 7 3により、遷移状態エネルギーの取得工程（ステップS 1 4 3）と同様に行い、 $AB^*$ である1分子が $A^*$ 及び $B^*$ からなる2分子となる時に要する遷移状態エネルギーを第2遷移状態エネルギーとして算出する。
- [0152] 次に、図1 1に示すように、第2プロット部1 8により、第2算出部1 7で算出した記述子である第2エネルギー（第2中間体エネルギー及び第2遷移状態エネルギーを含むエネルギー）に基づいて1次スクリーニング候補物質を、マップ作成工程（ステップS 1 2）で作成した活性マップ（図1 2参照）上にプロットして、第2プロット付きマップを作成する（第2プロット工程：ステップS 1 8）。
- [0153] 次に、第2スクリーニング部1 9により、第2プロット工程（ステップS 1 8）で作成した第2プロット付きマップを基に1次スクリーニング候補物質をスクリーニングして、2次スクリーニング候補物質を選択する（第2スクリーニング工程：ステップS 1 9）。
- [0154] 即ち、第2スクリーニング部1 9により、第2プロット工程（ステップS 1 8）で活性が高い触媒を含む高活性領域にプロットされた1次スクリーニング候補物質を2次スクリーニング候補物質として選択できる。
- [0155] 2次スクリーニング候補物質は、例えば、30種類～100種類選択される。
- [0156] 2次スクリーニング候補物質としては、例えば、 $IrSc$ 、 $FePd_3$ 、 $MnTc_3$ 、 $IrY$ 、 $CrPd_3$ 、 $MnPd_3$ 、 $RhY$ 、 $Co_3Pt$ 、 $CrPt_3$ 、 $FeRh_3$ 、 $CrRh_3$ 、 $Ni_3Ti$ 、 $Ir_3V$ 、 $Pt_3Ti$ 、 $Co_3Rh$ 、 $Pd_3Ti$ 、 $Ni_3Zr$ 、 $Co_3W$ 、 $NiPd_3$ 、 $FeNi_3$ 、 $Ir_3Mn$ 、 $IrMn$ 、 $MnPt$ 、 $MnNi_3$ 、 $Ir_3Re$ 、 $MnRh$ 、 $Pd_3V$ 、 $MnPt_3$ 、 $Rh_3V$ 及び $Rh_3Ti$ 等の合金が挙げられる。
- [0157] 2次スクリーニング候補物質が30種類選択される場合、30種類の2次スクリーニング候補物質としては、 $IrSc$ 、 $FePd_3$ 、 $MnTc_3$ 、 $Ir$

Y、CrPd<sub>3</sub>、MnPd<sub>3</sub>、RhY、Co<sub>3</sub>Pt、CrPt<sub>3</sub>、FeRh<sub>3</sub>、CrRh<sub>3</sub>、Ni<sub>3</sub>Ti、Ir<sub>3</sub>V、Pt<sub>3</sub>Ti、Co<sub>3</sub>Rh、Pd<sub>3</sub>Ti、Ni<sub>3</sub>Zr、Co<sub>3</sub>W、NiPd<sub>3</sub>、FeNi<sub>3</sub>、Ir<sub>3</sub>Mn、IrMn、MnPt、MnNi<sub>3</sub>、Ir<sub>3</sub>Re、MnRh、Pd<sub>3</sub>V、MnPt<sub>3</sub>、Rh<sub>3</sub>V及びRh<sub>3</sub>Tiの合金が選択される。

[0158] 30種類の2次スクリーニング候補物質として選択された触媒を表示した表の一例を表1に示す。

[0159]

[表1]

| No. | 組成                 | 触媒と窒素の中間体(N*)<br>との<br>吸着エネルギー( $E_N$ )<br>[eV] | 触媒での窒素の遷移状態<br>(N-N*)の<br>解離活性化エネルギー<br>( $E_{N-N}$ ) [eV] | NH <sub>3</sub> 合成速度<br>[1/s] |
|-----|--------------------|-------------------------------------------------|------------------------------------------------------------|-------------------------------|
| 1   | IrSc               | -0.461                                          | 0.716                                                      | 0.373                         |
| 2   | RhY                | -0.669                                          | 0.560                                                      | 0.119                         |
| 3   | IrY                | -0.492                                          | 0.851                                                      | $9.91 \times 10^{-3}$         |
| 4   | MnTc <sub>3</sub>  | -0.953                                          | -0.002                                                     | $5.67 \times 10^{-4}$         |
| 5   | IrMn               | -0.521                                          | 1.055                                                      | $4.31 \times 10^{-4}$         |
| 6   | Ni <sub>3</sub> Ti | -0.492                                          | 0.968                                                      | $4.31 \times 10^{-4}$         |
| 7   | Co <sub>3</sub> Rh | -0.325                                          | 1.265                                                      | $4.88 \times 10^{-5}$         |
| 8   | Co <sub>3</sub> W  | -0.990                                          | 0.202                                                      | $4.44 \times 10^{-5}$         |
| 9   | Ni <sub>3</sub> Zr | -0.417                                          | 1.165                                                      | $3.09 \times 10^{-5}$         |
| 10  | CrRh <sub>3</sub>  | -0.399                                          | 1.117                                                      | $3.09 \times 10^{-5}$         |
| 11  | Pd <sub>3</sub> V  | -0.443                                          | 1.209                                                      | $3.09 \times 10^{-5}$         |
| 12  | Ir <sub>3</sub> V  | -0.372                                          | 1.182                                                      | $3.09 \times 10^{-5}$         |
| 13  | Rh <sub>3</sub> V  | -0.534                                          | 1.108                                                      | $1.88 \times 10^{-5}$         |
| 14  | Ir <sub>3</sub> Re | -0.336                                          | 1.384                                                      | $2.12 \times 10^{-6}$         |
| 15  | MnRh               | -0.298                                          | 1.451                                                      | $2.12 \times 10^{-6}$         |
| 16  | Rh <sub>3</sub> Ti | -0.382                                          | 1.366                                                      | $1.34 \times 10^{-6}$         |
| 17  | MnNi <sub>3</sub>  | -0.398                                          | 1.274                                                      | $1.34 \times 10^{-6}$         |
| 18  | CrPd <sub>3</sub>  | -0.024                                          | 1.604                                                      | $2.08 \times 10^{-7}$         |
| 19  | FeNi <sub>3</sub>  | -0.234                                          | 1.526                                                      | $1.41 \times 10^{-7}$         |
| 20  | FeRh <sub>3</sub>  | -0.137                                          | 1.525                                                      | $1.41 \times 10^{-7}$         |
| 21  | Co <sub>3</sub> Pt | 0.046                                           | 1.775                                                      | $1.29 \times 10^{-8}$         |
| 22  | Ir <sub>3</sub> Mn | -0.111                                          | 1.746                                                      | $9.05 \times 10^{-9}$         |
| 23  | MnPd <sub>3</sub>  | 0.171                                           | 1.968                                                      | $7.65 \times 10^{-10}$        |
| 24  | CrPt <sub>3</sub>  | 0.128                                           | 1.948                                                      | $7.65 \times 10^{-10}$        |
| 25  | Pd <sub>3</sub> Ti | 0.037                                           | 1.913                                                      | $5.60 \times 10^{-10}$        |
| 26  | NiPd <sub>3</sub>  | 0.070                                           | 1.999                                                      | $5.60 \times 10^{-10}$        |
| 27  | FePd <sub>3</sub>  | 0.335                                           | 2.143                                                      | $4.37 \times 10^{-11}$        |
| 28  | Pt <sub>3</sub> Ti | 0.129                                           | 2.028                                                      | $3.33 \times 10^{-11}$        |
| 29  | MnPt               | 0.136                                           | 2.172                                                      | $3.33 \times 10^{-11}$        |
| 30  | MnPt <sub>3</sub>  | 0.101                                           | 2.162                                                      | $2.44 \times 10^{-11}$        |

[0160] 表1に表示した30種類の2次スクリーニング候補物質をプロットした活性マップの一例を図16に示す。図16に示すように、30種類の2次スクリーニング候補物質として、IrSc、FePd<sub>3</sub>、MnTc<sub>3</sub>、IrY、C

$rPd_3$ 、 $MnPd_3$ 、 $RhY$ 、 $Co_3Pt$ 、 $CrPt_3$ 、 $FeRh_3$ 、 $CrRh_3$ 、 $Ni_3Ti$ 、 $Ir_3V$ 、 $Pt_3Ti$ 、 $Co_3Rh$ 、 $Pd_3Ti$ 、 $Ni_3Zr$ 、 $Co_3W$ 、 $NiPd_3$ 、 $FeNi_3$ 、 $Ir_3Mn$ 、 $IrMn$ 、 $MnPt$ 、 $MnNi_3$ 、 $Ir_3Re$ 、 $MnRh$ 、 $Pd_3V$ 、 $MnPt_3$ 、 $Rh_3V$ 及び $Rh_3Ti$ の合金がプロットされている。

[0161] なお、選択される2次スクリーニング候補物質の数は、上述の通り、1次スクリーニング候補物質の数等に応じて適宜選択可能であり、例えば、数種類でよいし、数十種類でよい。

[0162] 次に、絞り込み部21により、第2スクリーニング工程（ステップS19）で得られた2次スクリーニング候補物質に対して、触媒安定性又は触媒コストにより、絞り込みを行ってよい（絞り込み工程：ステップS20）。

[0163] 2次スクリーニング候補物質は、例えば、30種類～50種類に絞り込まれる。なお、絞り込まれる2次スクリーニング候補物質の数は、選択される2次スクリーニング候補物質の数等に応じて適宜選択可能であり、例えば、数種類～数十種類としてよい。

[0164] 次に、出力部22により、第2スクリーニング部19で選択された2次スクリーニング候補物質又は絞り込み部21で絞り込まれた2次スクリーニング候補物質を表示等により出力する（出力工程：ステップS21）。

[0165] 触媒の選択方法により、 $NH_3$ の製造効率が良い $NH_3$ 合成触媒が選択できる。

[0166] 触媒の選択方法により選択された、 $NH_3$ の製造効率が良い $NH_3$ 合成触媒としては、 $IrSc$ 、 $FePd_3$ 、 $MnTc_3$ 、 $IrY$ 、 $CrPd_3$ 、 $MnPd_3$ 、 $RhY$ 、 $Co_3Pt$ 、 $CrPt_3$ 、 $FeRh_3$ 、 $CrRh_3$ 、 $Ni_3Ti$ 、 $Ir_3V$ 、 $Pt_3Ti$ 、 $Co_3Rh$ 、 $Pd_3Ti$ 、 $Ni_3Zr$ 、 $Co_3W$ 、 $NiPd_3$ 、 $FeNi_3$ 、 $Ir_3Mn$ 、 $IrMn$ 、 $MnPt$ 、 $MnNi_3$ 、 $Ir_3Re$ 、 $MnRh$ 、 $Pd_3V$ 、 $MnPt_3$ 、 $Rh_3V$ 及び $Rh_3Ti$ 等の合金が挙げられる。

[0167] 触媒の選択方法により、 $NH_3$ の製造効率が良い $NH_3$ 合成触媒として、3

0種類選択される場合、30種類の $\text{NH}_3$ 合成触媒としては、 $\text{IrSc}$ 、 $\text{FePd}_3$ 、 $\text{MnTc}_3$ 、 $\text{IrY}$ 、 $\text{CrPd}_3$ 、 $\text{MnPd}_3$ 、 $\text{RhY}$ 、 $\text{Co}_3\text{Pt}$ 、 $\text{CrPt}_3$ 、 $\text{FeRh}_3$ 、 $\text{CrRh}_3$ 、 $\text{Ni}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ir}_3\text{V}$ 、 $\text{Pt}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Co}_3\text{Rh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ni}_3\text{Zr}$ 、 $\text{Co}_3\text{W}$ 、 $\text{NiPd}_3$ 、 $\text{FeNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Mn}$ 、 $\text{IrMn}$ 、 $\text{MnPt}$ 、 $\text{MnNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Re}$ 、 $\text{MnRh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{V}$ 、 $\text{MnPt}_3$ 、 $\text{Rh}_3\text{V}$ 及び $\text{Rh}_3\text{Ti}$ の合金が選択される。

[0168] 触媒の選択方法により選択された触媒が、 $\text{NH}_3$ 合成速度が高く、 $\text{NH}_3$ の製造効率に優れた $\text{NH}_3$ 合成触媒であるか否かは、例えば、触媒の選択方法により選択された触媒のエネルギーと、従来より一般的に用いられる量子化学計算によって選択される触媒のエネルギーとを比較して、その乖離を検証することで判断できる。

[0169] 活性マップを作成する際に必要となる基準触媒において $\text{NH}_3$ 合成に関する素反応に登場する、基準触媒上での中間体又は遷移状態のエネルギーをDFT計算により算出したエネルギーと、横軸と同じ基準触媒上での中間体又は遷移状態のエネルギーを本実施形態に係る触媒の選択方法により算出したエネルギーとの相関を図17に示す。DFT計算は、従来より一般的に用いられる量子化学計算の手法である。活性マップを作成する際に必要となる基準触媒とは、例えば、 $\text{Co}$ 、 $\text{Rh}$ 、 $\text{Ru}$ 、 $\text{Cu}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Re}$ 、 $\text{Pt}$ 等の金属単体等である。図17に示すように、プロットされた触媒の間には直線関係があることから、機械学習ポテンシャル30は、DFT計算により得られる計算結果と略同じ結果を再現できる。よって、触媒の選択方法を用いることで、様々な触媒上での中間体及び遷移状態のエネルギーを高精度に予測できているといえる。

[0170] DFT計算を用いて作成した触媒の活性マップの一例を図18に示す。また、図18には、触媒の選択方法を用いて作成した触媒の活性マップも示す。なお、図18(a)及び(b)の触媒の活性マップは、計算時の温度を400℃、圧力を100barとして作成した。図18に示すように、触媒の選択方法を用いて選択した触媒の活性マップ(図18(b)参照)は、DFT

T計算を用いて作成した触媒の活性マップ（図18（a）参照）と略同じ傾向を示す。よって、機械学習ポテンシャル30で計算したエネルギーを用いて作成した活性マップは、DFT計算して算出したエネルギーを用いて作成した活性マップと略同様の活性マップを再現できる。

[0171] 触媒の選択方法により、 $\text{NH}_3$ の製造効率が良い $\text{NH}_3$ 合成触媒として選択された、上記の30種類の合金は、図19に示すように、触媒の選択方法を用いて作成した触媒の活性マップにプロットされることで、 $\text{NH}_3$ 合成速度が高く、 $\text{NH}_3$ の製造効率に優れた $\text{NH}_3$ 合成触媒であると判断できる。また、図19の活性マップにプロットされる純金属は、一般に使用されている触媒であり、上記の30種類の合金は、一般に触媒として使用されている純金属よりも $\text{NH}_3$ 合成速度が高く、高い $\text{NH}_3$ の製造効率を発揮すると判断できる。なお、図19の活性マップは、図18と同様、計算時の温度を400℃、圧力を100barとして作成した。

[0172] よって、触媒の選択方法により選択された触媒は、 $\text{NH}_3$ の製造効率が良い $\text{NH}_3$ 合成触媒であるといえる。

[0173] なお、本実施形態においては、触媒の選択方法は、準備工程（ステップS13）で準備する候補物質の数に応じて、第1算出工程（ステップS14）、第1プロット工程（ステップS15）及び第1スクリーニング工程（ステップS16）、又は第2算出工程（ステップS17）、第2プロット工程（ステップS18）及び第2スクリーニング工程（ステップS19）を含まず、省略してもよい。即ち、触媒の選択方法は、候補物質を全て固定した状態での計算、又は候補物質の表面を緩和した状態での計算を省略して、候補物質を絞り込んでもよい。

