

触媒のメソ構造を考慮した 3次元反応解析シミュレーション

○鄭 善鎬¹, 三浦隆治¹, 鈴木 愛², 坪井秀行¹, 畠山 望¹,
遠藤 明¹, 高羽洋充¹, 久保百司¹, 宮本 明^{2,1}

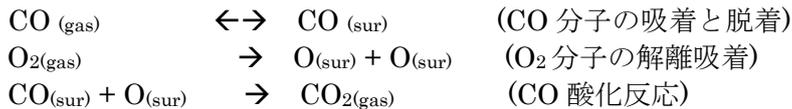
¹東北大学大学院工学研究科 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6)

²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】自動車排ガス触媒は多孔質セラミックス上に貴金属触媒を担持したものが一般的である。近年、貴金属の価格上昇や生産地の局在化などの問題から、貴金属使用量の削減が課題となっている。それについて、貴金属/多孔質セラミックスの微細構造は触媒性能、触媒利用効率などに大きく影響し、最適な多孔質触媒構造を設計するためには、多孔質触媒のモデル化が必要である。また、本研究では、貴金属/多孔質セラミックスのメソスケール構造を構築し、触媒利用効率を評価することで、貴金属使用量削減を試みた。また、触媒利用効率などを調べるために、必要な入力値をマイクロシミュレーションから評価した。

【方法】貴金属/セラミックスにおけるマイクロシミュレーションには、当研究室の大規模量子化学計算プログラム“New-Colors”を用いた。また、量子化学計算結果をもとに、CO分子の伸縮振動スペクトルを“RIVSS”を用いて評価した。

多孔質触媒構造は当研究室で開発した多孔質シミュレータにより構築した¹⁾構築した多孔質構造を用いて触媒表面上のCO酸化反応に関する素反応を考慮した。



CO酸化反応におけるガスの拡散速と反応速度の関係は下記の式で表される。

$$D_k^{eA} \left\{ \frac{d^2 C_k}{dx^2} + \frac{d^2 C_k}{dy^2} + \frac{d^2 C_k}{dz^2} \right\} + \sum_{j=1}^J v_{k,j} \cdot r_j = \frac{dC_A(x, y, z, t)}{dt}$$

ここで、 D_k^{eA} はk成分の有効拡散係数、 C_k はk成分の濃度、 $v_{k,j}$ はk成分のj番目の反応の両論係数、 r_j はj番目反応の反応速度である。また、貴金属触媒の利用効率を評価するために触媒有効係数を下記の式で表した。

$$\eta = \frac{1}{V^S \cdot r^{surf}} \int_{V^S} r dV$$

ここで V^S はセラミックスの体積、 r^{surf} はマクロ孔に露出されている触媒上での反応速度である。

【結果】図1に自動車排ガス触媒の構造を示す。本研究では、粒子単位でセラミックス担体と貴金属触媒のモデルを構築し、貴金属の担持量を変化させ、触媒有効係数を評価した。触媒有効係数を評価するためには、反応速度定数などの入力値が必要である。CO酸化反応速度に関する速度定数評価に先立って、図2に示すように貴金属表面上CO分子の吸着構造の妥当性を評価した。従来の実験的研究によると、およそ0.05で2095、0.25で2100 cm^{-1} である²⁾。本研究では、Pt(111)上CO分子の被覆率0.05で2090.3、0.25で2102.3 cm^{-1} の赤外線吸収スペクトルのピークが得られ、CO伸縮振動変化の傾向を再現している。学会当日には図2のように貴金属使用量による触媒の利用効率について報告する予定である。

- 1) M. Koyama et al., *Appl. Surf. Sci.*, **254**, 7774 (2008)
- 2) B. Hayden et al., *Surf. Sci.*, **125**, 787 (1983)

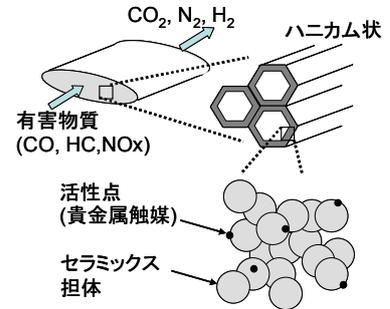


図1. 自動車排ガス触媒の構造

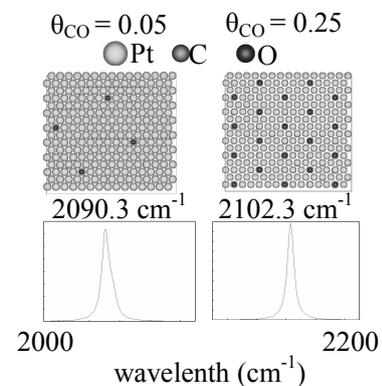


図2. 貴金属表面上CO分子の伸縮振動スペクトル