

水素吸蔵・透過シミュレーションのための モンテカルロ計算プログラムの開発

○黒川 仁¹、遠藤 明¹、久保百司¹、伊藤直次²、宮本 明^{1,3}

¹ 東北大学大学院工学研究科材料化学専攻（〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 07）

² 産業技術総合研究所物質プロセス研究部門（〒305-8565 つくば市東 1-1-1 中央第5）

³ 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】 近年、大気汚染の深刻化に伴い、化石燃料に替わるクリーンエネルギーとして水素エネルギーが注目されている。燃料電池に代表される水素エネルギーシステムでは、水素吸蔵合金・水素分離合金膜のように水素を吸蔵・透過する合金材料が不可欠となっている。そこで本研究では、合金への水素吸蔵現象において重要となる水素分子の解離を考慮した新規グランドカノニカルモンテカルロ計算プログラムおよび数十万原子規模での水素透過シミュレーションを実現する新規キネティックモンテカルロ計算プログラムを開発した。

【方法】 グランドカノニカルモンテカルロ法では、従来の手法では困難であった遷移金属への水素吸蔵における水素分子の解離を考慮した計算が可能となっている。一方、キネティックモンテカルロ法では、水素分子・原子の反応や拡散挙動を反応、拡散サイト・パスレベルで取り扱うことにより、既存の手法では取り扱うことが困難な大規模系での水素透過シミュレーションを行うことができる。

【結果及び考察】 グランドカノニカルモンテカルロ法の応用例として $\text{Pd}_{0.95}\text{M}_{0.05}$ ($\text{M} = \text{Ti}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Ag}$) 合金への水素吸蔵シミュレーションについて説明する。Fig. は $\text{Pd}_{0.95}\text{Ti}_{0.05}$ 、 $\text{Pd}_{0.95}\text{Cr}_{0.05}$ 合金中の吸蔵水素の金属原子との積算配位数を示している。H-Ti の配位数が約 1 であることから吸蔵された水素原子のほとんどが Ti 原子に近接する Octahedral サイトを占有していることがわかる。 $\text{Pd}_{0.95}\text{V}_{0.05}$ 合金についても同様の結果が得られた。このことは、吸蔵された水素原子が Ti、V 原子にトラップされることを示唆している。一方、H-Cr の配位数は 0 に近いことから、水素原子は Cr 原子に近接するサイトを敬遠することが示唆される。また、 $\text{Pd}_{0.95}\text{Ag}_{0.05}$ 合金についても同様の結果が得られた。これらの結果は、Ti、V 金属の水素溶解度が Pd 金属に比べて高く、Cr、Ag 金属の水素溶解度が低いことに起因すると考えられる。

また、本研究で開発したキネティックモンテカルロ法により既存の手法では取り扱うことが困難であった 50 万原子に相当する大規模金属膜モデルを用いた水素透過シミュレーションを行うことが可能となった。

謝辞 本研究は、経済産業省・新エネルギー・産業技術総合開発機構・大阪科学技術センター付属ニューマテリアルセンターとの共同研究「次世代化学プロセス技術開発」として行われたもので、ここに記して謝意を表します。

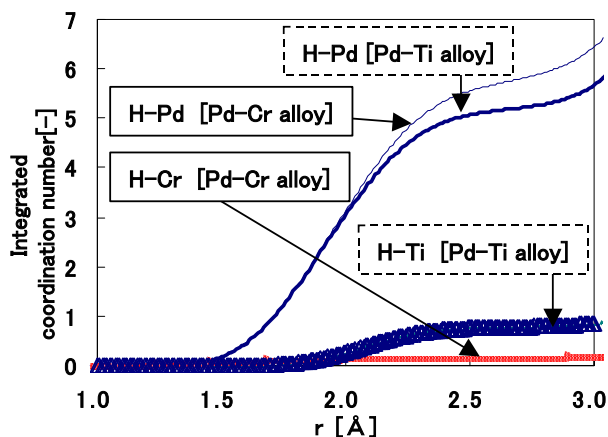


Fig. $\text{Pd}_{0.95}\text{Ti}_{0.05}$ 、 $\text{Pd}_{0.95}\text{Cr}_{0.05}$ 合金中の水素原子と金属原子の積算配位数