[0174] このように、触媒の選択方法は、準備工程（ステップS13）で準備した複数の候補物質の第1エネルギーを第1算出工程（ステップS14）で算出し、第1スクリーニング工程（ステップS16）で、第1プロット工程（ステップS15）で作成した第1プロット付きマップにプロットした候補物質から1次スクリーニング候補物質を絞る。そして、触媒の選択方法は、第2

算出工程（ステップS 1 7）で選択した1次スクリーニング候補物質の第2エネルギーを算出し、第2スクリーニング工程（ステップS 1 6）で、2次プロット工程（ステップS 1 8）で作成した第2プロット付きマップにプロットした1次スクリーニング候補物質の中から2次スクリーニング候補物質を選択する。

[0175] 即ち、触媒の選択方法は、最初に、第1段階として、候補物質を全て固定した状態で、候補物質を用いた触媒反応に関する記述子を低精度であるが短時間で算出して、活性マップにプロットし、プロットした候補物質から1次スクリーニング候補物質を絞る。次に、触媒の選択方法は、第2段階として、1次スクリーニング候補物質の表面を緩和した状態で、絞った1次スクリーニング候補物質を用いた触媒反応に関する記述子を高精度に算出し直す。そして、触媒の選択方法は、算出された1次スクリーニング候補物質のより正確な記述子に基づいて1次スクリーニング候補物質をさらに絞り込んで、2次スクリーニング候補物質を選択する。よって、触媒の選択方法は、候補物質から有効な触媒を迅速かつ高精度に選択することができるので、原料（ $H_2$ 及び $N_2$ ）から目的生成物（ $NH_3$ ）を合成する触媒反応のための $NH_3$ 合成触媒を効率的に選択することができる。

[0176] < $NH_3$ 合成触媒の製造方法>

本実施形態に係る $NH_3$ 合成触媒の製造方法は、特に限定されず、 $NH_3$ 合成触媒に含まれる成分の種類に応じて適宜選択可能である。 $NH_3$ 合成触媒の製造方法の一例を図20に示す。図20に示すように、 $NH_3$ 合成触媒の製造方法は、触媒を選択する選択工程（ステップS 3 1）と、触媒を調製する調製工程（ステップS 3 2）とを含んでよい。

[0177] 選択工程（ステップS 3 1）は、上記の触媒の選択方法により触媒を選択する。

[0178] 調製工程（ステップS 3 2）は、選択工程（ステップS 3 1）で選択した触媒を調製する。触媒の調整方法は、特に限定されず、選択される触媒の種類に応じて一般的な調整方法を用いてよい。選択された触媒は、例えば、国

立研究開発法人物質・材料研究機構（NIMS）から提供される、無機材料データベース「AtomWork（アトムワーク）」、物質・材料データベース「AtomWork-Adv（アトムワーク・アドバンスト）」等の一般に公開されているデータベース等を開示されている文献を検索して参考にすることで調整できる。

[0179]  $\text{NH}_3$ 合成触媒の製造方法は、上記の触媒の選択方法により選択された触媒を調整することができるため、 $\text{NH}_3$ の合成を効率良く行える $\text{NH}_3$ 合成触媒を適切に製造することができる。

[0180] < $\text{NH}_3$ の合成方法>

本実施形態に係る $\text{NH}_3$ の合成方法は、上記の本実施形態に係る $\text{NH}_3$ 合成触媒に、水素と窒素を含有するガスを接触させて $\text{NH}_3$ を合成する。

[0181] 本実施形態に係る $\text{NH}_3$ の合成方法は、触媒として上記の本実施形態に係る $\text{NH}_3$ 合成触媒を用いること以外は特に制限されず、例えば、触媒を用いて $\text{NH}_3$ を合成する一般的な方法を用いてよい。

[0182] 水素と窒素からアンモニアを合成する反応においては、理論上、窒素1molと水素3molとを反応させることで2molのアンモニアが得られる（ $\text{N}_2 + 3\text{H}_2 \rightarrow 2\text{NH}_3$ ）。そのため、水素と窒素を含有するガスとしては、水素と窒素のモル比（ $\text{H}_2/\text{N}_2$ ）が0.5/1～3/1となるものを用いることが好ましい。また、水素と窒素を含有するガスは、水素ガス及び窒素ガス以外にキャリアガスとしては、アルゴン等の不活性ガスを更に含有してもよいが、 $\text{NH}_3$ の生成量を増加させる点からは、水素ガス及び窒素ガスのみからなることが好ましい。

[0183] 本実施形態に係る $\text{NH}_3$ の合成触媒に水素と窒素を含有するガスを接触させる方法は、特に制限されず、触媒にガスを接触させることが可能な一般的な方法を適宜採用できる。このような $\text{NH}_3$ の合成触媒に水素と窒素を含有するガスを接触せしめる方法としては、例えば、密閉可能な反応容器内に $\text{NH}_3$ 合成触媒を充填した後、反応容器内の雰囲気ガスを水素と窒素を含有するガスと置換することにより、 $\text{NH}_3$ 合成触媒に水素と窒素を含有するガスを接触さ

せる方法、ガス流通管の内部に $\text{NH}_3$ 合成触媒を配置し、該ガス流通管内に水素と窒素を含有するガスを流通させることで $\text{NH}_3$ 合成触媒に水素と窒素を含有するガスを接触させる方法等を適宜用いることができる。

[0184] 本実施形態に係る $\text{NH}_3$ 合成触媒に水素と窒素を含有するガスを接触させて $\text{NH}_3$ を合成する反応を行う場合、その反応温度は、高温になるほど平衡濃度が低くなるため、 $300^\circ\text{C} \sim 500^\circ\text{C}$ としてよい。また、このような反応を行う際の圧力条件は、特に制限されず、 $\text{NH}_3$ の合成に必要なエネルギーをより低減する点から、 $0.1\text{ MPa} \sim 10\text{ MPa}$ としてよい。

[0185] 本実施形態に係る $\text{NH}_3$ の合成方法によれば、触媒として上記本実施形態に係る $\text{NH}_3$ 合成触媒が $\text{NH}_3$ 合成に優れるため、 $\text{NH}_3$ をより効率的に合成することができる。

[0186] 以上の通り、実施形態を説明したが、上記実施形態は、例として提示したものであり、上記実施形態により本発明が限定されるものではない。上記実施形態は、その他の様々な形態で実施されることが可能であり、発明の要旨を逸脱しない範囲で、種々の組み合わせ、省略、置き換え、変更などを行うことが可能である。これら実施形態やその変形は、発明の範囲や要旨に含まれると共に、特許請求の範囲に記載された発明とその均等の範囲に含まれる。

## 実施例

[0187] 以下、実施例を示して実施形態を更に具体的に説明するが、実施形態はこれらの実施例により限定されるものではない。

[0188] <実施例>

本実施例では、触媒の調製と、触媒の反応により窒素及び水素から $\text{NH}_3$ を合成する際の触媒反応に対応する計算を行うことで、 $\text{NH}_3$ 合成速度を求めた。触媒の $\text{NH}_3$ 合成速度を算出する際、実際には、触媒を調製し、調整した触媒の触媒反応によって窒素及び水素から生じた $\text{NH}_3$ の合成量を測定することで、 $\text{NH}_3$ 合成速度が算出される。触媒の調製と、調整した触媒の触媒反応とに対応した計算を行うことで、実際に触媒を用いた時に合成される $\text{NH}_3$ 合成

速度と略同じ $\text{NH}_3$ 合成速度が得られる。なお、計算には、ニューラルネットワークポテンシャル（NNP）として、MATLANTIS（登録商標）を使用した。

[0189] 触媒として用いた候補触媒及び参照触媒と、計算時の温度及び圧力は、以下の通りである。

- ・ 候補触媒： $\text{Pd}_3\text{V}$ 、 $\text{CrRh}_3$ 、 $\text{Co}_3\text{Rh}$ 、 $\text{IrMn}$ 、 $\text{IrSc}$
- ・ 参照触媒： $\text{Ru}$ 、 $\text{Re}$ 、 $\text{Pt}$
- ・ 温度： $523\text{ K}$
- ・ 圧力： $0.8\text{ bar}$

[0190] [触媒の調製]

触媒が複数の元素で構成された合金である場合には、触媒は所望の組成においてそれぞれの金属に凝集分離することなく合金化している必要がある。複数の元素を混合した際に合金化するかどうかは触媒構造の安定性により評価することができる。そのため、実験における触媒の調製は、触媒（合金）の構造の安定性に略対応するといえる。そこで、触媒の調製に対応する、触媒の構造の安定性をクラスターモデルにより計算した。

[0191] 実際の実験構造を再現する構造を計算するため、クラスターモデルで組成を振り、2310種類の構造のパターンを有する触媒（合金）を作成し、触媒の安定構造を遺伝的アルゴリズムを用いて探索した。探索により、候補となる組成を有する触媒の安定性を計算することで、候補となる組成を有する触媒は凝集分離することなく安定化（合金化）することを確認した。

[0192] 本実施例では、2種類の元素（元素1、2）、55原子からなるクラスター構造を用意し、遺伝的アルゴリズムを用いて、各合金組成において最安定となる元素の位置を探索した。各クラスター構造は新しく構造が生成されるたびに構造最適化を行った。元素1、2からなるクラスター構造の安定性は、過剰エネルギー $E_{\text{exc}}$ で評価した。過剰エネルギー $E_{\text{exc}}$ は、下記式（11）より求めた。過剰エネルギー $E_{\text{exc}}$ は、元素1、2がそれぞれ混ざっていなかったときと比較して、合金クラスター構造がどれだけ安定しているかを示す。

$$E_{exc} = (E_{cluster} - n_{Metal1} \times E_{Metal1} - n_{Metal2} \times E_{Metal2}) / 5 \quad \dots (11)$$

(式中、 $E_{cluster}$ は合金クラスターのエネルギー、 $n_{Metal1}$ はクラスター中の元素1の原子数、 $E_{Metal1}$ は単原子1で構成されたときのクラスター構造のエネルギー、 $n_{Metal2}$ はクラスター中の元素2の原子数、 $E_{Metal2}$ は単原子2で構成されたときのクラスター構造のエネルギーを表す。)

[0193] 触媒がCrRh合金である場合、図21に示すように、CrとRhとの組成比が1:3、即ちCrの元素数が13個であり、Rhの元素数が42個であるとき、最安定構造の過剰エネルギー $E_{exc}$ は負の値となり、CrRh合金は安定化(合金化)することを確認した。このとき、CrRh合金の直径は、約1.09nmであった。

[0194] 触媒がIrMn合金である場合、図22に示すように、IrとMnとの組成比が1:1、即ちIrの元素数が27個であり、Mnの元素数が28個であるとき、最安定構造の過剰エネルギー $E_{exc}$ は負の値となり、IrMn合金は安定化(合金化)することを確認した。このとき、IrMn合金の直径は、約1.03nmであった。

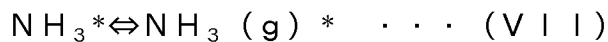
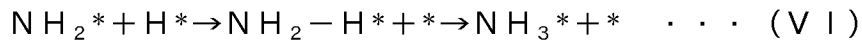
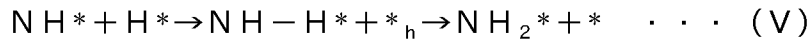
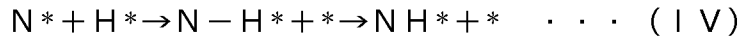
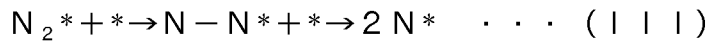
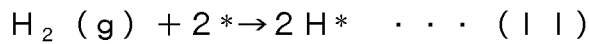
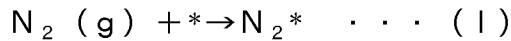
[0195] [触媒反応]

触媒反応は、触媒のNH<sub>3</sub>合成に関する全ての素反応から得られる反応速度のシミュレーション(Microkinetics)の結果に略対応する。そこで、触媒反応に対応する結果を得るため、Microkineticsを行い、触媒のNH<sub>3</sub>合成速度を計算した。Microkineticsは、素反応の列挙、素反応のエネルギーの計算及び反応速度の計算からなる。

[0196] (素反応の列挙)

触媒のNH<sub>3</sub>合成に関する全ての素反応は、以下の7つの式(1)～(VII)で表される。なお、式中の「\*」は、原料に含まれる元素、分子等の反応成分が吸着する触媒の表面の空の吸着サイトを意味する。式(1)～(VII)において、原料は、N<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>であり、原料の中間体は、N<sub>2</sub>\*, H\*, NH\*, NH<sub>2</sub>\*, NH<sub>3</sub>\*であり、中間体の遷移状態は、N-N\*, N-H\*, NH-

$\text{H}^*$ 、 $\text{NH}_2\text{-H}^*$ である。



#### [0197] (素反応のエネルギーの計算)

触媒の $\text{NH}_3$ 合成に関する全ての素反応のエネルギーの計算は、以下の通り行った。

まず、気相中の分子( $\text{N}_2$ 、 $\text{H}_2$ 、 $\text{NH}_3$ )は、真空中で構造最適化を行った。合金のバルク構造は、公知のデータベース(Mamun, 0, et al. Sci Data 6, 76 (2019).)より取得し、合金の結晶構造を維持したまま構造最適化を行った。得られたバルク構造に対して、合金の特定の表面((0001)面、(111)面又は(101)面)を切り出し、5層から構成されるスラブ構造を得た。5層のうち、下側の3層を固定し、上側の2層を緩和して、スラブ構造の構造最適化を行った。

次に、素反応に含まれる中間体構造はスラブ構造上に吸着分子を配置し、minima hopping法により安定構造を探索した。遷移状態構造は、素反応の始状態と終状態構造を用意した後、NEB法により探索した。それぞれの構造最適化は、 $f_{\text{max}} < 0.01 [\text{eV}/\text{\AA}]$ となるように行った。なお、 $f_{\text{max}}$ とは、構造最適化に用いる収束条件である。各原子に加わっている力が $f_{\text{max}}$ 以下になったときに十分に安定な構造になったとみなし、構造最適化を終了した。

各構造最適化後の中間体、遷移状態構造のエネルギーは、下記式(12)より、相対エネルギー $E_{\text{reference}}$ として算出した。

$$E_{\text{reference}} = E_{\text{slab+ads}} - E_{\text{slab}} - (x E_{\text{N}} + y E_{\text{H}}) \quad \dots (12)$$

(式中、 $E_{s\text{lab}+ads}$ は表面に分子が吸着した構造のエネルギー、 $E_{s\text{lab}}$ はスラブ構造のエネルギー、 $E_N$ は気体の $N_2$ を基準とした元素のエネルギー、 $E_H$ は気体の $H_2$ を基準とした元素のエネルギー、 $x$ は吸着分子の $N$ の数、 $y$ は吸着分子の $H$ の数を表す。)

[0198] (反応速度の計算)

気相分子( $N_2$ 、 $H_2$ 、 $NH_3$ )は理想気体近似、中間体及び遷移状態構造は調和振動近似により、エンタルピー、エントロピーを算出した。各素反応の反応速度定数は振動計算結果をもとに遷移状態理論に基づいて算出し、 $NH_3$ 合成速度は連立常微分方程式を解くことにより得た。

[0199] 候補触媒及び参照触媒により合成される $NH_3$ 合成速度の計算結果を表2に示す。また、候補触媒及び参照触媒の、触媒と窒素の中間体( $N^*$ )との吸着エネルギー( $E_N$ )と、候補触媒及び参照触媒により合成される $NH_3$ 合成速度の計算結果との関係を図23に示す。また、参照触媒の、触媒と窒素の中間体( $N^*$ )との吸着エネルギー( $E_N$ )と、合成される $NH_3$ 合成速度との実験結果を図24に示す。なお、図24は、Andrew J. Medford et al. "From the Sabatier principle to a predictive theory of transition-metal heterogeneous catalysis", Journal of Catalysis, August 2015, Vol. 328, p. 36-42に基づくものである。図23及び図24において、 $NH_3$ 合成速度( $NH_3$ の収率)を常用対数( $\log_{10}$ )に換算した値で示す。

