

複数面方位を考慮した Ni 触媒反応シミュレーション解析

○西林 大樹¹、小倉 鉄平²、月川 久義¹、田島 正喜¹

¹九州大学工学部機械航空工学科(〒819-0395 福岡県福岡市西区元岡 744)

²九州大学水素エネルギー国際研究センター(同上)

【諸言】

詳細反応機構を用いた表面反応シミュレーション解析は運転条件最適化や新規触媒設計に対して有効な手段の一つだが、従来の解析の多くは面方位を区別せずに単一表面を仮定して行われてきた。しかし、実際の触媒表面における現象を模擬するには、反応性の異なる複数の面方位を同時に考慮する必要がある。本研究では水素製造触媒である Ni を対象として、その支配的表面である(111)面に加え、(100)面や反応性の高いステップサイトを含む(211)面を考慮に入れメタン水蒸気改質反応のシミュレーション解析を行った。

【方法】

表面反応シミュレーションは連続槽型反応器モデルを仮定し、MATLAB の ODE15s ソルバーを用いて平衡状態での出口ガス組成及び気相及び表面化学種濃度の時間変化を計算した。(111)、(211)及び(100)面の詳細反応機構は、量子化学計算に基づき計算されたものを使用した[1,2]。計算条件は本研究室での実験装置及び運転条件と合わせており、詳細は以下の通りである。水蒸気/メタン/二酸化炭素の混合気体 (S/C=2.0~3.0) を内径 10.22 mm、長さ 50 mm の反応管 (反応器体積 4.1 cm³) に 398.2sccm (滞留時間 0.35s) で流し、反応器温度 873~1073 K、ゲージ圧力 0.135 MPa で反応させた。触媒充填長さは 10mm, 30mm, 50mm として、触媒総表面積は Ni 密度 0.024g/cm³ 及び比表面積 1.0m²/g より求めた。各面方位の表面積比は、Ni の粒子径を 7nm の場合の計算結果[2]を用いており、(111)及び(211)面のみ含む場合は 0.89 : 0.11 とし、全ての面を含む場合は (111) : (211) : (100) = 0.74 : 0.11 : 0.15 とした。

【結果】

触媒充填長さを変化させメタン水蒸気改質の反応シミュレーションを行った時のメタン転化率の変化を図 1 に示す。(111) 面の場合に比べ、(211) 面を含めた場合、メタンの転化率が大きく上昇して、実験値に大きく近づいていることが分かる。これは (211) 面でのステップサイトにおける反応が実表面において大きく寄与していることを示している。その他、温度や S/C 比依存性等、それらにおける各面方位の影響の詳細については当日報告する。

参考文献

[1] D. W. Blaylock et al, J. Phys. Chem. C, 113, (2009)4898

[2] D. W. Blaylock et al, Top Catal, 54, (2011)828

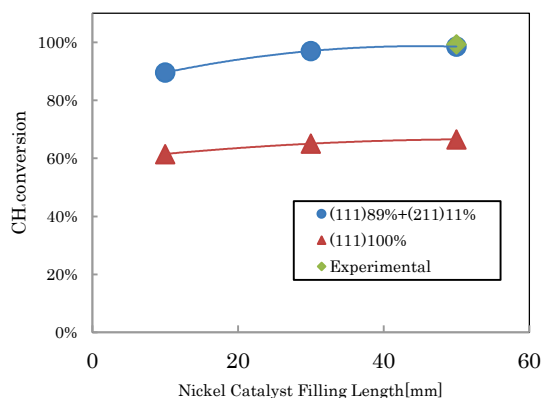


図 1 メタン転化率の触媒充填長さ依存性における(211)面の影響