

1P07

マルチスケール計算化学による担持貴金属触媒の触媒特性評価

○ 石本良太¹, 大串巧太郎¹, 佐藤亮¹, 鄭昌鎬¹, 坪井秀行¹, 古山通久¹, 遠藤明¹, 久保百司^{1,2}, 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】自動車排出ガスの環境規制はますます厳しくなる傾向にあり、高活性な触媒の開発が求められている。しかし、触媒反応メカニズムといったマイクロな特性や多孔質触媒の触媒劣化といったマクロな実特性を実験的に理解することは容易ではないため、理論的アプローチに期待が高まっている。そこで、本研究では量子分子動力学法を用いて、担持貴金属触媒上の NO 還元反応メカニズムを電子・原子レベルで解析し、また μm スケールの三次元多孔質担体上の貴金属の拡散挙動を実時間・実担持率条件下で検討した。このようなマルチスケール計算化学によって担持貴金属触媒の性能向上のための知見を得ることを目的とした。

【方法】量子分子動力学計算には、当研究室で開発した Tight-Binding 量子分子動力学プログラム "Colors" を用いた。また、シタリング計算ではモンテカルロ法により、球状アルミナ微粒子の空間座標を決定することで三次元多孔質の担体を再現した。Pt 粒子は拡散係数に基づいて移動させることでシタリングシミュレーションを行った。

【結果と考察】量子分子動力学計算では、図 1 に示した Pt₁₃ クラスタ上に NO 分子および CO 分子を配置したモデルを用いた。計算温度は 900K、積分時間は 0.1fs とした。図 2 にダイナミクス計算から得られた NO 還元反応の Bond population の解析結果を示す。図 2 から、NO 分子が解離した後、解離した O 原子が CO 分子と結合する様子が明らかとなり、Pt 触媒上の NO 還元反応ダイナミクスを解明することに成功した。

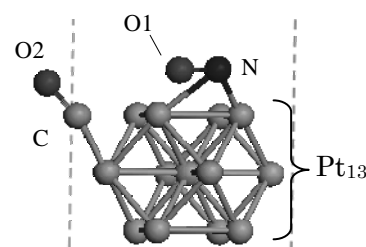


図 1 量子分子動力学計算で用いたモデル

また図 3 に示した三次元多孔質モデルを用いて、シタリングシミュレーションを行った。計算温度は 600°C、Pt 粒径は 10 Å、空隙率は 0.3、担体比表面積は 200m²/g として計算を行った。Pt の担持率を 0.3~2.0wt% に変化させ、シミュレーションを行った結果、担持率が大きくなるにつれ、Pt の最終的な表面積が小さくなることがわかった。これは、担持率が大きくなると粒子の衝突確率が増大するためだと考えられる。このように、より現実に近い三次元多孔質モデルを用いたシタリングシミュレータの開発に成功した。発表当日には、様々な条件下における計算結果も報告する予定である。

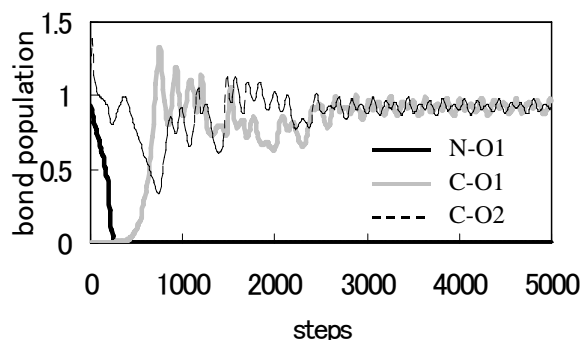


図 2 Bond population

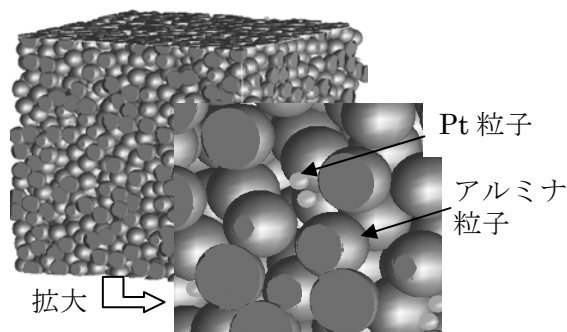


図 3 三次担体構造に Pt を担持したモデル