[0200]

[表2]

| 触媒   |                    | 計算に用いた<br>素反応 | 温度<br>[K] | 圧力<br>[bar] | NH <sub>3</sub> 合成速度<br>[1/s] |
|------|--------------------|---------------|-----------|-------------|-------------------------------|
| 参照触媒 | Ru                 | 全ての素反応        | 523       | 0.8         | $1.05 \times 10^{-13}$        |
|      | Pt                 | 全ての素反応        | 523       | 0.8         | $1.80 \times 10^{-29}$        |
|      | Re                 | 全ての素反応        | 523       | 0.8         | $4.51 \times 10^{-22}$        |
| 候補触媒 | IrMn               | 全ての素反応        | 523       | 0.8         | $1.08 \times 10^{-14}$        |
|      | CrRh <sub>3</sub>  | 全ての素反応        | 523       | 0.8         | $1.33 \times 10^{-12}$        |
|      | Pd <sub>3</sub> V  | 全ての素反応        | 523       | 0.8         | $2.66 \times 10^{-12}$        |
|      | IrSc               | 全ての素反応        | 523       | 0.8         | $3.35 \times 10^{-16}$        |
|      | Co <sub>3</sub> Rh | 全ての素反応        | 523       | 0.8         | $2.08 \times 10^{-13}$        |

[0201] 表2、図23及び図24に示すように、参照触媒については、NH<sub>3</sub>合成速度は、Ru、Re、Ptの順に高く、参照触媒を用いた時のNH<sub>3</sub>合成速度は、実験結果と計算結果で同等の関係を示した。表2、図23に示すように、候補触媒については、NH<sub>3</sub>合成速度は、Pd<sub>3</sub>V、CrRh<sub>3</sub>、Co<sub>3</sub>Rh、IrMn、IrScのうちPd<sub>3</sub>Vが最も高く、Pd<sub>3</sub>V、CrRh<sub>3</sub>、Co<sub>3</sub>Rh、IrMn、IrScの順に高かった。よって、実際に候補触媒を用いた時のNH<sub>3</sub>合成速度も、Pd<sub>3</sub>V、CrRh<sub>3</sub>、Co<sub>3</sub>Rh、IrMn、IrScのうちPd<sub>3</sub>Vが最も高く、Pd<sub>3</sub>V、CrRh<sub>3</sub>、Co<sub>3</sub>Rh、IrMn、IrScの順に低くなるといえる。

[0202] また、候補触媒として、Pd<sub>3</sub>V、CrRh<sub>3</sub>、Co<sub>3</sub>Rh、IrMn、Ir

Scの5種類の触媒以外に、上述の通り、上述の触媒の選択方法により選択される触媒として、他に25種類の触媒 ( $\text{FePd}_3$ 、 $\text{MnTc}_3$ 、 $\text{IrY}$ 、 $\text{CrPd}_3$ 、 $\text{MnPd}_3$ 、 $\text{RhY}$ 、 $\text{Co}_3\text{Pt}$ 、 $\text{CrPt}_3$ 、 $\text{FeRh}_3$ 、 $\text{Ni}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ir}_3\text{V}$ 、 $\text{Pt}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Pd}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ni}_3\text{Zr}$ 、 $\text{Co}_3\text{W}$ 、 $\text{NiPd}_3$ 、 $\text{FeNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Mn}$ 、 $\text{MnPt}$ 、 $\text{MnNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Re}$ 、 $\text{MnRh}$ 、 $\text{MnPt}_3$ 、 $\text{Rh}_3\text{V}$ 及び $\text{Rh}_3\text{Ti}$ )がある。これら25種類の触媒を用いた時の $\text{NH}_3$ 合成速度を計算していないが、上記の25種類の触媒は、候補触媒として計算した上記の5種類の触媒 ( $\text{Pd}_3\text{V}$ 、 $\text{CrRh}_3$ 、 $\text{Co}_3\text{Rh}$ 、 $\text{IrMn}$ 、 $\text{IrSc}$ )と同様、上述の触媒の選択方法により選択される触媒である。よって、上記の25種類の触媒についても、上記の5種類の触媒と同様に、 $\text{NH}_3$ 合成速度を高めるといえる。

[0203] よって、候補触媒は、いずれも、参照触媒の何れかと同等以上の $\text{NH}_3$ 合成速度を有するといえる。したがって、上述の触媒の選択方法により選択される触媒は、 $\text{NH}_3$ を効率良く製造可能な $\text{NH}_3$ 合成触媒として用いられるといえる。

[0204] 本出願は、2022年7月4日に日本国特許庁に出願した特願2022-107476に基づいて優先権を主張し、前記出願に記載された全ての内容を援用する。

## 符号の説明

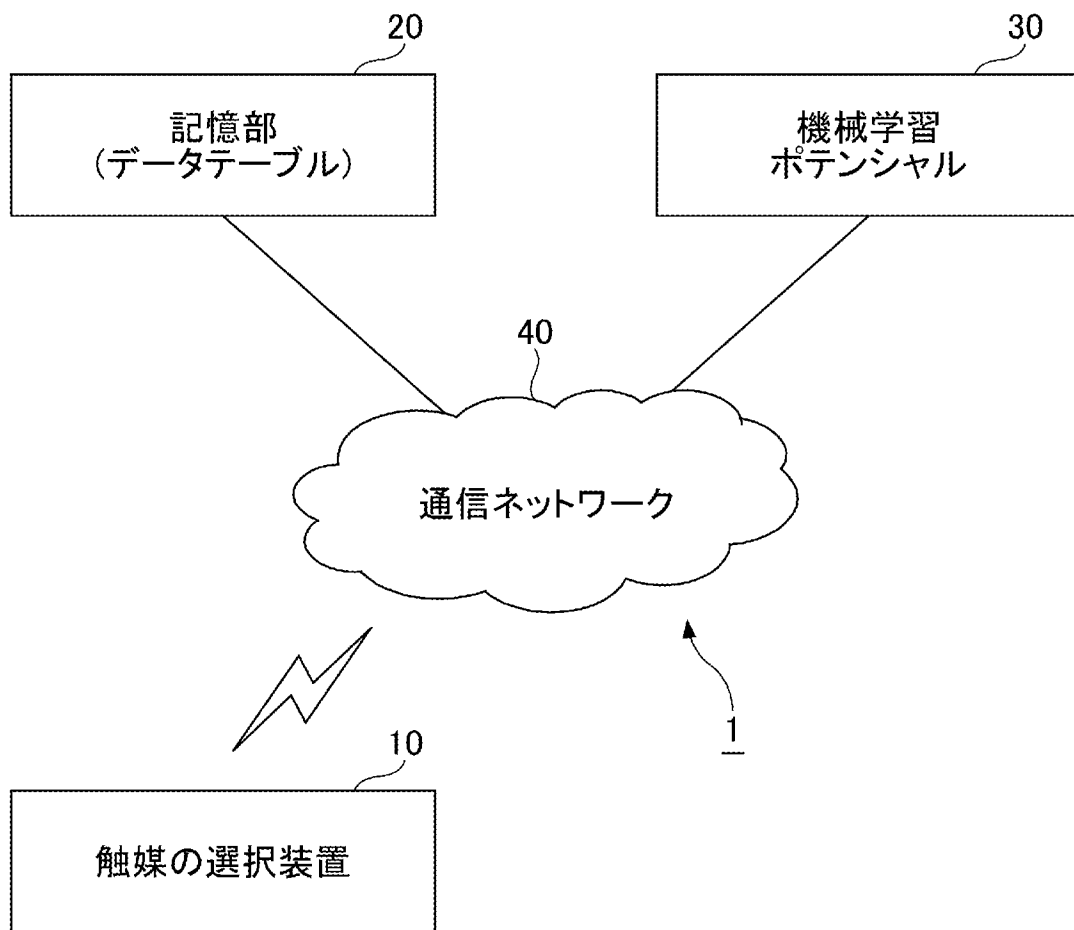
- [0205] 1 触媒の選択システム
- 10 触媒の選択装置
  - 11 記述子選択部
  - 12 マップ作成部
  - 13 準備部
  - 14 第1算出部
  - 15 第1プロット部
  - 16 第1スクリーニング部
  - 17 第2算出部

- 1 8 第2プロット部
- 1 9 第2スクリーニング部
- 2 1 絞り込み部
- 2 2 出力部
- 2 0 記憶部
- 3 0 機械学習ポテンシャル
- 1 4 1、1 7 1 第1構造最適化部
- 1 4 2、1 7 2 第2構造最適化部
- 1 4 3 第1遷移状態エネルギーの取得部
- 1 7 3 第2遷移状態エネルギーの取得部

### 請求の範囲

- [請求項1]  $\text{IrSc}$ 、 $\text{FePd}_3$ 、 $\text{MnTc}_3$ 、 $\text{IrY}$ 、 $\text{CrPd}_3$ 、 $\text{MnPd}_3$ 、 $\text{RhY}$ 、 $\text{Co}_3\text{Pt}$ 、 $\text{CrPt}_3$ 、 $\text{FeRh}_3$ 、 $\text{CrRh}_3$ 、 $\text{Ni}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ir}_3\text{V}$ 、 $\text{Pt}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Co}_3\text{Rh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{Ti}$ 、 $\text{Ni}_3\text{Zr}$ 、 $\text{Co}_3\text{W}$ 、 $\text{NiPd}_3$ 、 $\text{FeNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Mn}$ 、 $\text{IrMn}$ 、 $\text{MnPt}$ 、 $\text{MnNi}_3$ 、 $\text{Ir}_3\text{Re}$ 、 $\text{MnRh}$ 、 $\text{Pd}_3\text{V}$ 、 $\text{MnPt}_3$ 、 $\text{Rh}_3\text{V}$ 及び $\text{Rh}_3\text{Ti}$ からなる群から選択された1種以上の成分を含むアンモニア合成触媒。
- [請求項2] 請求項1に記載のアンモニア合成触媒に、水素と窒素を含有するガスを接触させてアンモニアを合成するアンモニアの合成方法。

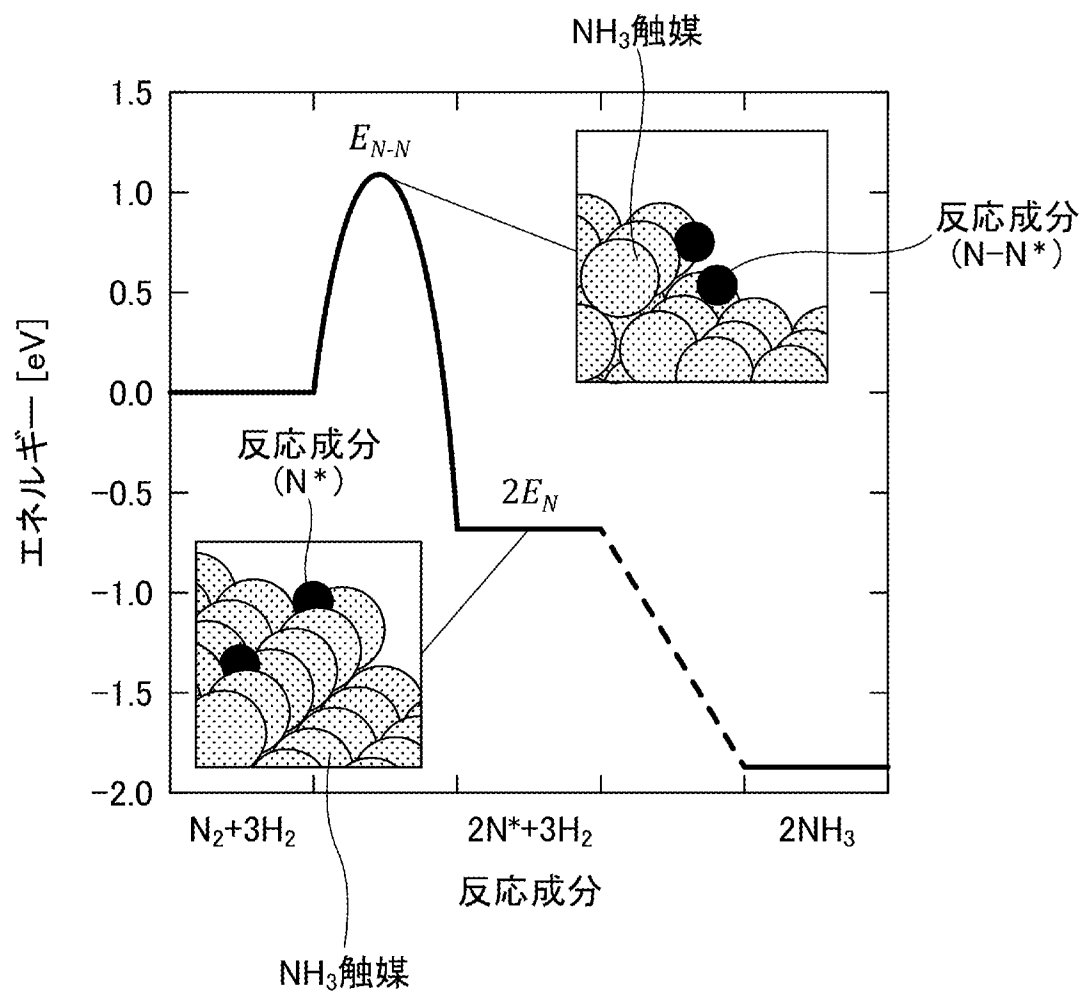
[図1]



