

## 金属表面での分子種の吸着挙動の比較

○猪俣 健輔<sup>1</sup>、善甫 康成<sup>2</sup>

<sup>1</sup>株式会社シミュラティオ (〒222-0033 神奈川県横浜市港北区新横浜 1-14-20)

<sup>2</sup>法大情報 (〒184-8584 東京都小金井市梶野町 3-7-2)

### 【緒言】

近年、環境問題が深刻になってきており、解決が急がれている。浄化用触媒として高価な貴金属が使われている。やはり、そのような貴金属は高価なため、代替材料が必要となる。[1]、[2]そこで本研究ではまず、触媒としての機能の発生要因の解明を目標としつつ、その前提として金属表面への分子の吸着挙動について調べることとした。特に凝集エネルギーに注目し、これを比較した。第一原理は SIESTA[3]を用いた。交換相関汎関数としては PBE を用いている。今回の報告では、金属は、Rh、Pt、Ni、Fe、Cu を使い、分子種は、HC、NO、CO、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O、N<sub>2</sub>を選んだ。

### 【方法】

電子状態計算では、Fig.1 に示すようなスラブモデルを用いている。これは、Ni の場合であるが、 $7.06 \times 7.06 \times 22.06$  の大きさである。吸着状態の挙動の指標として、凝集エネルギーに注目した。

凝集エネルギーの計算では、下記の手順で算出した。

- (1). 構造最適化された計算セルから、その表面に 10Å 以上の真空スラブを付加して、表面モデルを作成する。
- (2). 表面モデルに分子種を付加し、構造最適化計算を行う。
- (3). 分子種を含めた表面モデルについて、式(1)を用いて凝集エネルギーを計算した。

$$E_C = (E_{surf} + E_{mol}) - E_{surf+mol} \quad (1)$$

ここで、 $E_C$  は、凝集エネルギー、 $E_{surf}$  は、表面モデルのみ、 $E_{mol}$  は分子種のみ、 $E_{surf+mol}$  は分子種を含めた表面モデルの全エネルギーを表している。

### 【結果】

Fig.2 はこれらの結果の一例を示したものである。Ni(100)面へ HC、CO、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O、N<sub>2</sub> を吸着する際の凝集エネルギーの比較を式(1)に従い、計算を行ったものである。HC のみが、他の分子種と比較して、凝集エネルギーが大きい。CO、CO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O、N<sub>2</sub> では、ほぼ同程度の値をとっていることがわかる。ポスターでは金属種の違いによる分子種の凝集エネルギーの比較など、詳細について報告する予定である。

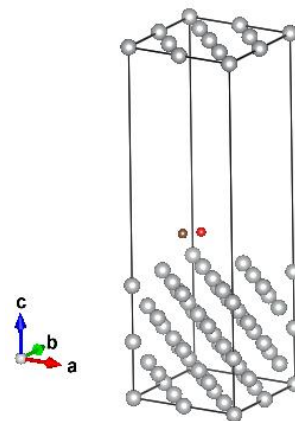


Fig. 1 計算に用いるスラブモデル

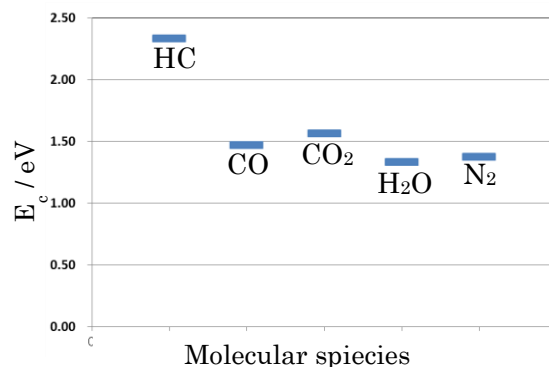


Fig. 2 Ni 上(100)面での分子種による凝集エネルギーの比較

### 参考文献

- [1] R. Stumpf and M. Scheffler, Phys. Rev. B **53**, 4958 (1996)
- [2] I. Hamada, A. Uozumi, Y. Morikawa, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, J. Am. Chem. Soc. **133**(46), 18506 (2011)
- [3] <http://departments.icmab.es/leem/siesta/>