

Title	分子動力学法をもちいた Pd への水素吸蔵熱の堆算
Author(s)	福士, 大吾
Citation	
Issue Date	1996-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	none
URL	http://hdl.handle.net/10119/2304
Rights	
Description	材料科学研究科, 修士

分子動力学法を用いた Pd への水素吸蔵熱の推算

福士 大吾 (本多研究室)

Pd は、多量に水素を吸蔵することができる金属としてよく知られている。金属の水素吸蔵は、通常発熱過程である。ところが PdH_x の場合、 $x < 0.85$ のとき発熱、逆に x がそれ以上大きくなると大きな吸熱となることが、報告されている。このような報告は、推算値と実験結果の両方があるが、実験結果については電解法による例が多く、再現性に関してまだ確定されていない。 PdH_x が、このような特殊な吸蔵熱を示す原因について、「 x の増加にともなう構造の変化」ではないかと考え、本研究では、分子、原子レベルで、物質の構造や物性をシミュレーションする、分子動力学法 (MD 法) とよばれる手法を用いて、水素吸蔵 Pd の計算機シミュレーションを行なった。

MD 法とは、物質を構成する粒子ひとつひとつについて、粒子間相互作用ポテンシャルを与えて運動方程式を解くことにより、その物質の状態のシミュレーションをおこなう方法である。MD 計算で求められる物性や構造は、粒子間ポテンシャル関数で決定する。

PdH_x の MD シミュレーションを行なうにあたって、粒子間ポテンシャルを、ある吸蔵率 x におけるモル体積、体膨張率などの物性値の、実測値と計算値が一致するようにフィッティングをおこなって決定した。

このようにして求めたポテンシャルを用いて、 $0 \leq x \leq 1$ の範囲での PdH_x の吸蔵熱の計算を行なったところ、 x の値にかかわらず、一様に発熱傾向であるという結果を得た。また、同様にして PdH_x の原子位置を求めたが、 x の変化に対応する大きな構造の変化は見られなかった。

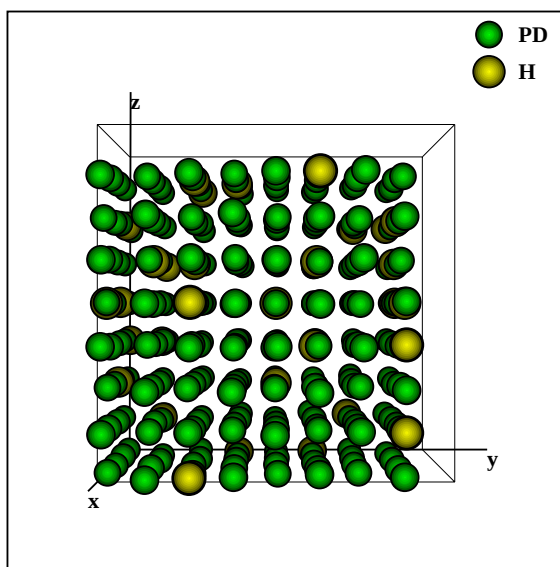


図 1: 計算に用いた $\text{PdH}_{0.375}$ 基本単位セル。Pd 原子 256 個、H 原子 96 個。

これら 2 つの結果は、互いに矛盾こそしないものの、当初の予測とは大きく異なるものとなっている。

またさらに、 PdH_x のシミュレーションを行なった際の、Pd、および H の原子温度 T_{Pd} 、 T_{H} を求めたところ、これら 2 つの値が大きく異なる値となっていることが分かった。平衡状態では、原子温度は等しい筈であり、MD 法で十分なステップ数の計算を行なえば、原子温度は一定値に収束する筈である。 T_{Pd} と T_{H} が別の値に分かれてしまう原因は、今のところはっきりと分かっていない。

この問題の根本的な原因の究明が、今後 PdH_x 系の MD シミュレーションをより厳密に行なっていく上での重要な課題である。

keywords 分子動力学法, Pd, H, 水素吸蔵熱