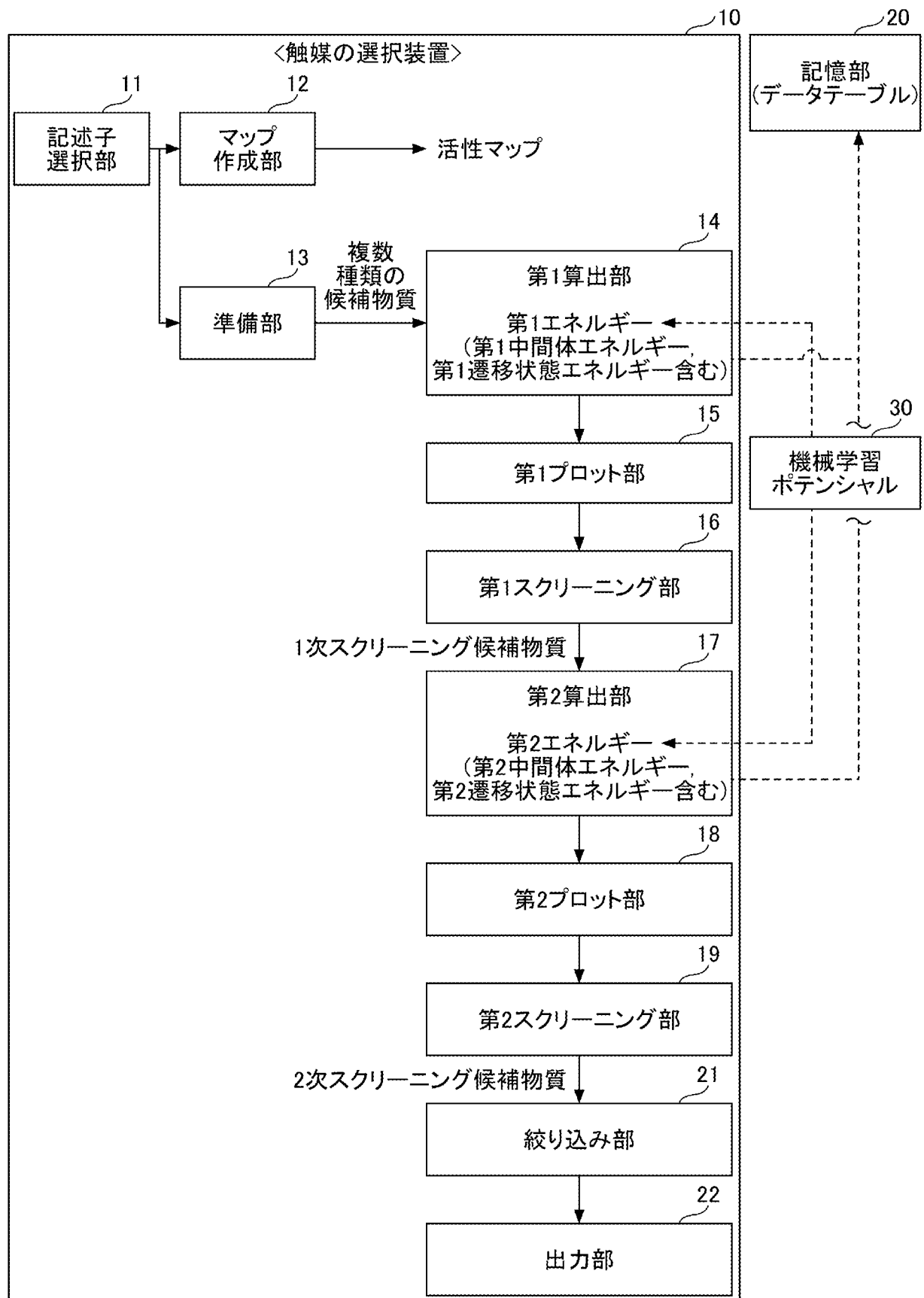
[図2]

| データテーブル |               |       |      |                                     |                                             |                                 |
|---------|---------------|-------|------|-------------------------------------|---------------------------------------------|---------------------------------|
| No      | 触媒            |       | 吸着物質 | 機械学習<br>ポテンシヤル30を<br>用いて最適化した<br>構造 | 機械学習<br>ポテンシヤル30を<br>用いて最適化した<br>エネルギー [eV] | スケーリング<br>ラインに<br>対する乖離<br>[eV] |
|         | 触媒名<br>(触媒組成) | 結晶面   |      |                                     |                                             |                                 |
| 1       | CoRh          | (111) | N*   | 中間体                                 | -0.10                                       | -                               |
| 2       | CoRh          | (211) | N*   | 中間体                                 | -0.15                                       | -                               |
| 3       | CoRh          | (111) | N-N* | 遷移状態                                | -0.50                                       | 0.1                             |
| 4       | CoRh          | (211) | N-N* | 遷移状態                                | 0.30                                        | 0.2                             |
| ⋮       | ⋮             | ⋮     | ⋮    | ⋮                                   | ⋮                                           | ⋮                               |

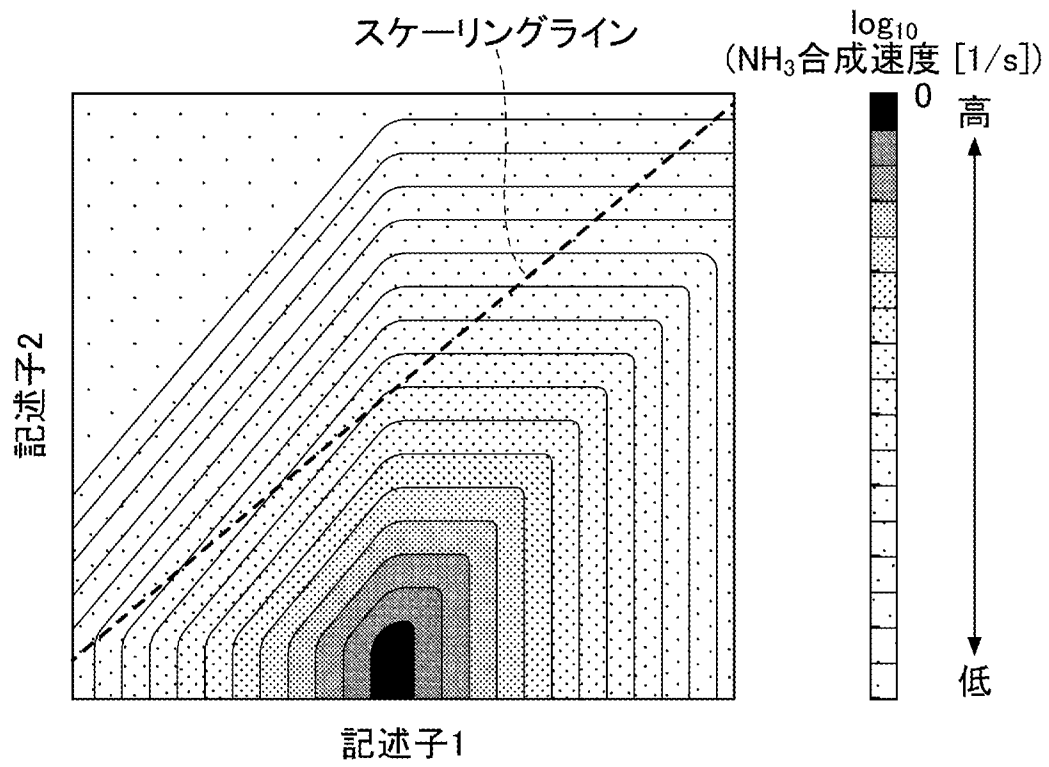
[図3]



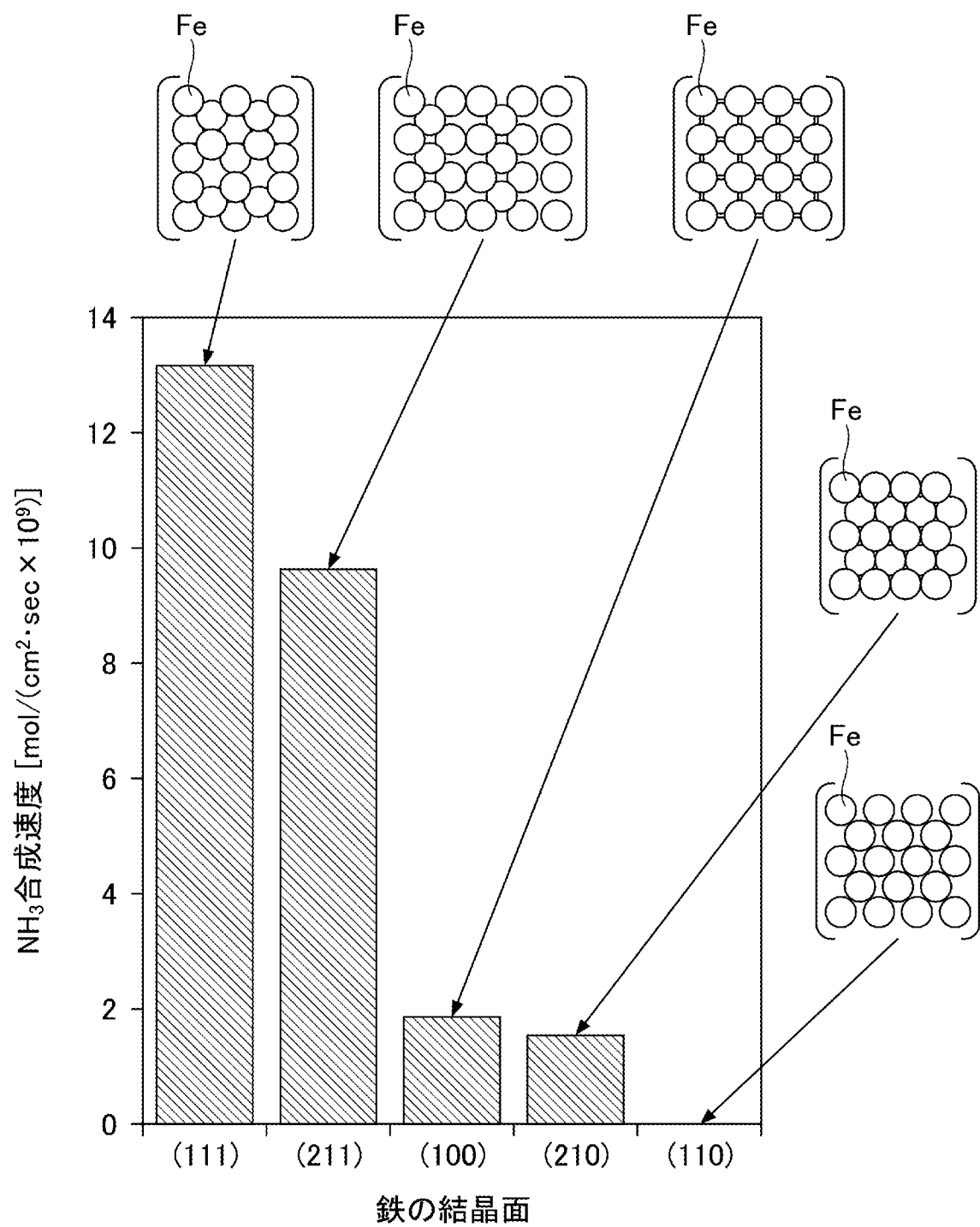
[図4]



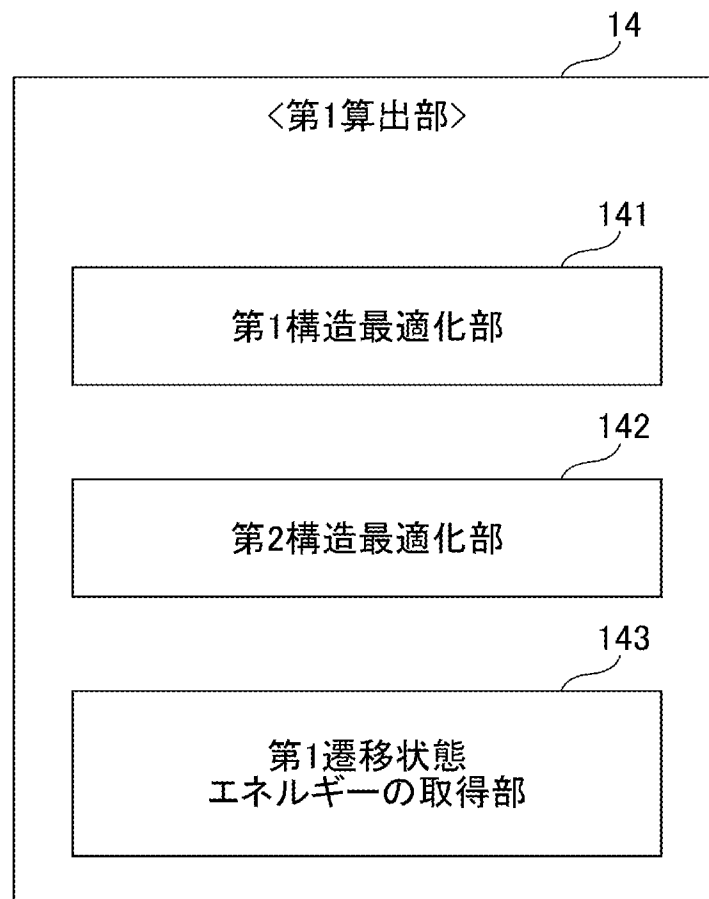
[図5]



[図6]



[図7]



[図8]

| データテーブル |               |       |      |                                     |                                                 |                                 |
|---------|---------------|-------|------|-------------------------------------|-------------------------------------------------|---------------------------------|
| No      | 触媒            |       | 吸着物質 | 機械学習<br>ポテンシャル30を<br>用いて<br>最適化した構造 | 機械学習<br>ポテンシャル30を<br>用いて<br>最適化した<br>エネルギー [eV] | スケーリング<br>ラインに<br>対する乖離<br>[eV] |
|         | 触媒名<br>(触媒組成) | 結晶面   |      |                                     |                                                 |                                 |
| 1       | 触媒1           | (111) | N*   | 中間体                                 | 0.05                                            | —                               |
| 2       | 触媒1           | (211) | N*   | 中間体                                 | 0.10                                            | —                               |
| 3       | 触媒1           | (111) | N-N* | 遷移状態                                | -0.15                                           | 3.0                             |
| ⋮       | ⋮             | ⋮     | ⋮    | ⋮                                   | ⋮                                               | ⋮                               |
| N       | 触媒N           | (111) | N-N* | 遷移状態                                | 0.07                                            | 1.2                             |

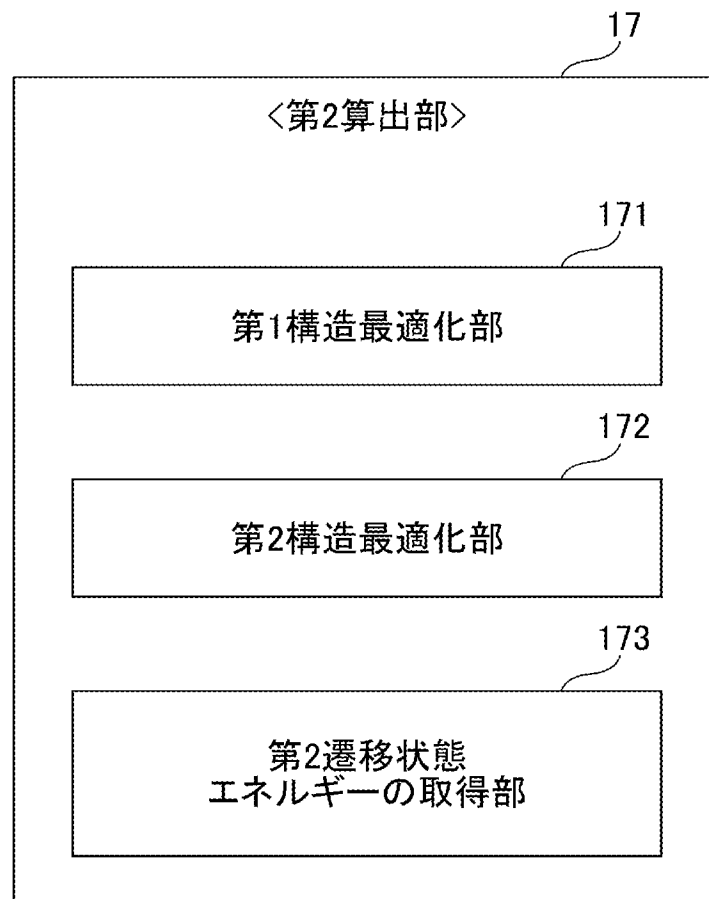


| データテーブル |               |       |      |                                     |                                                 |                                 |
|---------|---------------|-------|------|-------------------------------------|-------------------------------------------------|---------------------------------|
| No      | 触媒            |       | 吸着物質 | 機械学習<br>ポテンシャル30を<br>用いて<br>最適化した構造 | 機械学習<br>ポテンシャル30を<br>用いて<br>最適化した<br>エネルギー [eV] | スケーリング<br>ラインに<br>対する乖離<br>[eV] |
|         | 触媒名<br>(触媒組成) | 結晶面   |      |                                     |                                                 |                                 |
| N       | 触媒N           | (111) | N-N* | 遷移状態                                | 0.07                                            | 1.2                             |
| 5       | 触媒2           | (111) | N-N* | 遷移状態                                | 0.09                                            | 1.0                             |
| ⋮       | ⋮             | ⋮     | ⋮    | ⋮                                   | ⋮                                               | ⋮                               |
| ⋮       | ⋮             | ⋮     | ⋮    | ⋮                                   | ⋮                                               | ⋮                               |
| 12      | 触媒3           | (111) | N-N* | 遷移状態                                | 0.50                                            | 0.1                             |

