

# GRRM による表面吸着系の研究

○ 佐々木岳彦 (東大院新領域)

表面における様々な分子の吸着状態の解析は、触媒反応の研究についての基盤となる。また、一酸化炭素、窒素、水素などの二原子分子の遷移金属表面上の吸着・解離挙動は、実験および、計算化学の立場から詳細に研究されており、表面の電子状態、表面構造（原子構造）および分子との相互作用の結果として現れる興味深い現象である。密度汎関数法計算による研究も多くなされているが、本研究では、GRRM[1]の特徴を生かして、複数の吸着状態や解離過程に伴う中間体とそれらの変換についての遷移状態を求めることをねらいとしている。表面における吸着系に関しては、GRRM を

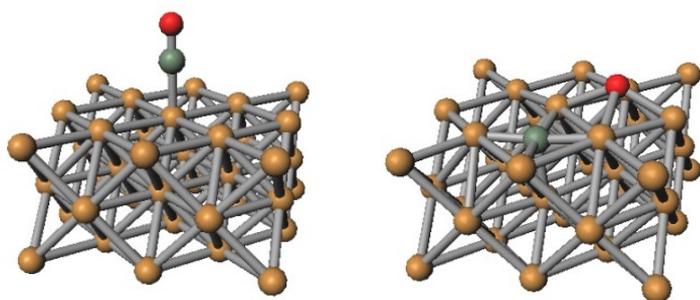


図1 Cu(100)上のCOの分子状(左)および解離(右)吸着種

を用いた解析が Si(100)上の酸素吸着系に関して報告されている[2]。なお、本研究では、表面モデルを計算する場合にクラスターモデルを使用しているが、GRRMで吸着構造を探索した時に、吸着種が本来は表面として露出していない、クラスタ

一の端面に出るような構造を回避するような方策も検討する必要がある。まずはじめに、低スピン系で、比較的反応性の低い Cu 吸着系を対象に計算を行うこととした。吸着系の外側の原子を固定する Frozen Atoms オプションを用いて、Cu(100)上の一酸化炭素の分子状吸着状態と解離吸着状態について、構造最適化を行った(MIN/pbe1pbe/dgdzvp)。Cu(100)表面モデルとしては、3層で、合計38原子をとり、そのうち、中心部の第1層の5原子と第2層の4原子、および吸着分子・原子位置を最適化し、その周囲の29Cu原子は位置を固定した。図1に示すように、atopサイトに吸着した分子状COと、酸素原子、炭素原子が4foldホローサイトに吸着した解離吸着状態が求まった。これらを出発点として中間体、遷移状態を網羅的に求めるGRRM計算の結果や、メタノールなどについての計算について当日報告する。

[1](a) K. Ohno and S. Maeda, Chem. Phys. Lett., 2004, 384, 277. (b) S. Maeda and K. Ohno, J. Phys. Chem. A, 2005, 109, 5742. (c) K. Ohno and S. Maeda, J. Phys. Chem. A, 2006, 110, 8933.

[2] S. Ohno et al. J. Phys. Chem. C 114 15671 (2010).