

КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ АДсорбЦИИ СМЕСИ CH_4 – CO_2 ВО ВЛАЖНЫХ МИКРОПОРИСТЫХ УГЛЕРОДНЫХ АДсорбЕНТАХ

Е.Н. Бродская, В.В. Сизов

*Химический факультет Санкт-Петербургского государственного университета
198504 Санкт-Петербург, Старый Петергоф, Университетский пр., д. 26
E-mail: sizovvv@mail.ru*

В настоящей работе методом Монте-Карло исследована адсорбция бинарной смеси CH_4 – CO_2 в порах модельных углеродных адсорбентов в присутствии различных количеств воды. В ходе моделирования использовался «гибридный» статистический ансамбль, который формально можно рассматривать как большой канонический по молекулам газовых компонентов и канонический по молекулам воды. Таким образом, количество воды в пористом пространстве в ходе расчета было закреплено, а количество молекул газов варьировалось, что позволило рассмотреть связь влажности адсорбента с адсорбционной емкостью и селективностью.

Для изучения влияния строения адсорбента расчеты были выполнены для щелевидных микропор шириной 0.8, 1.0, 1.2, 1.6 и 2.0 нм с тремя различными вариантами структуры стенок поры, различающимися поверхностной плотностью кислородсодержащих активных центров. Моделирование проводилось для температуры 298 К. Исследовались газовые смеси при трех значениях общего давления (1, 5 и 10 атм) и трех различных составах (мольная доля CH_4 – 10%, 50% или 90%). Число молекул воды в поре изменялось от нуля до максимально возможного для пор данной ширины. Для описания молекул CH_4 и CO_2 были выбраны «полноатомные» молекулярные модели OPLS-AA и TraPPE, соответственно. Для молекул воды использовалась трехцентровая модель SPC/E. Структура поверхности пор также рассматривалась в рамках «полноатомного» подхода. Строение кислородсодержащих активных центров и эффективные заряды на атомах были определены на основании квантовохимических расчетов.

Полученные результаты указывают на возможность реализации двух возможных вариантов протекания адсорбции бинарной газовой смеси. В первом варианте присутствие воды в поре уменьшает адсорбционную емкость, что может объясняться уменьшением объема пористого пространства, доступного молекулам газа. При реализации второго варианта, напротив, может наблюдаться увеличение адсорбционной емкости с ростом содержания воды в поре. Возможной причиной этого эффекта может являться промотирование адсорбции более полярного компонента (углекислого газа) за счет электростатических взаимодействий с нанокластерами воды в поре.