

## 金属ナノ粒子の物性発現機構に関する理論解析

○石元孝佳<sup>1,2</sup>、稲富雄一<sup>3</sup>、本田宏明<sup>4</sup>、古山通久<sup>1,2,5</sup>

<sup>1</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>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>九州大学大学院システム情報科学研究院(〒819-0395 福岡市西区元岡 744)

<sup>4</sup>九州大学情報基盤研究開発センター(〒812-8581 福岡市東区箱崎 6-10-1)

<sup>5</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】

金属ナノ粒子は燃料電池電極触媒や排出ガス浄化触媒、水素吸蔵材料など環境・エネルギーの幅広い分野で利用されている。京都大学の北川(宏)らの研究グループでは、バルク状態では固溶しない Pd と Pt から Pd/Pt コアシェルナノ粒子を作成し、水素処理することで安定な固溶体構造の合成に成功した [1]。またこの PdPt 固溶体構造は Pd 単体のナノ粒子よりも多くの水素を吸蔵するという物性を示したがその発現機構の解明には至っていない。このような金属ナノ粒子で初めて発現する物理・化学現象にはバルクや表面モデル、小規模なクラスター解析では困難な金属ナノ粒子特有の電子状態変化が大きな影響を及ぼしていると予想される。そこで本研究では金属ナノ粒子特有の物理・化学的性質を解明するために、2nm を超える金属ナノ粒子に対する第一原理計算を実行し、安定性や構造変化・状態密度などを解析した。

### 【方法】

本研究では、金属ナノ粒子として粒径約 2.8nm に相当する Pd と Pt が 711 原子からなるモデル構造を取り上げた。計算には密度汎関数理論に基づく VASP を使用し、コアシェル、固溶体モデルの構造最適化計算を行った。交換相関汎関数には GGA-PBE を用い、カットオフエネルギーは 400eV とした。

### 【結果】

図 1 には、Pd<sub>201</sub>Pt<sub>510</sub>、Pt<sub>201</sub>Pd<sub>510</sub> からなるコアシェル、固溶体構造の断面図を示す。ここで固溶体構造の乱雑さについては短距離秩序パラメータを最適化することでモデリングした。構造最適化後金属ナノ粒子のエネルギーを比較すると Pd<sub>201</sub>Pt<sub>510</sub> のコアシェル構造は固溶体構造よりも不安定だった。一方、Pt<sub>201</sub>Pd<sub>510</sub> のコアシェル構造は固溶体構造よりも安定となった。この安定性の傾向は実験によって観測される結果とよい一致を示していた。電子状態や構造変化の詳細については当日報告する。また今後のより大規模な金属ナノ粒子の電子状態計算を想定し、金属ナノ粒子のサイズと並列化効率に関するテスト計算に取り組んでいる。VASP を用いた場合、計算サイズの増加に伴い並列化率が向上するため、数千原子系の金属ナノ粒子の計算が数千コアの計算環境を用いることで実現可能であることが示唆された。

### 【謝辞】

九州大学稲盛フロンティア研究センターの研究活動は京セラ(株)の支援により行われた。また本研究は九州大学情報基盤開発研究センターの平成 26 年度先端的計算科学プロジェクトの支援により行われた。関係各位に感謝する。

### 【参考文献】

[1] H. Kobayashi, M. Yamauchi, H. Kitagawa, Y. Kubota, K. Kato, and M. Takata, *J. Am. Chem. Soc.*, **130**, 1818 (2008).

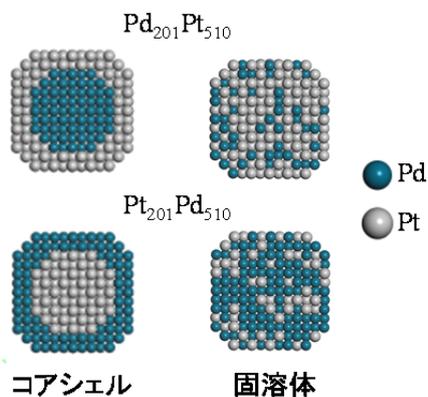


図 1. (上)Pd<sub>201</sub>Pt<sub>510</sub> と(下)Pt<sub>201</sub>Pd<sub>510</sub> のコアシェル、固溶体構造の断面図