

高速化量子分子動力学プログラムによる 脱硝反応触媒の検討

○草谷友規¹、遠藤 明¹、久保百司¹、香川公司²、今村 詮³、宮本 明^{1,4}

¹ 東北大学大学院工学研究科材料化学専攻（〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 07）

² 関西電力（〒661-0974 兵庫県尼崎市若王寺 3-11-20）

³ 広島国際学院大学工学部（〒739-0321 広島市安芸区中野 6-20-1）

⁴ 東北大学未来科学技術共同研究センター（〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 04）

【緒言】酸化バナジウム系複合触媒は固定排ガス源の NO_x 除去を行う重要な工業触媒として、火力発電所などに実用化されている。しかし、アルカリ金属（Na、K）や SO_x など様々な被毒物質により触媒はしだいに劣化し、その結果、触媒性能が低下することによって NO_x を十分に分解できなくなる。劣化の際に起きる化学現象を理解し、劣化機構を解明することは非常に重要である。そこで本研究では、当研究室で開発した高速化量子分子動力学プログラムを用いて、実際に火力発電所などで使用されている V₂O₅-MoO₃/TiO₂ 触媒についてアルカリ金属（K、Na）被毒に関する検討を行った。

【方法】高速化量子分子動力学計算には当研究室で開発した Colors プログラムを用いた。計算に用いるパラメータは密度汎関数法に基づく ADF プログラムの結果に基づいて決定した。

【結果と考察】触媒モデルは TiO₂ 担体上に V₂O₅ 触媒と MoO₃ 助触媒を担持したモデルとした。さらに、触媒表面に存在する V-OH を V-ONa のように H を Na に置換して、Na 被毒を受けた触媒モデル（図）を作成した。同様に K に置換することによって、K 被毒を受けた触媒モデルとした。

まず、触媒被毒を受けていないモデルで計算を行ったところ、触媒の活性点である V-OH の H 原子の電荷が 0.0848 であった。一方、Na 被毒を受けたモデルの場合、Na 被毒を受けた活性点から第 1 近接の活性点 V-OH の水素の電荷が 0.0842 で、第 2 近接の活性点では 0.0824、第 3 近接の活性点では 0.0828 であった。被毒を受けていないモデルと比較すると、電荷が低下していることがわかった。このことから、被毒された周辺の活性点にも、被毒の影響があり、アンモニアが吸着力の低下していることが示唆される。また、K 被毒を受けたモデルの場合、K 被毒を受けた活性点から第 1 近接の活性点 V-OH の水素の電荷が 0.0836 で、第 2 近接の活性点では 0.0820、第 3 近接の活性点では 0.0823 であった。Na と比較すると水素の電荷がさらに低下しており、K は Na よりも周辺の活性点に大きな影響を及ぼしていることがわかった。

このように、高速化量子分子動力学プログラムを用いることにより、大規模モデルでの計算を可能にし、広範囲にわたる被毒の影響を明らかにすることに成功した。

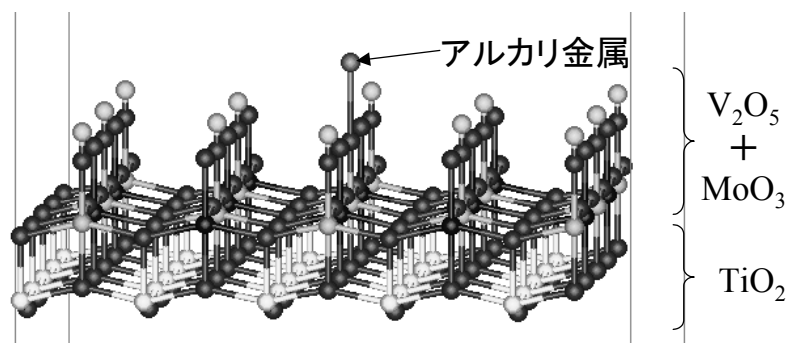


図 アルカリ金属に被毒された触媒モデル