

○久保百司^{1,2}、石本良太¹、坪井秀行¹、古山通久¹、遠藤 明¹、Carlos A. Del Carpio¹、
宮本 明^{1,3}

¹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 6-6-11-1302)

²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)

³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 6-6-10)

【緒言】

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が必要であるため、理論的アプローチが求められている。著者らは既に、キネティックモンテカルロ法に基づくことで、分子動力学法では不可能な μm スケールの2次元担体表面上における触媒シンタリングシミュレータの開発を実現した。しかし、上記の2次元担体表面を仮定したシンタリングシミュレータでは、触媒の担体構造、細孔構造がシンタリングに与える影響を解明することは不可能である。そこで、本研究では新規に3次元粒子モデルに基づくシンタリングシミュレータを開発し、細孔構造を有する現実的な触媒モデル上でのシンタリング挙動の検討を行った。

【方法】

モンテカルロ法に基づき、サブ μm ~ μm スケールの箱の中にランダムに球状、柱状などの形状を有する $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 粒子を充填し、また作成した $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 粒子上にPt微粒子を配置するプログラムを作成した。さらに、キネティックモンテカルロ法に基づきPt微粒子のシンタリングプロセスを解明可能なシミュレータを開発した。

【結果と考察】

開発した3次元担体構造シミュレータを用いて、長さ $0.06\mu\text{m}$ のセルに直径 100\AA の球状の $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 粒子を、モンテカルロ法を用いてランダムに充填させたモデルを図1(a)に示す。また、図1(b)には、長さ $0.1\mu\text{m}$ のセルに長径 300\AA 、短径 50\AA の柱状の $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 担体を充填した時の構造を示す。過去にこのような3次元担体構造をモデル化した例は全く無く、現実系を反映した3次元担体構造を初めてモデル化できたことを意味する。

次に、長さ $0.3\mu\text{m}$ のセルに直径 100\AA の球状の $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 粒子を充填させたモデルに対して、モンテカルロ法を用いて、直径 12\AA のPt微粒子を30個配置した担持金属触媒モデルを作成した(図2(a))。さらにキネティックモンテカルロ法を用いて、この3次元 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 担体モデル上でのシンタリングシミュレーションを行った。その結果、図2(b)に示すようにPt微粒子がシンタリングを起こして、最終的には10個のPt微粒子にまで成長する様子が観察された。さらに、 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 担体の3次元構造がシンタリングに与える影響も解明した。

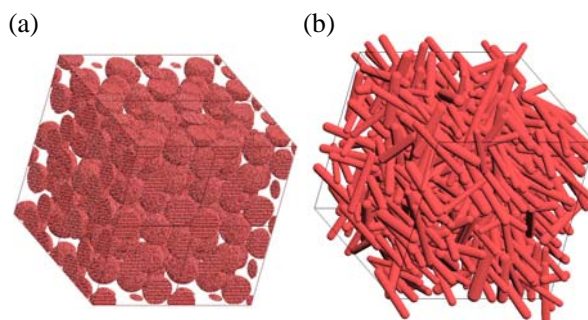


図1 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 担体の3次元担体構造モデル
—(a)球状担体、(b)柱状担体

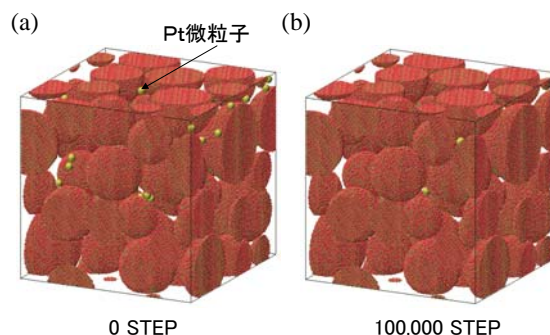


図2 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 担体上でのPt微粒子のシンタリング挙動—(a) 0 STEP、(b) 100,000 STEP