

## Ni の表面エネルギー・表面拡散への吸着種の影響

○中尾和英<sup>1,2</sup>、石元孝佳<sup>2,3</sup>、古山通久<sup>1,2,3,4</sup><sup>1</sup>九州大学大学院工学府水素エネルギーシステム専攻

(〒819-0395 福岡市西区元岡744)

<sup>2</sup>JST-CREST (〒102-0076 東京都千代田区五番町7 K's五番町)<sup>3</sup>九州大学稲盛フロンティア研究センター (〒819-0395 福岡市西区元岡 744)<sup>4</sup>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)

## 【緒言】

固体酸化物形燃料電池(SOFC)アノードにおける金属材料としてよく使用される Ni のシタリングによる劣化に関して、Ni 表面上に存在する吸着種の影響はよくわかっていない。しかし、Ni 表面エネルギーへ吸着種が影響することは計算[1]や実験[2]によって示されているため、各種吸着種が Ni 表面に存在する場合での表面エネルギーの変化を明らかにすることは重要である。また、表面拡散へ表面吸着種が影響することも十分に考えられる。そこで本研究では、密度汎関数理論(DFT)や分子動力学(MD)法を用いて、SOFC 燃料としてよく使用される水素の Ni 表面エネルギー・表面拡散への影響の解析を行った。

## 【方法】

水素が Ni 表面上に存在する場合の表面エネルギーの計算は DFT 計算プログラム VASP 及び反応性力場(ReaxFF)を用いた MD 計算プログラム LAMMPS によって実行した。吸着種が存在する場合の表面エネルギー変化は Ouyang らによる式を用いて計算した[3]：

$$\Delta\gamma = \theta[E^{ad}(\theta) - \Delta\mu]/A$$

ここで $\Delta\gamma$ は表面エネルギー変化、 $\theta$ は被覆率、 $E^{ad}(\theta)$ は被覆率に依存した平均吸着エネルギー、 $\Delta\mu$ は吸着種の気相での化学ポテンシャル、 $A$ は吸着している面方位の単位表面積。

## 【結果】

Ni(111)表面上に水素を 25%被覆させたモデルに関して、DFT 及び ReaxFF を用いて平均吸着エネルギーを計算したところ DFT では-0.445 eV、ReaxFF では-0.449 eV と非常に近い値を得ることができた。そこで、ReaxFF を用いて様々な面方位、被覆率での計算を行った。図 1 には ReaxFF を用いて計算した各面方位における水素被覆率に依存した表面エネルギーを示す。ある被覆率での水素の化学ポテンシャルは $\frac{d(\theta \times E^{ad})}{d\theta} = \Delta\mu$ から計算された。図から Ni(111)面が最も吸着水素の影響を受け、被覆率 60%の場合に表面エネルギーが約 5%低下ることがわかった。DFT 計算によるより厳密な計算結果や水素の表面拡散係数への影響などのより詳細な計算結果は当日報告を行う。

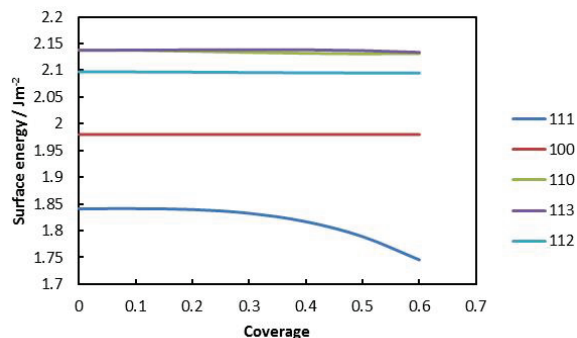


Fig. 1 Effect of adsorbed hydrogen on Ni surface energy at each surface orientation.

## 【謝辞】

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金特別研究員奨励費の助成により行われた。

## 【参考文献】

- [1] Y. Y. Huang, Y. C. Zhou, and Y. Pan, *Physica B*, **405**, 1335 (2010).  
 [2] H. Meltzman, D. Chatain, D. Avizemer, T. M. Besmann, and W. D. Kaplan, *Acta Materialia*, **59**, 3473 (2011).  
 [3] R. Ouyang, J. X. Liu, and W. X. Li, *J. Am. Chem. Soc.*, **135**, 1760 (2013).