

Pd/HKUST-1 複合材料の界面相互作用と 水素吸蔵に関する理論解析

○堤竜輝¹、屋山巴^{2,3}、石元孝佳^{2,3}、古山通久^{1,2,3,4}

¹九州大学工学府水素エネルギーシステム(〒819-0395 福岡市西区元岡 744)

²九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)

³JST-CREST(〒102-0076 東京都千代田区五番町 7 K's 五番町)

⁴九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】

次世代エネルギーキャリアとして注目されている水素の効率的な貯蔵法の発展は、将来的な大規模利用を考えると欠かせないものである。近年、有力な新規水素吸蔵材料として注目されているものに金属ナノ粒子/MOF 複合材料がある。中でも Pd ナノ粒子を HKUST-1 で被覆した Pd/HKUST-1 複合材料は、その吸蔵特性が Pd 単体に比べて大きく向上することが報告されている[1]。しかしながら、そのメカニズムはいまだ解明されていない。そこで本研究では Pd/HKUST-1 複合材料の水素吸蔵機構の解明に向けて密度汎関数理論 (DFT) 計算によって Pd と HKUST-1 の界面相互作用と安定構造を解析した。

【方法】

Pd/HKUST-1 複合材料の局所的な界面構造をクラスターとしてモデル化した。作成した界面クラスターモデルに関し、DFT に基づく量子力学プログラム (DMol³) を用いて構造最適化後その相互作用エネルギーを算出した。また、求めた安定構造に水素を加え再び構造最適化を行うことで水素吸蔵エネルギーを計算した。Pd/HKUST-1 モデルを作成する際に使用した HKUST-1 の構造は文献[2]より求めた。

【結果】

表1にPdとHKUST-1の相互作用エネルギーに関する計算結果を示す。ここではHKUST-1の末端として銅及び酸素を、その配位サイトとして4-fold site 及び on top を考え、4通りのモデルを作成して(図1)その相互作用エネルギーを比較した。Pd上に酸素の配位したような構造で最も安定な相互作用エネルギーが得られた。他の安定界面構造や水素吸蔵エネルギーの結果については当日報告する。

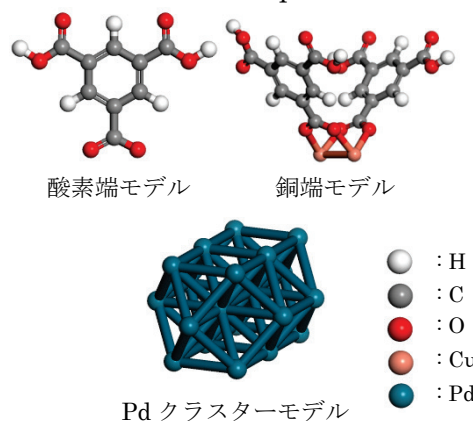


図1: Pd, HKUST-1 クラスターモデル

表1: Pd/HKUST-1 の相互作用エネルギー(eV)

	4-fold site	On top
Cu - Pd	-2.11	—
O - Pd	-2.41	-2.60

【参考文献】

[1] Personal Communication

[2]Chui, S. S.-Y.; Lo, S. M.-F.; Charmant, J. P. H.; Orpen, A. G.;Williams, I. D. Science 1999, 19, 1148.