

Au/ZnO 界面における酸素欠陥効果に関する理論研究

(阪大院理) ○米森 朋久・奥村 光隆

Theoretical Study for the effect of Oxygen Vacancy in Au/ZnO Catalyst (Graduate School of Science, Osaka University) ○Tomohisa Yonemori, Mitsutaka Okumura

Although gold is chemically inert, it exhibits various catalytic activities when it is supported on metal oxides as a nanometer-size cluster. Quantum chemical calculations have been used to investigate the effect of oxygen vacancies at the interface between ZnO and Au cluster. The oxygen vacancy formation energy at the surface of ZnO was found to be +3.4 eV (unstable), whereas that at the bottom of Au in Au/ZnO was +1.8 eV (unstable), which is relatively stable than that without Au cluster. This stabilization is thought to be caused by the charge transfer from ZnO to Au cluster. Also, it has been investigated that when oxygen vacancy exists, the adsorbed oxygen molecule receives more charge from the surface, which is thought to affect the catalytic activity. In the presentation, we will discuss the charge transfer around the oxygen vacancy, and the effect of the vacancy to the gold catalyst's representative reaction, CO oxidation. This reaction is applied to fuel cells and automobiles, so development of catalysts which exhibit high activity at low temperature is desired.

Keywords : Gold Nanoparticle Catalyst; Oxygen Vacancy; CO Oxidation Reaction; Quantum Chemical Calculation

化学的に不活性な金は、ナノメートルオーダーのクラスターで金属酸化物上に担持すると様々な触媒活性を示す。本研究では量子化学計算を用いて Wurtzite 型構造の酸化亜鉛と金クラスターの界面における酸素欠陥に関して調査した。酸化亜鉛上の酸素欠陥生成エネルギーは 3.4 eV の不安定化であるのに対して、金クラスター存在下で 1.8 eV の不安定化と、比較的欠陥ができやすくなることが分かった。欠陥の安定化は酸素欠陥の生成時に酸化亜鉛-金クラスター界面において電荷が金クラスターに移動することによるものと考えられる。また、欠陥周辺に吸着した酸素分子は欠陥が存在しない場合に比べて多くの電荷を表面から受け取ることが調べられ、触媒活性に影響をもたらすことが考えられる。発表では、酸化亜鉛-金クラスター界面にできた酸素欠陥周辺における電荷移動に関して、また、金触媒の代表的な反応である一酸化炭素の酸化反応に対する、酸素欠陥効果に関して議論する。この反応は燃料電池や自動車に应用される重要な反応であり、低温で高い活性を示す触媒の開発が望まれる。

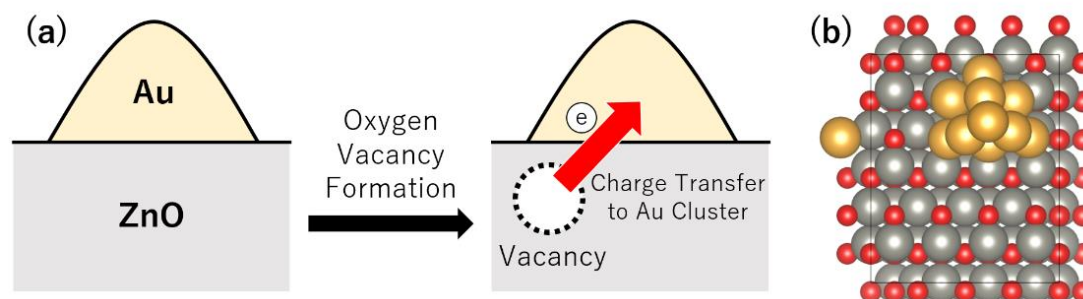


Fig. (a) Oxygen Vacancy Formation and Charge Transfer to Au Cluster
(b) Used Slab Model (red ; Oxygen, gray ; Zinc, yellow ; Gold)