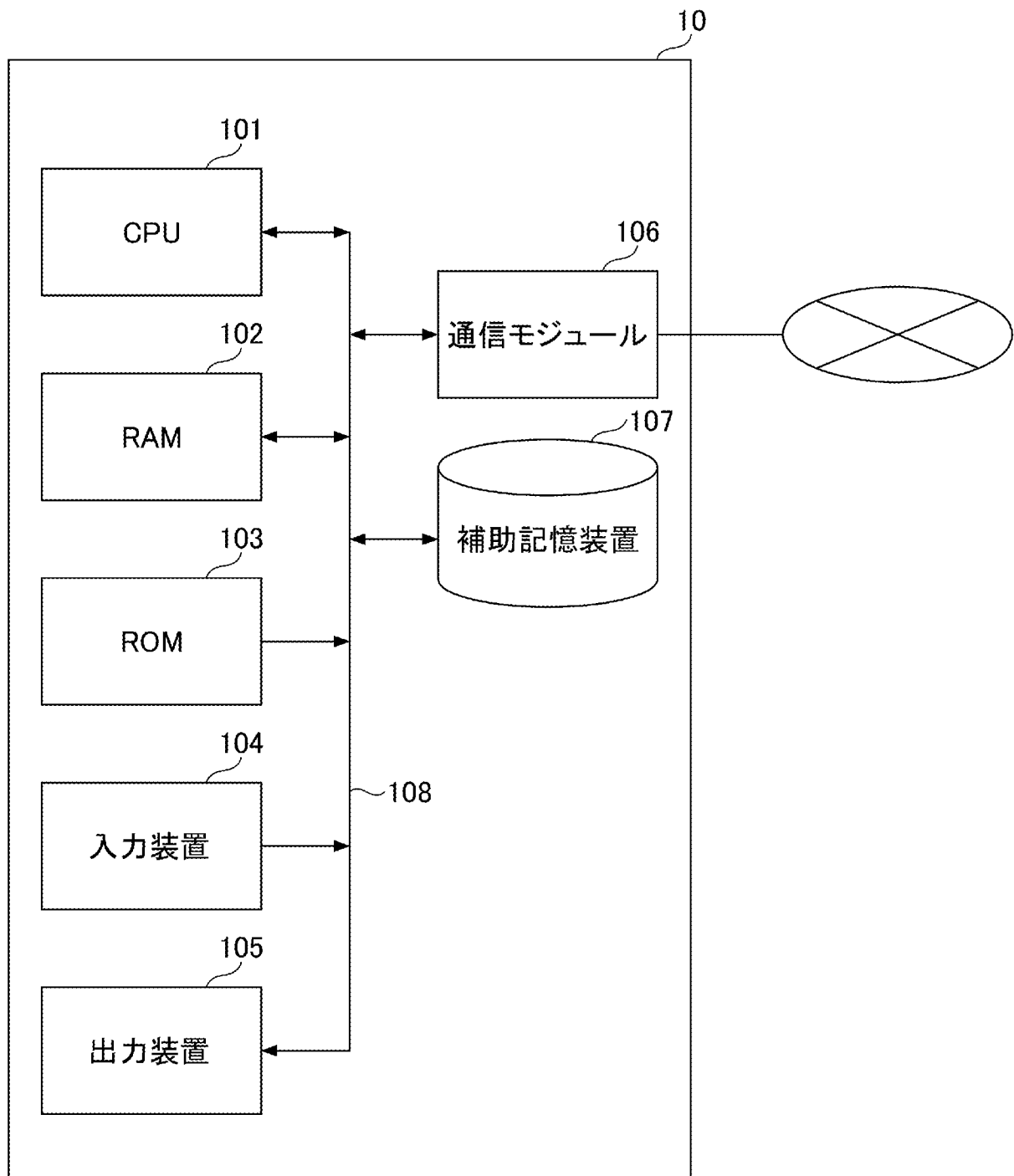
1次  
スクリーニング  
候補物質

高活性領域の  
閾値

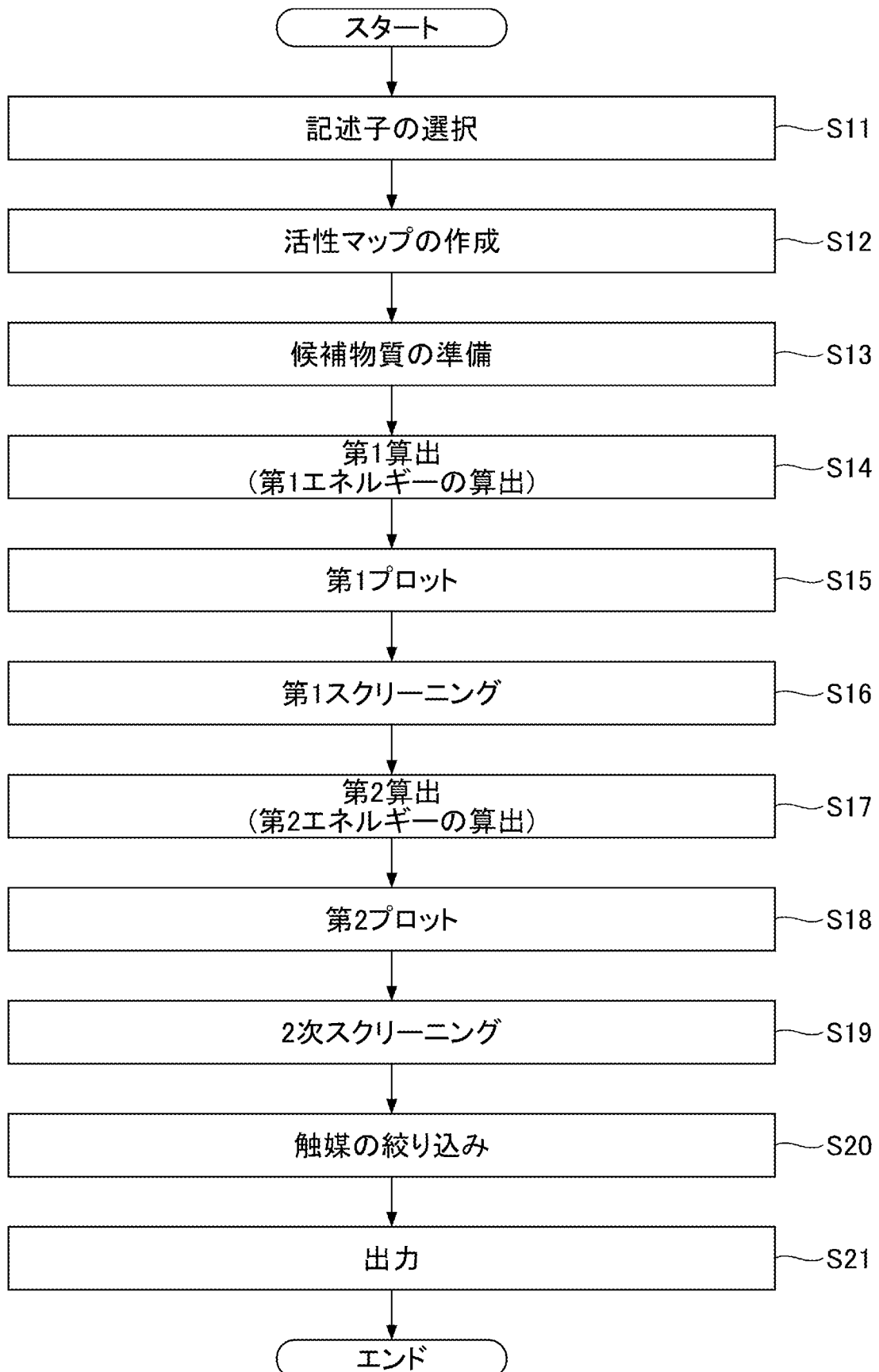
[図9]



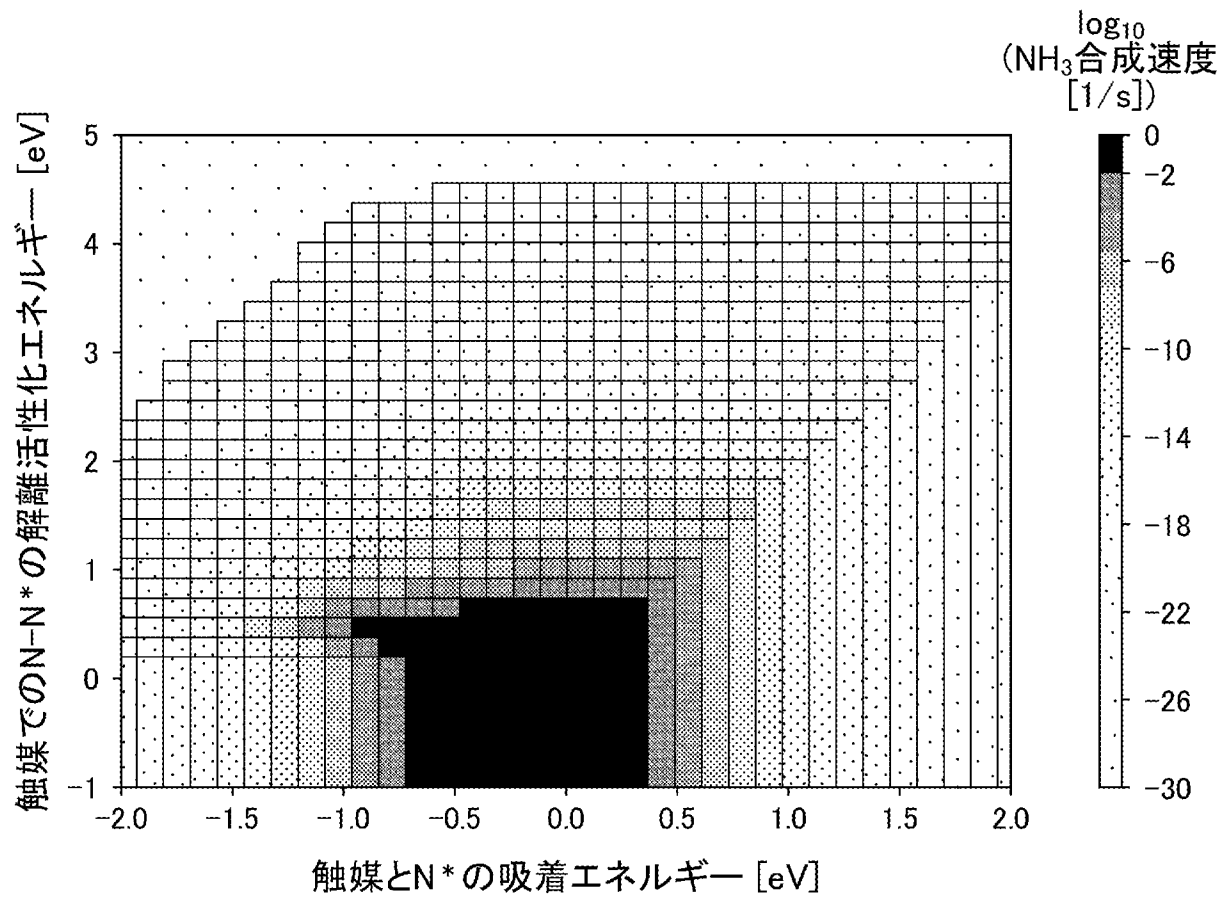
[図10]



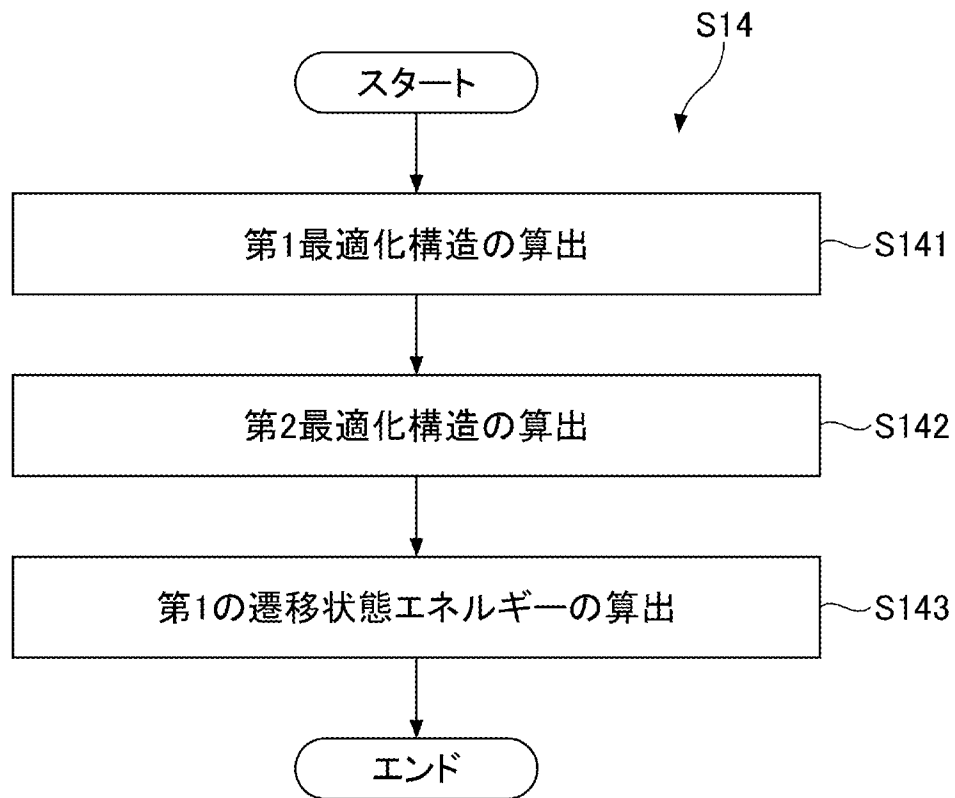
[図11]



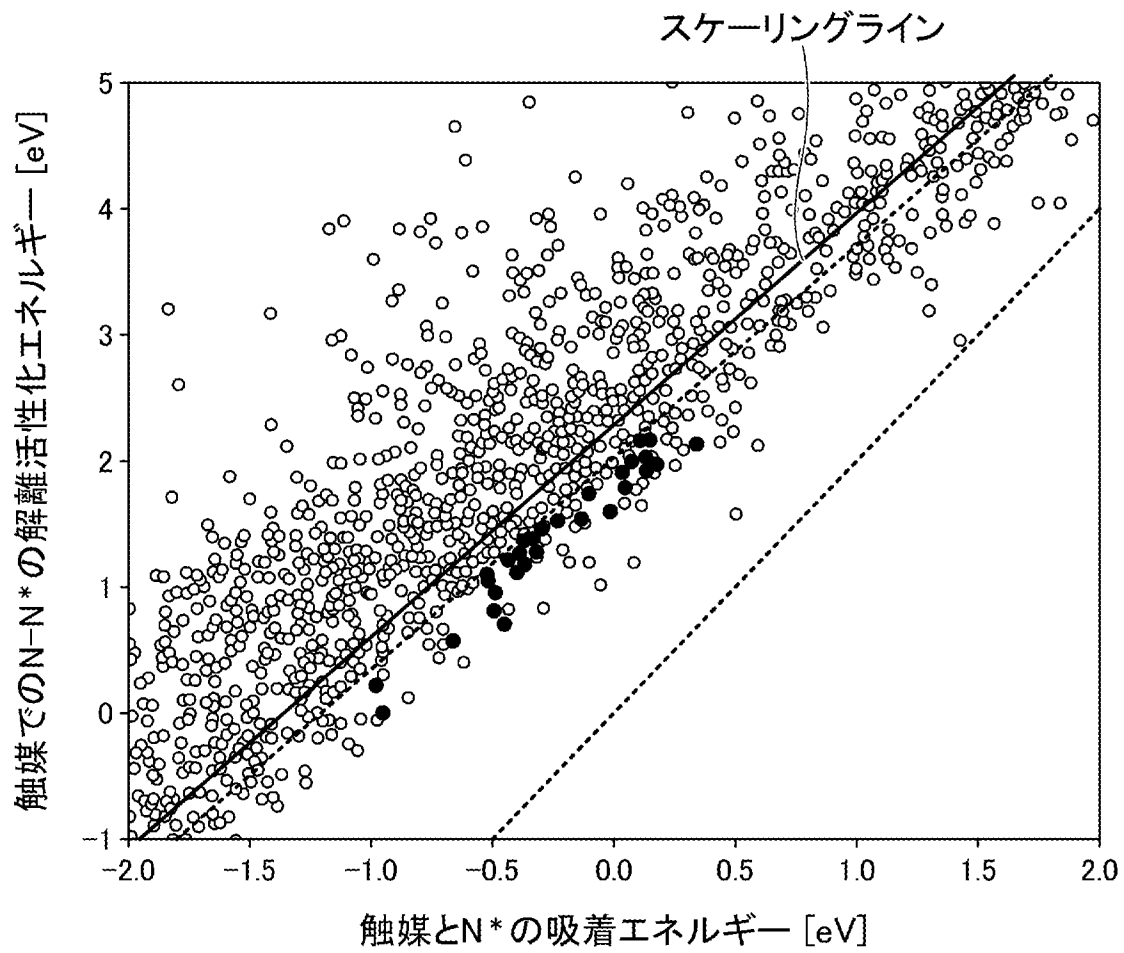
[図12]



