

2P08

大規模量子計算による PEFC 触媒層の三相界面のモデリングと電子状態解析

○金 桐賢¹, 小林 大¹, 三浦 隆治¹, 鈴木 愛², 坪井 秀行¹, 畠山 望¹,
遠藤 明¹, 高羽 洋充¹, 久保 百司¹, 宮本 明^{2,1}

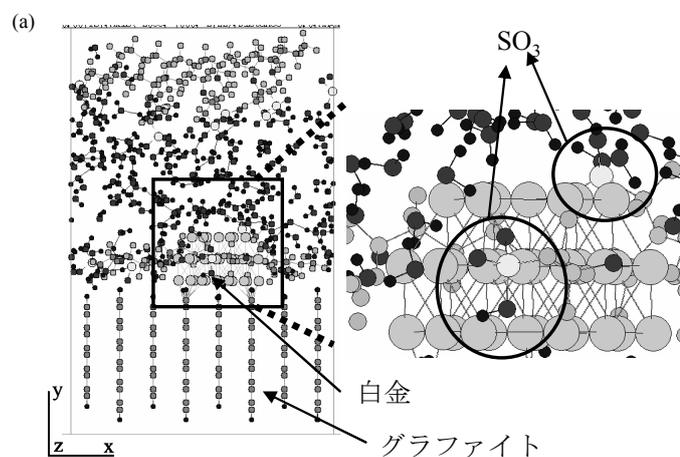
¹東北大学大学院工学研究科 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6)

²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 6-6-10)

【緒言】次世代エネルギー変換技術として期待される固体高分子形燃料電池(PEFC)の実用化に向けて、高効率化と低コスト化は不可欠である。そのため、高性能な触媒設計が必要であり、酸素還元反応(ORR)に対する触媒特性について十分な理解が求められる。ORR に対する白金の活性度は白金の d-band center との関係が知られている[1]。本研究では、計算化学手法を用いて電極反応場である三相界面(TPB)のマイクロモデルを構築し、三相界面における触媒の特性について解析を行った。

【方法】本研究で用いた TPB モデルはグラファイト担体に(111)面を持つ白金粒子を担持、高分子膜(Nafion)と水分子を配置し、分子動力学(MD)法を用いて密度とエネルギーが一定になるまで構造緩和することで作成した。また、当研究室で開発した Tight-binding 量子化学計算プログラム New-colors を用いて白金触媒の電荷と電子状態を調べた。

【結果】図 1 に構築した三相界面モデル(TPB), 電解質含まないモデル(Pt/C + Water), 及び、各モデルにおける触媒特性の結果を示す。水分子と高分子膜の親水基(SO₃ 基)が白金粒子の周りに位置し、三相界面が再現できていると考えられる。また、図 1 の (b) より、Pt/C モデルに比べて TPB モデルにおける白金の電荷が小さいことが分かった。これは水分子と高分子膜の影響であると考えられる。また、Pt/C + Water の白金電荷は全体的に平均値と等しくばらつきが見られなかったのに対し、TPB の場合は平均値と隔たれた電荷を持つ場合があった。それは、白金の近くに存在する電解質の影響を示唆する。また、d-band center の比較から、TPB モデルが Pt/C モデルよりも 0.02 eV 小さいが、その差は僅かであった。これは当研究で用いた TPB モデルにおいて触媒と周囲の原子間化学的な相互作用は無いことを示唆する。以上より、計算化学手法により大規模な三相界面構造を再現、解析することができた。詳細は当日報告する。



モデル	平均電荷	d-band center [eV]
Pt/C + water	0.396	- 6.47
TPB	0.388	- 6.49

図1 (a) TPBモデル (b) 白金粒子の電荷とd-band center

1) Ye Xu et al., *J. AM. Chem. Soc.*, **126**, 4717 (2004).