

## 2004 触媒シタリングプロセスの大規模シミュレーションを可能とする キネティックモンテカルロ法の開発

○久保百司<sup>1,2</sup>、伊藤優基<sup>1</sup>、鄭 昌鎬<sup>1</sup>、黒川 仁<sup>1</sup>、古山通久<sup>1</sup>、宮本 明<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup> 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 07)

<sup>2</sup> 科学技術振興機構さきがけ (〒332-0012 埼玉県川口市本町 4-1-8)

<sup>3</sup> 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 10)

### 【緒言】

触媒設計・触媒開発において、触媒寿命の予測は最も難しい課題の一つである。実験的に触媒寿命を明らかにするには、長時間を必要とする触媒劣化試験を実施する必要があるため、理論的なアプローチが求められている。しかし、触媒のダイナミクス計算を可能とする方法論として分子動力学法が最も有名であるが、分子動力学法で扱うことができるのはナノ秒オーダーであり、担持金属触媒のシタリングプロセスなど長時間かけて起こる触媒劣化現象を解明することは全く不可能である。そこで本研究では、分、時間、日といった非常に長時間スケールのダイナミクス計算を可能とするキネティックモンテカルロ法を開発した。さらに、本プログラムを用いて、従来の分子シミュレーション手法では不可能な担持金属触媒のシタリングダイナミクスを解明することに成功した。

### 【方法】

大規模系における担持金属触媒のシタリングプロセスを解明するために、オリジナルに考案したキネティックモンテカルロ法に基づく計算プログラムを開発することに成功した。本プログラムでは金属微粒子の拡散確率を下記の式で与える。

$$p = A \exp(-\Delta E/R*T)$$

ここで、 $p$  は拡散確率、 $-\Delta E$  は拡散前と拡散後のエネルギー差、 $T$  は温度を表す。

### 【結果と考察】

本稿では、 $540 \text{ \AA} \times 540 \text{ \AA}$  の  $\gamma$ -アルミナ表面上において  $30 \text{ \AA}$  の直径を有する Pt 微粒子 36 個のシタリングシミュレーションを行った結果を示す。まず、Pt 微粒子の構造最適化計算を行い、図 1 に示すような半球形状の Pt 微粒子を得た。この図は Pt 微粒子だけでも 7000 原子から構成される大規模シミュレーションの結果である。

さらに、様々なサイズを有する Pt 微粒子の  $\gamma$ -アルミナ表面上でのポテンシャルマップを作成後、36 個からなる Pt 微粒子のシタリングプロセスを計算した。その結果を図 2 に示す。従来の方法論では、このような大規模系の実現は不可能であり、我々の開発したキネティックモンテカルロ法の有効性が明らかになった。さらに、 $\gamma$ -アルミナ表面以外にも、チタニア、シリカなど様々な表面上での Pt 微粒子のシタリングプロセスを明らかにし、担体効果、面指数の効果なども解明することに成功した。

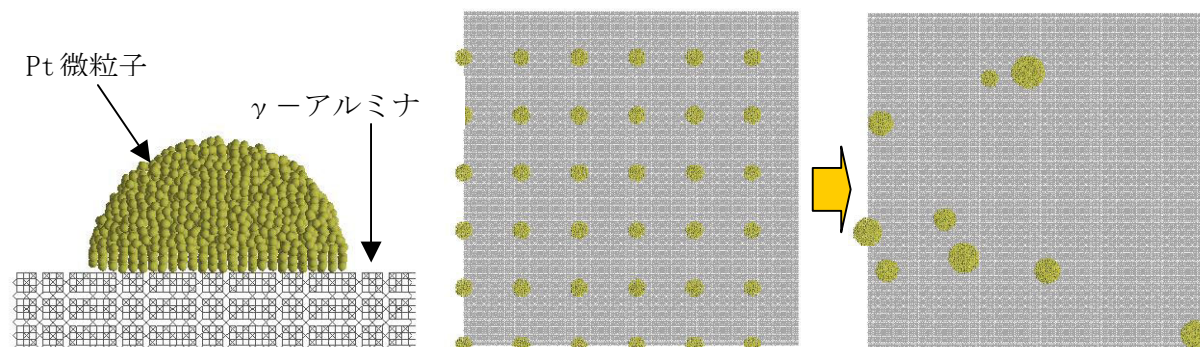


図1  $\gamma$ -アルミナ上の Pt 微粒子の最適化構造

図2  $\gamma$ -アルミナ上での Pt 微粒子のシタリングプロセスシミュレーションの結果