[図13]

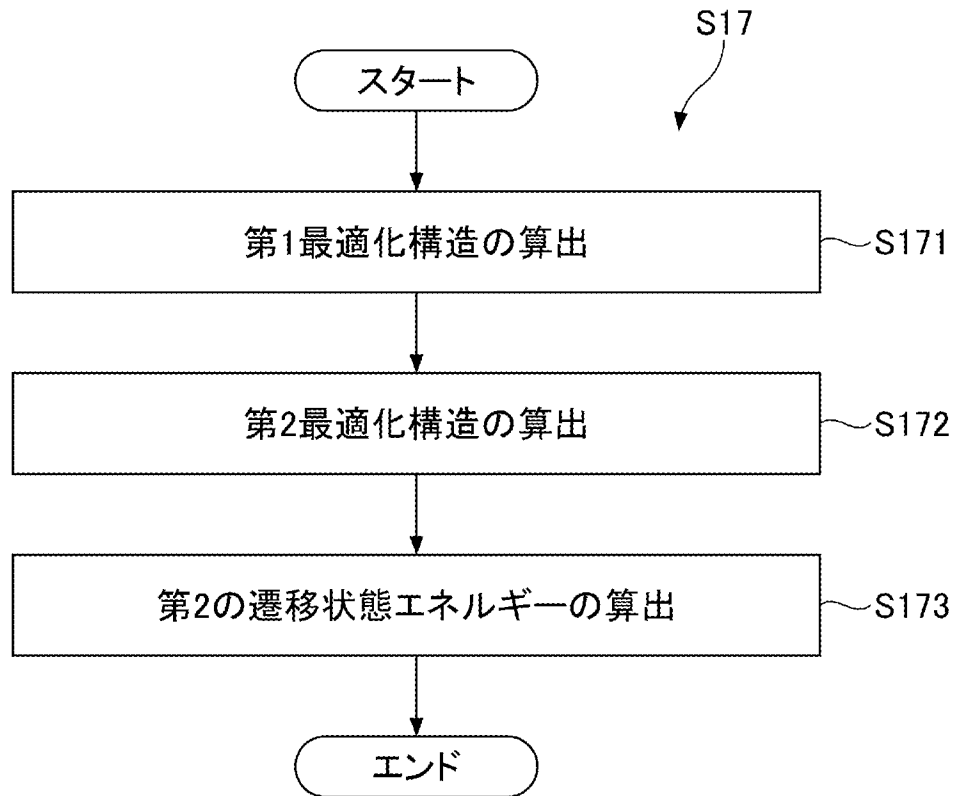


[図14]

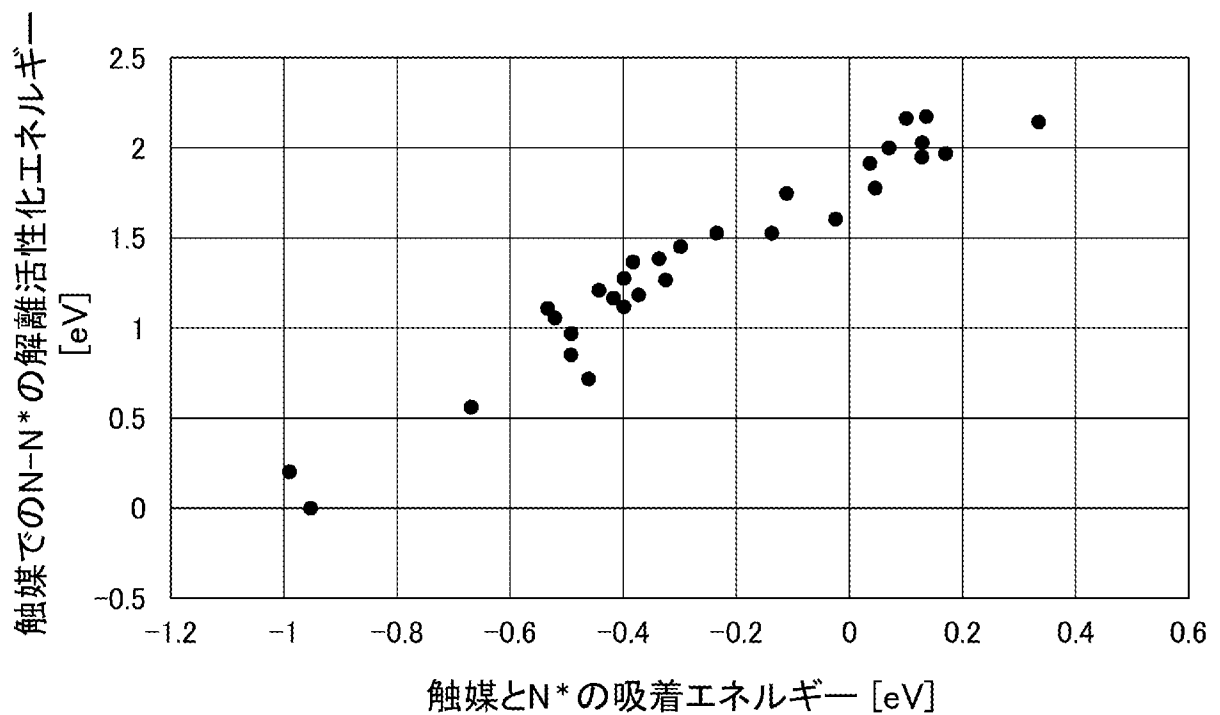


- : 候補物質 (2000種類)
- : 2次スクリーニング候補物質 (30種類)

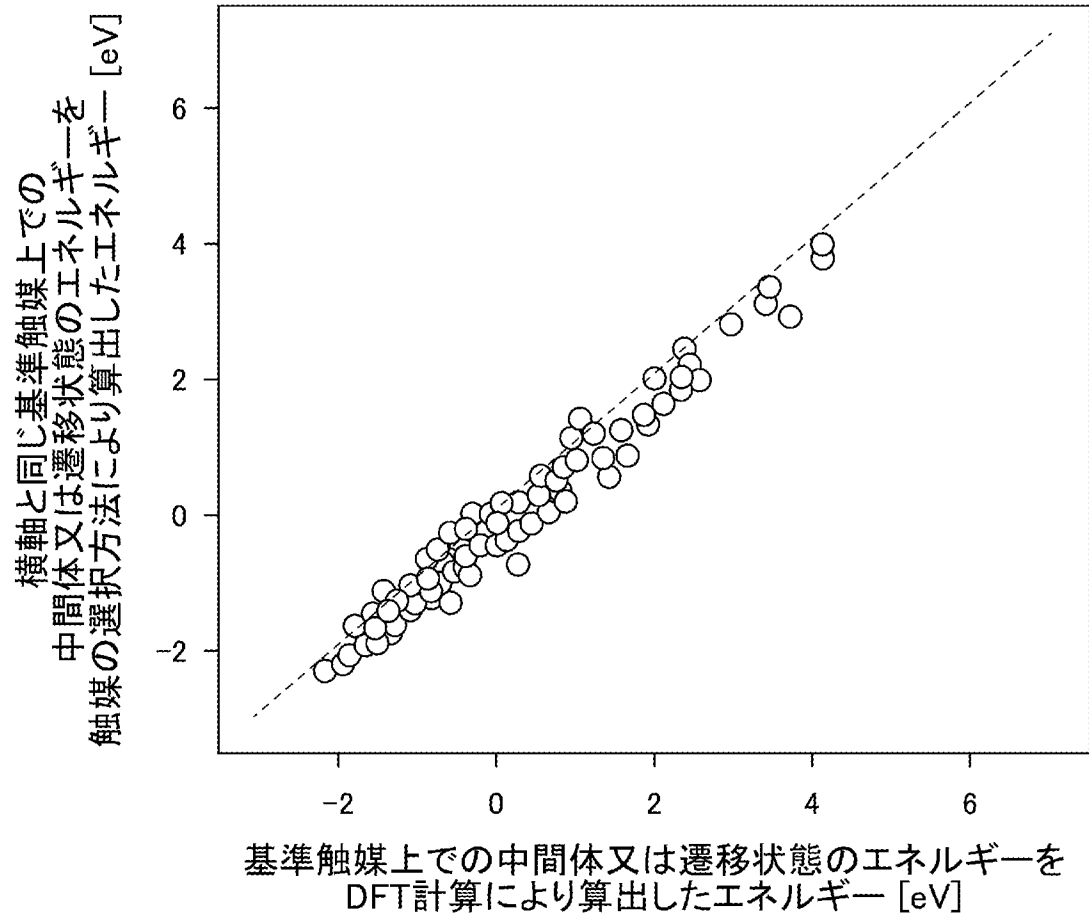
[図15]



[図16]

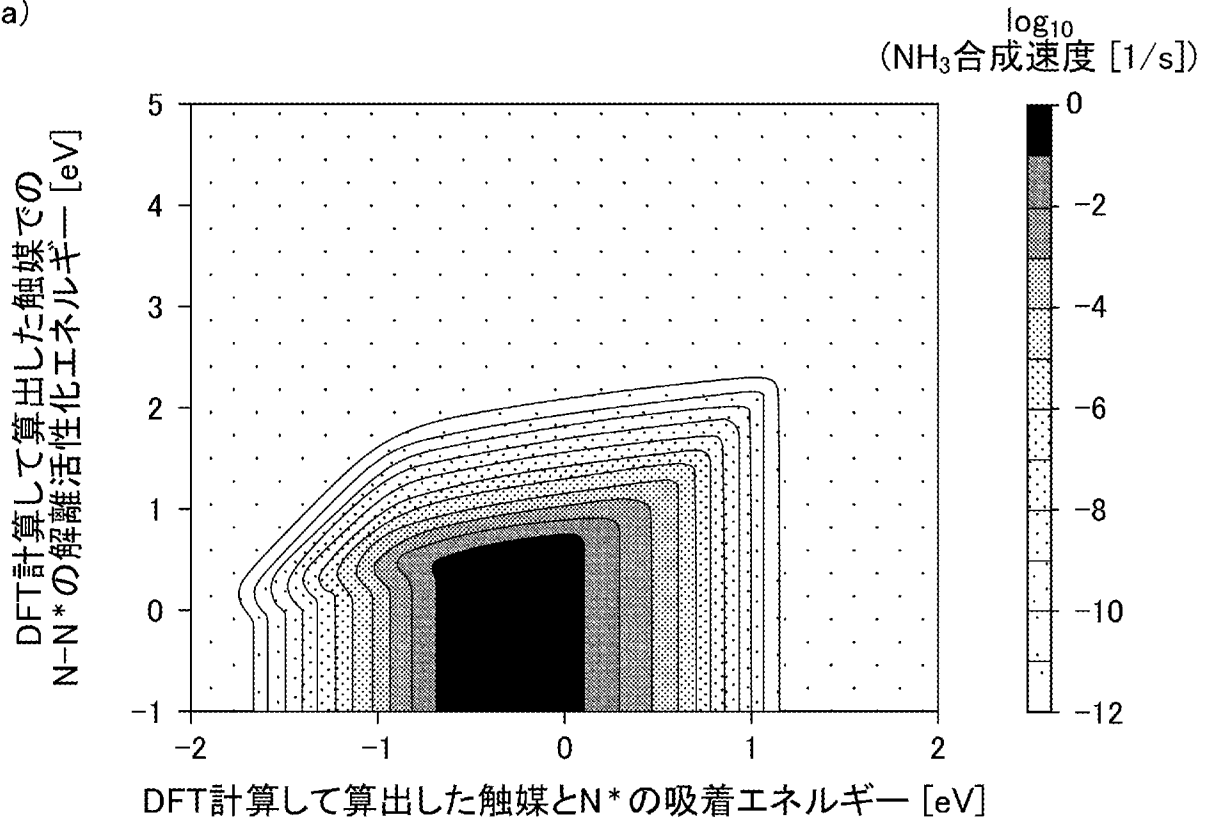


[図17]

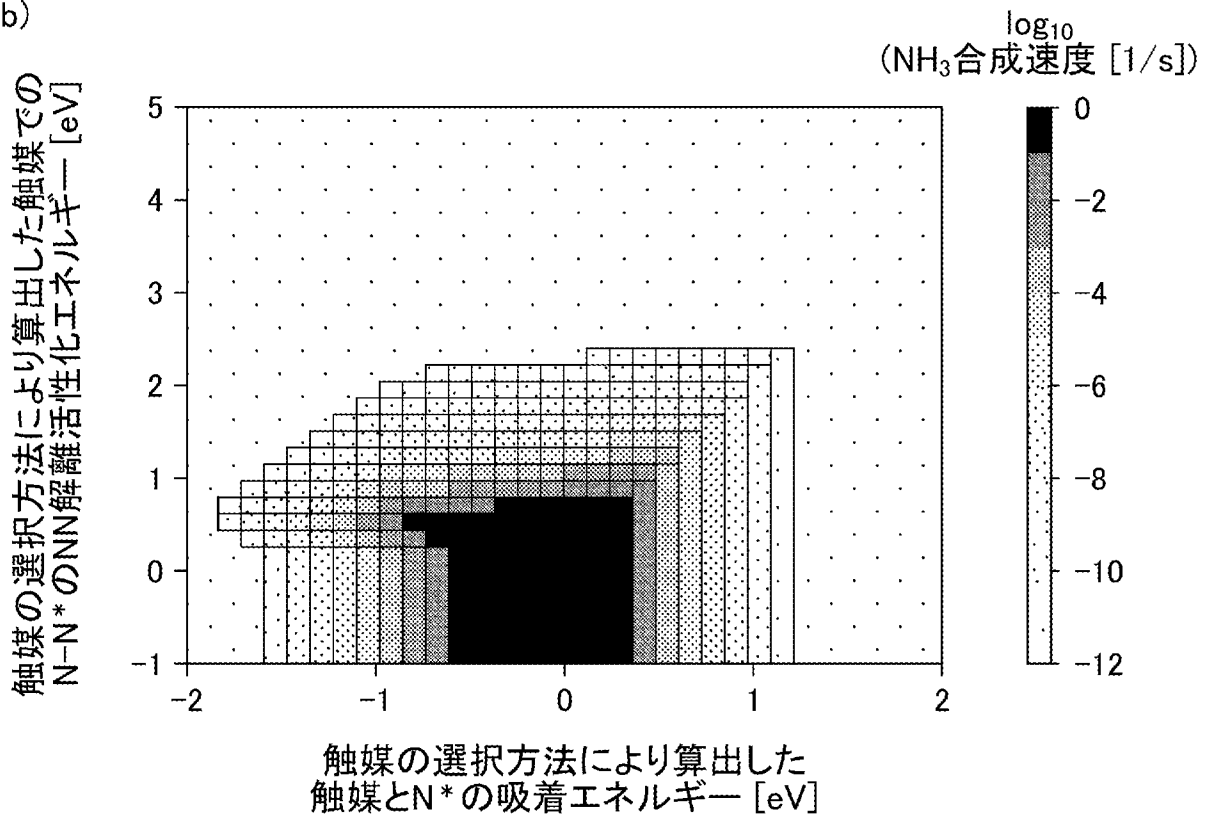


[図18]

