

機能性材料の量子反応解析

大阪大学大学院工学研究科

精密科学・応用物理学専攻 応用物理学コース ナノ物性理論領域

氏名 笠井 秀明, 中西 寛, Allan Abraham Bustria Padama, Joaquin Moreno,
Susan Aspera, 土谷 亮

目的 エネルギー・環境問題の解決に向けた機能性材料に対して、量子論に根差した反応性解析を行う。

内容 (i) プロトン交換型燃料電池における電極触媒の担体として、カーボンブラックが現在用いられているが、この炭素自身が酸化される副反応が知られていた。より安定な炭素系担体材料として、カーボンナノチューブの利用が研究されている。そこで、カーボンナノチューブ-酸素相互作用を第一原理計算から調べた。

(ii) アニオン交換型燃料電池は貴金属を触媒に使用する必要がないため注目されているが、アニオン交換膜は水酸化物イオンOH⁻によって劣化してしまうことが知られている。そこで、劣化反応の機構探索と置換基の導入による効果を第一原理計算により評価した。

(iii) Pdは水素との相互作用が強く、水素吸蔵材などへの応用が研究されている。特にPd(110)表面では、水素との相互作用により表面再構成が起こることが知られている。そこで本研究では、Pd(110)表面上で水素原子が感じるポテンシャルエネルギーを第一原理計算から算出し、これに基づき水素原子核の量子束縛状態を調べた。

結果 (i) カイラリティを様々に変化させたカーボンナノチューブを考え、チューブ曲率が大きくなると酸素との相互作用が強くなることを酸素分子吸着・原子吸着の両ケースにおいて示した。また、相互作用の増加に伴って電荷移動量の増加が見られた。

(ii) イミダゾリウムカチオン系分子（比較的耐久性に優れるとされる膜の構成分子）を考え、イミダゾール環のC2-位に保護基（メチル基、イソプロピル基、フェニル基）を導入した際の、OH⁻との反応性を調べた。OH⁻が直接C2-位の炭素を攻撃して起こる開環反応の活性化障壁に保護基依存性は見られなかったが、OH⁻が保護基を引き抜く反応の活性化障壁には大きな保護基依存性が見られた。これより評価した中でメチル基が保護基として最適であると結論づけた。

(iii) 水素原子の最安定な吸着サイトとしてpseudo-threefold (P3F)サイトを見出し、基底状態では水素原子はこのP3Fサイトに局在した形で存在することを示した。P3Fサイトの次に吸着エネルギーが低いサイトはshort bridge (SB)サイトであったが、量子状態計算により、第一励起状態はSBサイトではなく、long bridge (LB)サイトに局在した状態であることを見出した。SBサイト付近に水素が現れるのは第二励起状態であるが、その波動関数はややP3Fサイトにも広がった分布を示していた。また、重水素の場合には量子効果の弱化により、第一励起状態と第二励起状態の順序が入れ替わることが分かった。

利用した計算機 SX-ACE

使用メモリ 120GB

並列化 16並列