

非経験的分子軌道法によるCO₂リフォーミング反応の触媒効果比較

竹内 匠、不破 章雄

早稲田大学理工学研究科環境資源及び材料理工学専攻物質材料理工学専門分野

(〒169-8555 東京都新宿区大久保 3-4-1)

【緒言】

二酸化炭素削減法の一つである二酸化炭素のリフォーミングは、二酸化炭素を消費し、有効に活用する方法で(1)式に示す反応である。



従来の研究からは、CO₂リフォーミング反応に必要な不可欠な触媒に関する統一的な見解は得られていない。そこで本研究では非経験的分子軌道法を用い、Ni、Pt、Ru触媒について比較する。その際活性化エネルギーをパラメータとして用いた。

【計算方法】

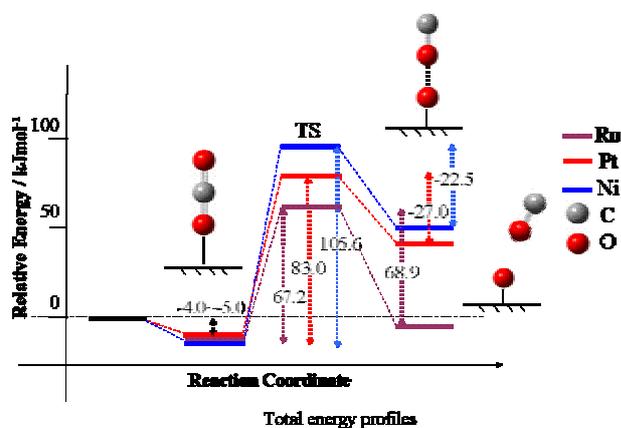
本研究での計算はすべて非経験的分子軌道プログラムGaussian03を用いた。基底関数はH、C、O、Si原子に対し6-31g*、重原子である金属に対しては内核にHay and Wadtの有効内核ポテンシャルを、外核にはvalence double zetaを用いた。触媒は下図に示すシリカ担体クラスターを用いた。クラスターのSiO₂部位はβ-christhalite構造の実験値で固定し、端をH原子で終端させた。先端に金属原子を用いた。



クラスタのSiO₂部位はβ-christhalite構造の実験値で固定し、端をH原子で終端させた。先端に金属原子を用いた。

【結果】

計算結果は右図に示す通りになり、Ru触媒が最も活性化エネルギーが低くなった。最初のCO₂吸着では、各触媒ともに4~5kcal/mol程度安定化し違いは見られなかった。CO脱離反応の活性化エネルギーには大きな差がみられた。



【参考文献】

D.M.Hatch and S.Ghose: Phys.Chem.Minerals. 17(1991),pp.554-562