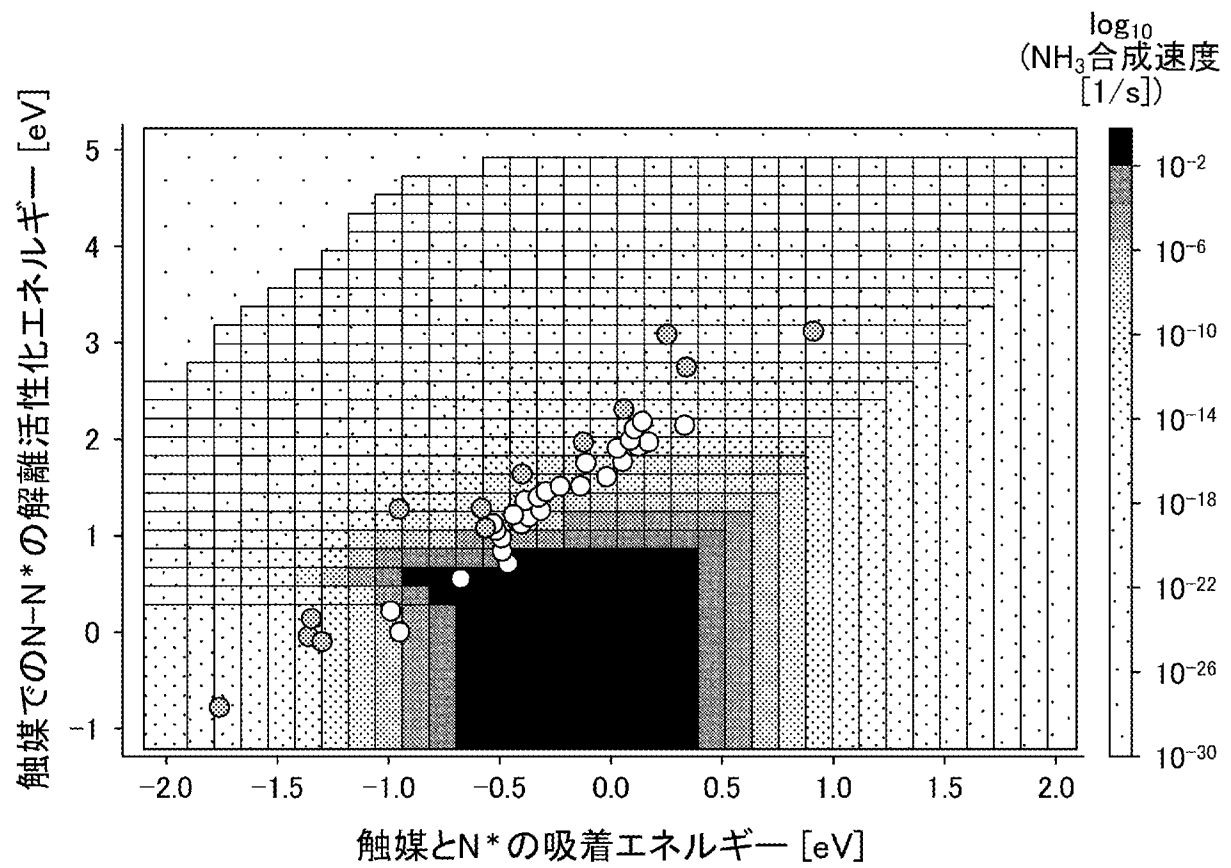
(a)



(b)



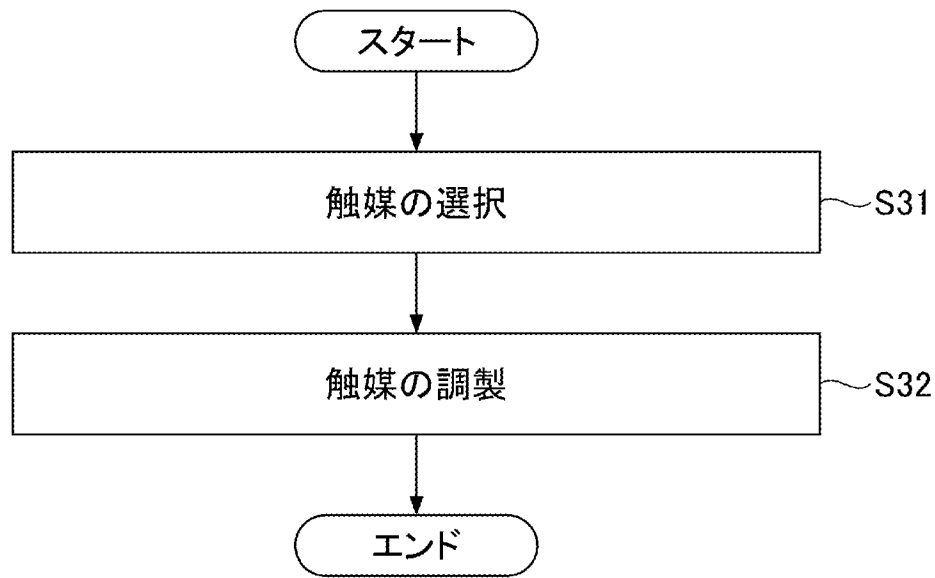
[図19]



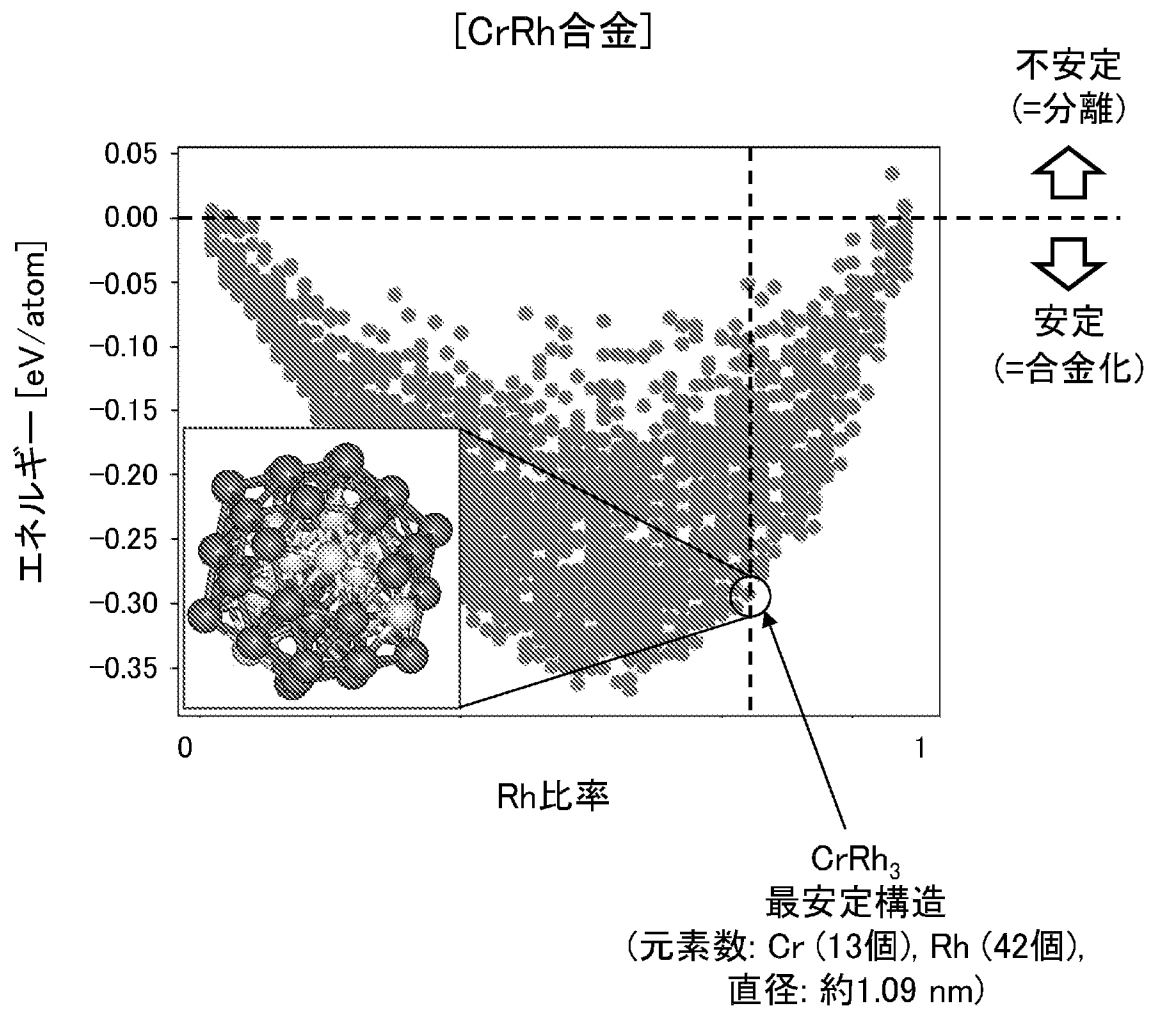
○ : 候補物質 (30種類)

● : 純金属

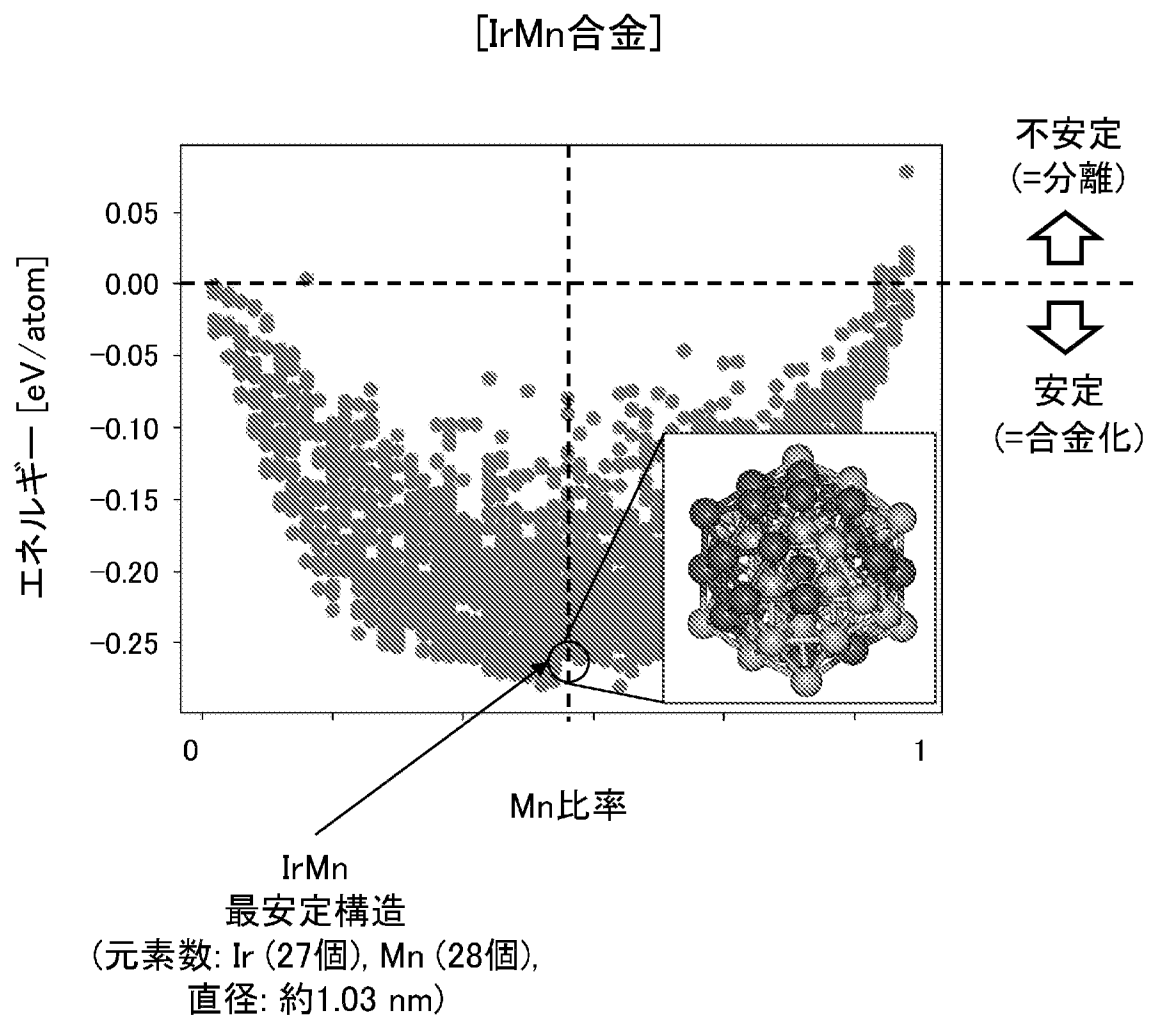
[図20]



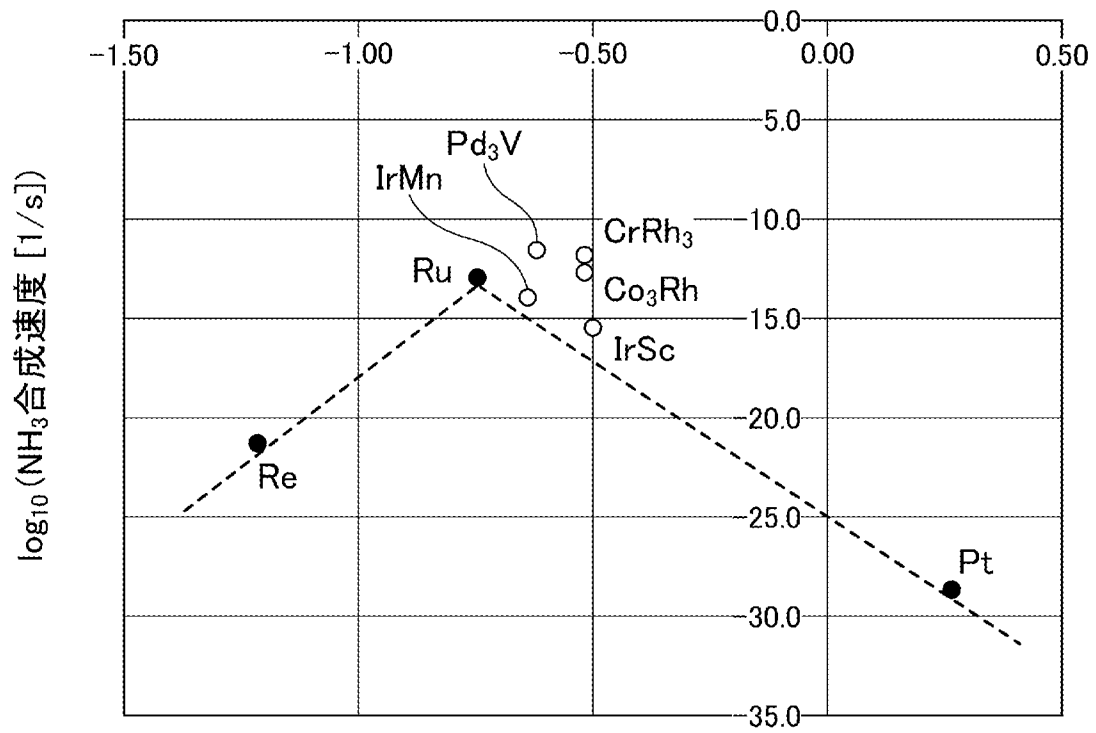
[図21]



