

## 金属表面への水素分子吸着に関する理論的研究

○石渡 良<sup>1</sup>、立川 仁典<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>横浜市立大学大学院総合理学研究科、<sup>2</sup>JST PRESTO

近年、省エネルギー、環境問題の観点から水素エネルギーが着目され、その輸送手段や触媒効果などの点から水素吸蔵合金が注目されるようになった。水素吸蔵合金の設計には水素の吸収・放出過程に関する知見が重要となるが、例えばその第一段階である金属表面上での水素の解離・吸着機構すら、未だ十分に解明されていない。最近、Ni 各表面上における水素原子吸着に関して、経験的ポテンシャル<sup>[1]</sup>や、平面波基底による密度汎関数法<sup>[2]</sup>を用いた計算が報告され、吸着構造や吸着エネルギーに関する定量的な理解が得られた。しかしながら、その吸着過程や電子状態、振動数に関しては、十分な知見が得られていない。そこで本研究では、分子軌道計算により Ni 表面での水素分子の解離・吸着過程、吸着面依存性、金属による水素吸蔵特性の違いを解析した。

図 1 に、使用した  $\text{Ni}_{13}(100)\text{H}_2$  クラスタモデルを示す。図 2 に B3LYP/LANL2DZ レベルで計算した水素の解離・吸着過程のポテンシャルエネルギー曲面を示す。図 2 を見ると、まず  $R_{\perp}=1.70\text{Å}$  付近に極小点が現れ、 $1.36\text{Å}$  付近に障壁を見出した。ここで水素が急激に解離した後、 $1.05\text{Å}$  付近に再び極小点が存在することがわかった。 $1.70\text{Å}$  付近の電子状態を解析すると、水素と金属との相互作用は小さく、また水素由来の振動数は、水素分子単体の振動数  $4458\text{cm}^{-1}$  と近い  $3435\text{cm}^{-1}$  と算出されたので、この極小点は物理吸着であると考えられる。 $1.05\text{Å}$  付近では、水素と金属との相互作用が大きく、水素由来の振動数は  $1021\text{cm}^{-1}$  となることから、水素分子としての振る舞いが小さくなっているのがわかる。このことから  $1.05\text{Å}$  付近の極小点は、金属との電荷移動により生じる化学吸着に相当する。また物理吸着と化学吸着のポテンシャル面が交差することにより、 $1.36\text{Å}$  付近で障壁が生じたものと考えられる。当日は面依存性や他の金属に関しても発表する。

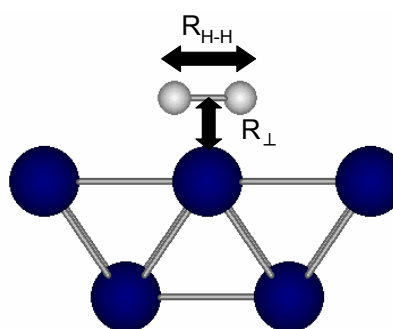


Fig. 1  $\text{Ni}_{13}(100)\text{H}_2$  cluster model

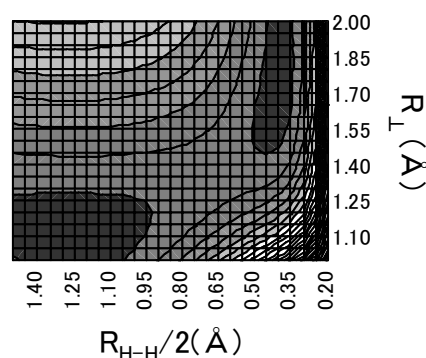


Fig. 2 Potential energy surface

[1] M. Shiga, M. Ymaguchi, and H. Kaburaki, Phys. Rev. B, *68*, 245402 (2003)

[2] G. Kresse, and J. Hafner, Surf. Sci., *459*, 287 (2000)