令和　2年度　　京都大学化学研究所　スーパーコンピュータシステム　利用報告書

規則性合金の触媒作用に関する理論的研究

Theoretical study on catalysis of ordered alloys

京都大学触媒電池元素戦略研究拠点　　古川　森也

研究成果概要

本研究では、京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステムを利用し、アルカン脱水素に有効な Pt 系合金触媒の作用機構について DFT 計算を利用した詳細な機構解明を行った。PtGa 規則合金の最安定表面である(111)上には、Pt 原子 3 個からなる Pt_3 サイトと Pt 原子が孤立した Pt_1 サイトがある。後者はプロパンの脱水素に高い選択性を示す一方、前者は副反応も進行してしまう。そこで本研究ではこれらのサイト上でのプロパン脱水素過程に関して DFT 計算により活性障壁を計算した。(図 1)[1]。

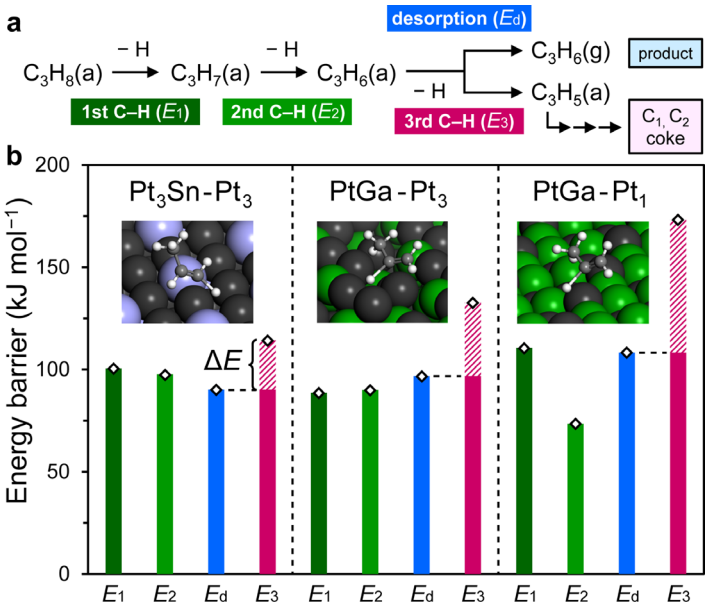

図 1. Pt_3Sn(111)および PtGa(111)表面上でのプロパン脱水素過程とエネルギー障壁.

その結果、選択性を決定づけるプロピレン脱離障壁と 3 回目の C-H 活性化(副反応)の障壁の差ΔE が Pt_1 サイト上では Pt_3 サイト上と比較しきわめて高くなることが判明した。この結果は Pt_1 サイトが高い脱水素選択性を有することを実証するものであり、理論的なサポートを得ることに成功した。

またこれ以外にも類似の反応系としてメチルシクロヘキサン脱水素に有効な Pt-Fe-Zn 合金の触媒作用についても計算によるサポートを行った結果を論文に発表している[2]。

発表論文(謝辞あり)

[1] Y. Nakaya, J. Hirayama, S. Yamazoe, K. Shimizu, S. Furukawa, *Nat. Commun.*, **2020**, *11*, 2838.

[2] Y. Nakaya, M. Miyazaki, S. Yamazoe, K. Shimizu, S. Furukawa, *ACS Catal.*, **2020**, *10*, 5163-5172.