[図22]



[図23]

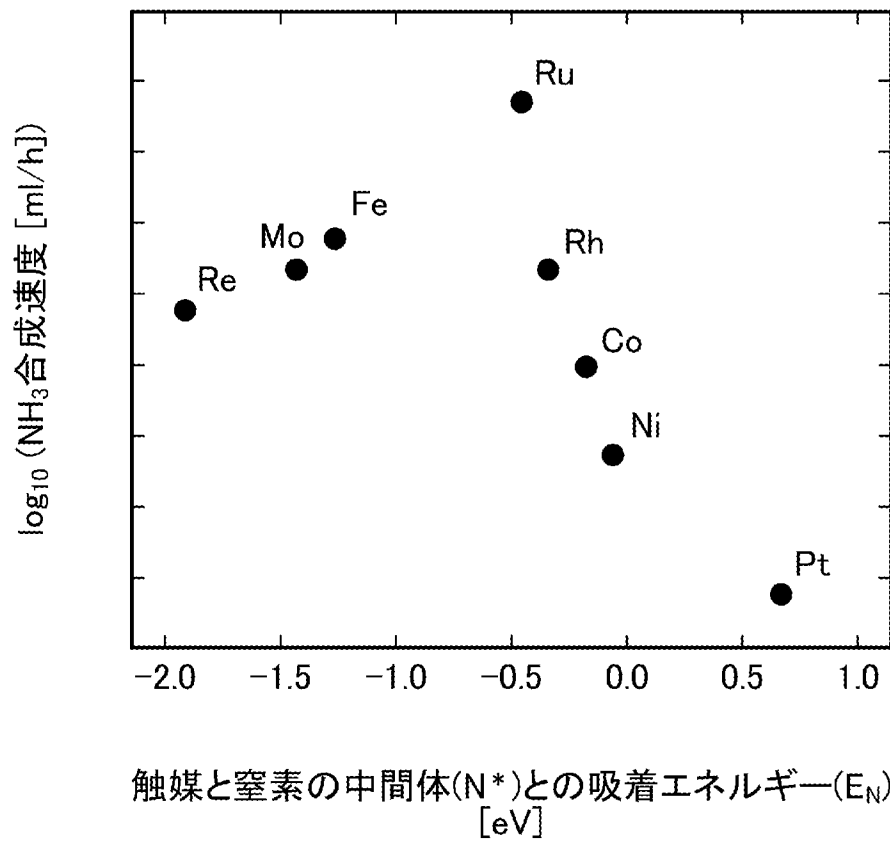


触媒と窒素の中間体( $\text{N}^*$ )との吸着エネルギー( $E_N$ )  
[eV]

○ : 候補物資

● : 参照触媒

[図24]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/024491

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

**B01J 23/63**(2006.01)i; **B01J 23/34**(2006.01)i; **B01J 23/42**(2006.01)i; **B01J 23/44**(2006.01)i; **B01J 23/46**(2006.01)i;  
**B01J 23/648**(2006.01)i; **B01J 23/652**(2006.01)i; **B01J 23/656**(2006.01)i; **B01J 23/755**(2006.01)i; **B01J 23/888**(2006.01)i;  
**B01J 23/889**(2006.01)i; **B01J 23/89**(2006.01)i; **C01C 1/04**(2006.01)i

FI: B01J23/63 M; C01C1/04 E; B01J23/89 M; B01J23/34 M; B01J23/652 M; B01J23/656 M; B01J23/755 M; B01J23/648 M; B01J23/42 M; B01J23/44 M; B01J23/888 M; B01J23/889 M; B01J23/46 311M

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01J21/00-38/74; C01C1/00-1/28; C40B20/00-30/00; C40B30/04-30/10; C40B60/04; C40B60/10-60/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996  
 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023  
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023  
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JSTPlus/JST7580/JSTChina (JDreamIII); CAPlus/REGISTRY (STN); Scopus

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                                        | Relevant to claim No. |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X         | MA, Xuelu et al. Surface Single-Cluster Catalyst for N <sub>2</sub> -to-NH <sub>3</sub> Thermal Conversion. J. Am. Chem. Soc. 15 December 2017, vol. 140, no. 1, pp. 46-49, DOI: 10.1021/jacs.7b10354 abstract, p. 47, left column, line 17 to p. 49, left column, line 2 | 1-2                   |
| A         | JP 2000-264625 A (HALDOR TOPSOE AS) 26 September 2000 (2000-09-26)<br>entire text                                                                                                                                                                                         | 1-2                   |
| A         | JP 49-014632 B1 (SAGAMI CHEMICAL RESEARCH CENTER) 09 April 1974<br>(1974-04-09)<br>entire text                                                                                                                                                                            | 1-2                   |
| A         | WO 2018/221699 A1 (FURUKAWA ELECTRIC CO LTD) 06 December 2018 (2018-12-06)<br>entire text                                                                                                                                                                                 | 1-2                   |
| A         | JP 2014-151290 A (DENSO CORP) 25 August 2014 (2014-08-25)<br>entire text                                                                                                                                                                                                  | 1-2                   |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

**07 September 2023**

Date of mailing of the international search report

**19 September 2023**

Name and mailing address of the ISA/JP

**Japan Patent Office (ISA/JP)  
 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915  
 Japan**

Authorized officer

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/024491

### C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 2020-533491 A (HASKOLI ISLANDS) 19 November 2020 (2020-11-19)<br>entire text    | 1-2                   |
| -----     |                                                                                    |                       |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2023/024491**

| Patent document<br>cited in search report |             |    | Publication date<br>(day/month/year) | Patent family member(s) | Publication date<br>(day/month/year) |
|-------------------------------------------|-------------|----|--------------------------------------|-------------------------|--------------------------------------|
| JP                                        | 2000-264625 | A  | 26 September 2000                    | (Family: none)          |                                      |
| JP                                        | 49-014632   | B1 | 09 April 1974                        | US 3830753              | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | whole document          |                                      |
|                                           |             |    |                                      | GB 1367112              | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | DE 2114769              | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | FR 2112957              | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | NL 7112535              | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | IT 939812               | B                                    |
| WO                                        | 2018/221699 | A1 | 06 December 2018                     | EP 3632552              | A1                                   |
|                                           |             |    |                                      | whole document          |                                      |
|                                           |             |    |                                      | CN 110691647            | A                                    |
| JP                                        | 2014-151290 | A  | 25 August 2014                       | US 2014/0228199         | A1                                   |
|                                           |             |    |                                      | whole document          |                                      |
| JP                                        | 2020-533491 | A  | 19 November 2020                     | WO 2019/053749          | A1                                   |
|                                           |             |    |                                      | whole document          |                                      |
|                                           |             |    |                                      | EP 3679174              | A1                                   |
|                                           |             |    |                                      | KR 10-2020-0049825      | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | CN 111094629            | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | AU 2018332238           | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | CA 3074963              | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | IL 273018               | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | BR 112020004397         | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | MA 50083                | A                                    |
|                                           |             |    |                                      | RU 2020111951           | A                                    |

| <p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>B01J 23/63(2006.01)i; B01J 23/34(2006.01)i; B01J 23/42(2006.01)i; B01J 23/44(2006.01)i;<br/>         B01J 23/46(2006.01)i; B01J 23/648(2006.01)i; B01J 23/652(2006.01)i; B01J 23/656(2006.01)i;<br/>         B01J 23/755(2006.01)i; B01J 23/888(2006.01)i; B01J 23/889(2006.01)i; B01J 23/89(2006.01)i;<br/>         C01C 1/04(2006.01)i<br/>         FI: B01J23/63 M; C01C1/04 E; B01J23/89 M; B01J23/34 M; B01J23/652 M; B01J23/656 M; B01J23/755 M;<br/>         B01J23/648 M; B01J23/42 M; B01J23/44 M; B01J23/888 M; B01J23/889 M; B01J23/46 311M</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                              |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------|-----------------|-----------------------------------|----------------|------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------|-------------|------------------------------------------------------------------------|-----|---|---------------------------------------------------------------|-----|---|--------------------------------------------------------------|-----|---|-----------------------------------------------------------|-----|
| <p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>B01J21/00-38/74; C01C1/00-1/28; C40B20/00-30/00; C40B30/04-30/10; C40B60/04; C40B60/10-60/12</p> <p>最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2023年</td> </tr> </table> <p>国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）</p> <p>JSTPlus/JST7580/JSTChina (JDreamIII); Cplus/REGISTRY (STN); Scopus</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                              | 日本国実用新案公報       | 1922-1996年                        | 日本国公開実用新案公報    | 1971-2023年 | 日本国実用新案登録公報                                                                                                                                                                                                                          | 1996-2023年 | 日本国登録実用新案公報 | 1994-2023年                                                             |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| 日本国実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | 1922-1996年                                                                                                                                                                                                                           |                                                                              |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| 日本国公開実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 1971-2023年                                                                                                                                                                                                                           |                                                                              |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| 日本国実用新案登録公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 1996-2023年                                                                                                                                                                                                                           |                                                                              |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| 日本国登録実用新案公報                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 1994-2023年                                                                                                                                                                                                                           |                                                                              |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| <p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の<br/>カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する<br/>請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>MA, XUE-LU et al., Surface Single-Cluster Catalyst for N<sub>2</sub>-to-NH<sub>3</sub> Thermal Conversion, J. Am. Chem. Soc., 15.12.2017, Vol. 140, No. 1, pp. 46-49, DOI: 10.1021/jacs.7b10354<br/>ABSTRACT, 第47頁左欄第17行-第49頁左欄第2行</td> <td>1-2</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2000-264625 A (ハルドル・トプサー・アクチエゼルスカベット) 26.09.2000 (2000-09-26)<br/>全文</td> <td>1-2</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 49-014632 B1 (財団法人相模中央化学研究所) 09.04.1974 (1974-04-09)<br/>全文</td> <td>1-2</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2018/221699 A1 (古河電気工業株式会社) 06.12.2018 (2018-12-06)<br/>全文</td> <td>1-2</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2014-151290 A (株式会社デンソー) 25.08.2014 (2014-08-25)<br/>全文</td> <td>1-2</td> </tr> </tbody> </table> <p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p> <p>* 引用文献のカテゴリー<br/>         “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの<br/>         “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの<br/>         “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）<br/>         “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献<br/>         “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献<br/>         “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの<br/>         “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの<br/>         “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの<br/>         “&amp;” 同一パテントファミリー文献</p> |                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                              | 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する<br>請求項の番号 | X          | MA, XUE-LU et al., Surface Single-Cluster Catalyst for N <sub>2</sub> -to-NH <sub>3</sub> Thermal Conversion, J. Am. Chem. Soc., 15.12.2017, Vol. 140, No. 1, pp. 46-49, DOI: 10.1021/jacs.7b10354<br>ABSTRACT, 第47頁左欄第17行-第49頁左欄第2行 | 1-2        | A           | JP 2000-264625 A (ハルドル・トプサー・アクチエゼルスカベット) 26.09.2000 (2000-09-26)<br>全文 | 1-2 | A | JP 49-014632 B1 (財団法人相模中央化学研究所) 09.04.1974 (1974-04-09)<br>全文 | 1-2 | A | WO 2018/221699 A1 (古河電気工業株式会社) 06.12.2018 (2018-12-06)<br>全文 | 1-2 | A | JP 2014-151290 A (株式会社デンソー) 25.08.2014 (2014-08-25)<br>全文 | 1-2 |
| 引用文献の<br>カテゴリー*                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                                                                                                                                                                    | 関連する<br>請求項の番号                                                               |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | MA, XUE-LU et al., Surface Single-Cluster Catalyst for N <sub>2</sub> -to-NH <sub>3</sub> Thermal Conversion, J. Am. Chem. Soc., 15.12.2017, Vol. 140, No. 1, pp. 46-49, DOI: 10.1021/jacs.7b10354<br>ABSTRACT, 第47頁左欄第17行-第49頁左欄第2行 | 1-2                                                                          |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | JP 2000-264625 A (ハルドル・トプサー・アクチエゼルスカベット) 26.09.2000 (2000-09-26)<br>全文                                                                                                                                                               | 1-2                                                                          |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | JP 49-014632 B1 (財団法人相模中央化学研究所) 09.04.1974 (1974-04-09)<br>全文                                                                                                                                                                        | 1-2                                                                          |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | WO 2018/221699 A1 (古河電気工業株式会社) 06.12.2018 (2018-12-06)<br>全文                                                                                                                                                                         | 1-2                                                                          |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | JP 2014-151290 A (株式会社デンソー) 25.08.2014 (2014-08-25)<br>全文                                                                                                                                                                            | 1-2                                                                          |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| <p>国際調査を完了した日</p> <p>07.09.2023</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                                                                                                                                                                      | <p>国際調査報告の発送日</p> <p>19.09.2023</p>                                          |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |
| <p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁(ISA/JP)<br/>〒100-8915<br/>日本国<br/>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                                                                                                                                      | <p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>若土 雅之 4G 3774</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3416</p> |                 |                                   |                |            |                                                                                                                                                                                                                                      |            |             |                                                                        |     |   |                                                               |     |   |                                                              |     |   |                                                           |     |

| C. 関連すると認められる文献 |                                                                 |                |
|-----------------|-----------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                               | 関連する<br>請求項の番号 |
| A               | JP 2020-533491 A (ハスコリ・アイランズ) 19.11.2020 (2020 - 11 - 19)<br>全文 | 1-2            |
|                 |                                                                 |                |

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/024491

| 引用文献 |             |    | 公表日        | パテントファミリー文献        |                 |    | 公表日 |
|------|-------------|----|------------|--------------------|-----------------|----|-----|
| JP   | 2000-264625 | A  | 26.09.2000 | (ファミリーなし)          |                 |    |     |
| JP   | 49-014632   | B1 | 09.04.1974 | US                 | 3830753         | A  |     |
|      |             |    |            | the whole document |                 |    |     |
|      |             |    |            | GB                 | 1367112         | A  |     |
|      |             |    |            | DE                 | 2114769         | A  |     |
|      |             |    |            | FR                 | 2112957         | A  |     |
|      |             |    |            | NL                 | 7112535         | A  |     |
|      |             |    |            | IT                 | 939812          | B  |     |
| WO   | 2018/221699 | A1 | 06.12.2018 | EP                 | 3632552         | A1 |     |
|      |             |    |            | the whole document |                 |    |     |
|      |             |    |            | CN                 | 110691647       | A  |     |
| JP   | 2014-151290 | A  | 25.08.2014 | US                 | 2014/0228199    | A1 |     |
|      |             |    |            | the whole document |                 |    |     |
| JP   | 2020-533491 | A  | 19.11.2020 | WO                 | 2019/053749     | A1 |     |
|      |             |    |            | the whole document |                 |    |     |
|      |             |    |            | EP                 | 3679174         | A1 |     |
|      |             |    |            | KR                 | 10-2020-0049825 | A  |     |
|      |             |    |            | CN                 | 111094629       | A  |     |
|      |             |    |            | AU                 | 2018332238      | A  |     |
|      |             |    |            | CA                 | 3074963         | A  |     |
|      |             |    |            | IL                 | 273018          | A  |     |
|      |             |    |            | BR                 | 112020004397    | A  |     |
|      |             |    |            | MA                 | 50083           | A  |     |
|      |             |    |            | RU                 | 2020111951      | A  |     |