

電位を考慮した電気化学反応に関する理論的解析

○石元孝佳、刘世学、古山通久

九州大学稲盛フロンティア研究センター

九州大学カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所

(〒819-0395 福岡市西区元岡 744)

JST-CREST (〒102-0076 東京都千代田区五番町 7 K' s 五番町)

【緒言】

固体酸化物形燃料電池(SOFC)や固体高分子形燃料電池(PEFC)の電極界面では、「電位」が化学反応に大きく関わっている。燃料電池の高効率化や新規電極触媒の開発には電位を考慮した解析が重要な課題である。現在では、実験だけではなく第一原理計算による電極上での反応機構の解析などが積極的に行われているが、多くは電位の効果を間接的に考慮しており、電位による触媒表面への反応種の吸着構造や界面での電子移動を考慮することは容易ではない[1]。通常の化学反応とは異なり、電気化学反応では電位の影響を直接考慮することで電極界面での反応性の本質に迫ることが可能となる。本研究では、電極界面における電気化学反応機構の解明に向けて、電位を考慮した第一原理計算を実行し電位が吸着構造や反応性に与える影響を解析した。

【方法】

本研究では、電極反応を考える際に重要な「電位」を第一原理計算に導入した計算手法である有効遮蔽体(ESM)法に着目した[2]。全ての計算には ESM 法の実装された第一原理計算プログラムである SIESTA を用いて、種々の化学種との吸着構造や吸着エネルギーに電位が与える影響を解析した。

【結果】

本研究では SOFC の電極モデルとして図 1 に示すような各層 12 原子からなる 3 層の Ni(111)構造を取り上げた。ここで上面は電位の印加される界面、下面は金属内部を模擬している。このモデル構造に対して電位が水素の吸着エネルギーに与える影響を解析した。図 1

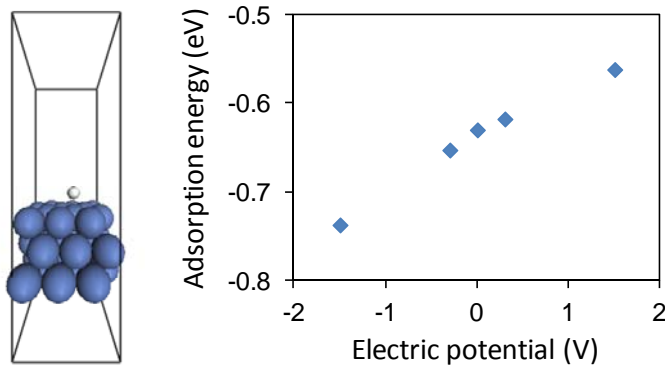


Fig. 1 Model structure of Ni(111) with H atom (left) and hydrogen adsorption energy on Ni(111) surface with electric potential (right).

には、Ni(111)に対する水素の吸着エネルギーと電位の関係を合わせて示す。電位が負から正に変化することで水素の吸着エネルギーは徐々に減少していくことが分かる。これは、電位が変化することで、Ni 表面の金属原子の電荷が変化するためである。電極触媒の違いや種々の化学種との吸着エネルギーや吸着構造、電荷移動と電位の関係については当日詳細に報告する。

【謝辞】

本研究の一部は京セラ(株)の支援により行われた。関係各位に感謝する。

【参考文献】

- [1] A. Roudgar, M. Eikerling, and R. van Santen, *Phys. Chem. Chem Phys.*, **12**, 614 (2010).
 [2] M. Otani and O. Sugino, *Phys. Rev. B*, **73**, 115407 (2006).