

金属クラスターと水素との相互作用に関する理論的研究

(九大先導研) ○吉岡 悠太・辻 雄太・吉澤 一成

Theoretical Study on the Interaction of Metal Clusters with Hydrogen (*Institute for Materials Chemistry and Engineering, Kyushu University*) ○ Yuta Yoshioka, Yuta Tsuji, Kazunari Yoshizawa

There are a great variety of processes involving hydrogen in heterogeneous catalysis. For example, hydrogen evolution, ammonia synthesis, and carbon dioxide reduction. Surface processes in which hydrogen plays an important role include hydrogen adsorption/desorption, hydrogen activation, and hydrogen spillover. In this study, the adsorption behavior of hydrogen on the surface of metal clusters was systematically investigated using theoretical methods to gain new insights into the interaction between hydrogen and metal clusters, which is fundamental for the development of metal cluster-based catalysts.

First-principles calculations and particle swarm optimization were used to determine the stable structures of the complexes of hydrogen with copper, iron, and nickel clusters and to calculate the adsorption energies of hydrogen. The adsorption energy of hydrogen was found to be less affected by the number of metal atoms in the nickel clusters, but more affected in the copper and iron clusters. The charge of the hydrogen atom was found to be the most negative when bound to the iron clusters, indicating that they are highly hydride like. On the other hand, the hydride nature of the adsorbed hydrogen is weaker in the copper and nickel clusters. The details of the calculation and analysis will be presented at the meeting.

Keywords : *First-principles Calculation; Particle Swarm Optimization; Metal Clusters; Hydrogen*

不均一触媒において水素が関係する過程は実に多様である¹⁾。反応としては、水素発生反応、アンモニア合成、二酸化炭素還元などがある。表面過程としては水素吸脱着、水素活性化、水素スピルオーバーなどがある。本研究では、水素の金属クラスター表面への吸着挙動を理論的手法で系統的に調べることで、金属クラスターを用いた触媒の開発のための基礎となる水素と金属クラスターの相互作用について、新たな知見を得ることを目的とした。

第一原理計算と粒子群最適化を用いて、水素と銅、鉄、ニッケルクラスターとの複合体の安定構造の決定及び水素の吸着エネルギーの計算を行った。水素の吸着エネルギーは、ニッケルでは金属原子数の違いによる影響は少ないが、銅と鉄ではその影響は大きいことが明らかになった。また、水素原子の電荷は、鉄クラスターに結合したときに最も負電荷が大きく、ヒドリド性が高いことが分かった。一方、銅とニッケルでは吸着した水素のヒドリド性は弱いことを確認した。計算や解析の詳細は当日発表する。

1) Li, Z.; Yu, C.; Wen, Y.; Gao, Y.; Xing, X.; Wei, Z.; Sun, H.; Zhang, Y.-W.; Song, W. *ACS Catal.* **2019**, *9*, 5084.