

## 高速化量子分子動力学プログラムColorsの希土類材料への応用

○伊藤 優基<sup>1</sup>・ 羅 一<sup>1</sup>・ 遠藤 明<sup>1</sup>・ 久保 百司<sup>1</sup>・ 今村 詮<sup>2</sup>・ 宮本 明<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>東北大学大学院工学研究科(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉07)、

<sup>2</sup>広島国際学院大学工学部(〒739-0321 広島市安芸区中野6-20-1)

<sup>3</sup>東北大学未来科学技術共同研究センター(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉04)

【緒言】 希土類化合物は触媒・発光材料・磁性材料など幅広い分野で先端的かつ重要な役割を果たしており、より高機能な材料の計算化学による理論設計が求められている。しかし希土類酸化物はf軌道を有するため多くの計算時間を必要とし、希土類を含む大規模触媒系に対する第一原理分子動力学計算は困難である。そこで本研究では第一原理分子動力学法に比べて大幅な高速計算を実現した高速化量子分子動力学プログラムColorsを用いて、希土類材料であるCeO<sub>2</sub>触媒の大規模系の理論的検討を行った。

【方法】 各モデルの検討には、f軌道の電子状態を考慮できるように改良した高速化量子分子動力学計算プログラムColorsを用いた。計算に用いるパラメータは密度汎関数法の計算結果に基づいて決定した。

【結果と考察】 本プログラムの妥当性を検証するにあたり、希土類化合物としてCeO<sub>2</sub>触媒を選択した。本手法によって計算したCeO<sub>2</sub>の大規模周期境界モデル、およびPt/CeO<sub>2</sub>(111)触媒表面モデルの構造や電荷分布、電子密度は実験値および密度汎関数計算の結果を非常によく再現した。以上より本プログラムは希土類化合物の小規模系から大規模複雑系にいたるまで、高精度な量子分子動力学計算が可能であることが示された。

続いて、本手法を用いてPtクラスターのサイズがPt/CeO<sub>2</sub>(111)触媒の電子状態に及ぼす影響の検討を行った。計算には図1に示すような3つの異なるサイズのPtクラスターを担持させたPt/CeO<sub>2</sub>(111)の触媒表面モデルを用いた。図2にCeO<sub>2</sub>(111)およびPt/CeO<sub>2</sub>(111)の各モデルにおけるCe原子の平均電荷の比較を示す。結果より、Ptの担持量に比例してPtからCeに電子が移動することが示され、Ceが還元されることによってPtの全体が酸化されて強い相互作用が生じていることが示された。このように、各原子の電荷や電子密度はPtの担持量によって大きく変化することが示された。以上より、本手法は大規模触媒系での検討を必要とする粒子サイズ効果の検討など、触媒材料のより実証的な検討に対し非常に有効であることが示された。

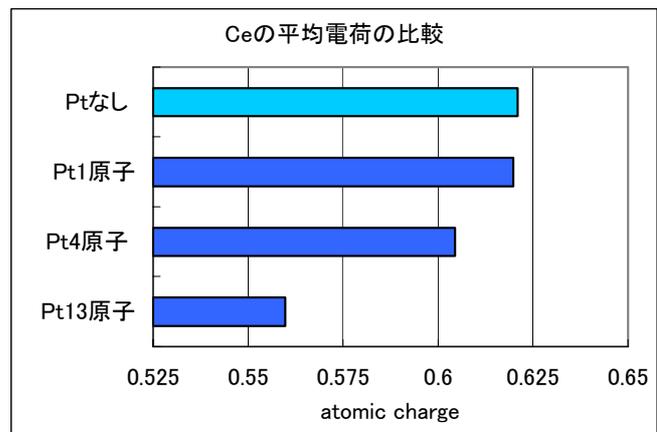


図2 CeO<sub>2</sub>(111)およびPt/CeO<sub>2</sub>(111)の各表面モデルにおけるCe原子の平均電荷

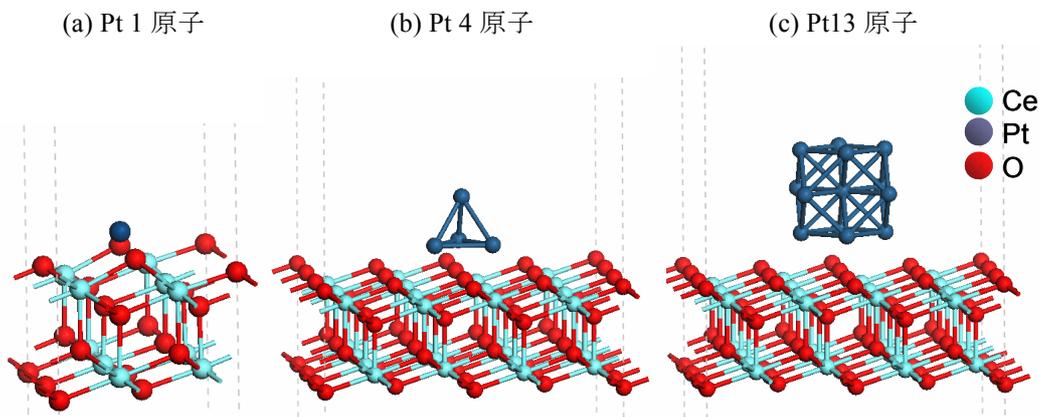


図1 サイズ効果の検討のためのPt/CeO<sub>2</sub>(111)触媒モデル