

合金触媒の作用機構に関する理論的研究
Theoretical study on the catalysis of alloys

大阪大学大学院工学研究科応用化学専攻 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、アセチレン部分水素化に有効な $(\text{Ni}_{0.75}\text{Co}_{0.25})_3\text{Ga}$ 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。 $\text{Ni}_3\text{Ga}(111)$ スラブ構造を作成し、その中の Ni サイトの一部を Cu で置換することで上記三元系合金の表面構造をモデル化した(図1)。 Ni_3 hollow site が Cu 置換により Ni_2Cu hollow サイトになることで、(111)表面上でのアセチレンおよびビニル中間体の吸着が弱められ、水素化における活性化エネルギーを低減し、それによって反応速度が大幅に増大すること、および副反応であるエタン生成を抑制することが示された[1]。また Ni_2Cu hollow サイト中における吸着種の位置は Ni 側に寄っており、吸着に不利な Cu が入ることで幾何学的に吸着が弱められていること(いわゆる ensemble 効果)が明らかになった[1]。

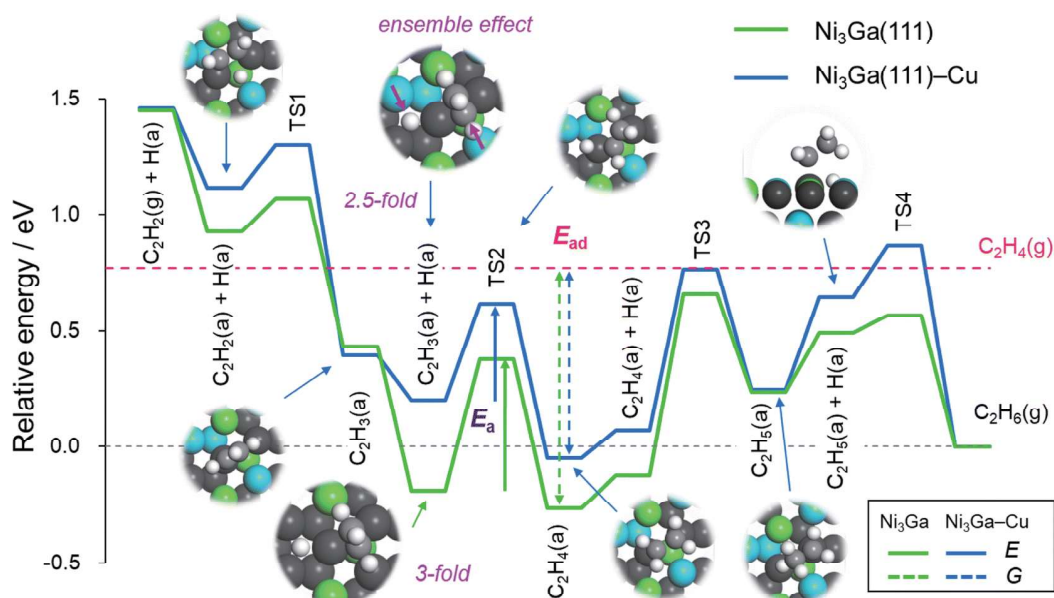


図 1. DFT 計算の概要: $\text{Ni}_3\text{Ga}(111)$ および $\text{Ni}_3\text{Ga}(111)\text{-Cu}$ 表面構造とアセチレン吸着・水素付加過程の幾何学配置とエネルギーダイアグラム。

発表論文(謝辞あり)

[1] J. Ma, F. Xing, K. Shimizu, S. Furukawa*, *Chem. Sci.*, **2024**, *15*, 4086-4094.