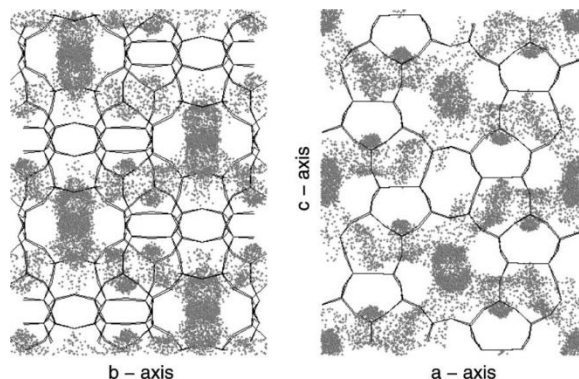


OPGESLOTEN GASSEN MODELLEREN: STRUCTUREBEPALING VAN METHANOL IN POREUZE MATERIALEN

Keywords: modelontwikkeling, moleculaire modellering, poreuze materialen, statistische fysica

Methanol is belangrijk in tal van industriële processen. De methanol-to-olefins (MTO) of methanol-to-gasoline (MTG) processen zijn relevante voorbeelden die binnen het CMM bestudeerd worden op moleculair niveau. Tijdens deze processen wordt methanol omgezet naar kleine olefines zoals etheen en propaan (MTO) of naar hogere koolwaterstoffen (MTG), cruciale componenten binnen respectievelijk de polymeerchemie en als brandstof voor benzinemotoren. De omzetting zelf gebeurt in een poreus katalysatormateriaal.

De structuur van methanol in gasfase of in vloeistoffase is goed gekend. Echter, wanneer methanol geadsorbeerd wordt in de kanalen van een poreus materiaal, is er niet langer sprake van een gasfase of vloeistoffase, want de pakking van methanol in de poriën is niet uniform en hangt in sterke mate af van het materiaal.



Het is bijvoorbeeld niet geweten hoe de methanolmoleculen zich organiseren bij het MTO-proces. Heden wordt de reactiesnelheid hiervan gesimuleerd door slechts één methanolmolecule in de porie te brengen, aangezien dit het gemakkelijker maakt om een transitietoestand te vinden voor de reactie. In zo'n beperkt model ontbreekt natuurlijk de invloed van de andere methanolmoleculen. Misschien versnellen de extra methanolmoleculen de reactie door extra solvatie, of misschien vertragen ze de

reactie omdat er gewoonweg niet genoeg plaats is om het product te laten vormen. Om meer inzicht te krijgen in de invloed van het solvent in de porie, is het dus opportuun om de pakking en structuur van geadsorbeerde moleculen te kennen.

De structuur van een vloeistof wordt gekenmerkt door haar radiale distributiefunctie $f(r)$, die uitdrukt wat de kans is om een molecule op een afstand r van een andere molecule te vinden. Experimenteel wordt ze afgeleid uit de Fourier-transformatie van diffractiepatronen. In silico wordt ze berekend door moleculaire dynamica-simulaties (MD) te laten lopen en het pad van een vloeistofmolecule te volgen. Om nu de structuur van methanol in het katalysatormateriaal te onderzoeken en te karakteriseren, kan ook een distributiefunctie opgesteld worden. Gezien poreuze katalysatoren geen homogene media zijn, zal hier een anisotrope functie moeten worden beschouwd, die niet enkel van de afstand r afhangt, maar ook een directionaliteit heeft.

Doelstelling

Het doel van deze thesis is de karakterisatie van de structuur van een vloeistof/gas geadsorbeerd in een poreus materiaal, waarbij de adsorptie van methanol als testsysteem wordt voorgesteld, gezien het industrieel belang voor het MTO-proces. De student zal de karakterisatie starten met het berekenen van de radiale distributiefunctie $f(r)$ aan de hand van MD-simulaties. Vervolgens wordt de anisotropie van het materiaal in rekening gebracht door een anisotrope distributiefunctie te ontwerpen en te implementeren. De resultaten worden geïnterpreteerd en vergeleken met experiment. Een mogelijke uitbreiding is een tijdsafhankelijke structuurkarakterisatie, die aangeeft hoe het geadsorbeerde solvent zich gedraagt tijdens de verschillende stappen van de MTO-reactie zelf.

Dit thesisonderwerp vraagt interesse voor de statistische fysica (theorie distributiefuncties), modelontwikkeling (uitwerken van anisotropie), en implementatie (model programmeren als post-processing tool).

Promotoren: Prof. Dr. ir. V. Van Speybroeck - veronique.vanspeybroeck@ugent.be (09/264.65.58),
Dr. ir. A. Ghysels - an.ghysels@ugent.be (09/264.65.61) / **Begeleiding:** Dr. ir. A. Ghysels
an.ghysels@ugent.be (09/264.65.61), Dr. ir. T. Verstraelen - toon.verstraelen@ugent.be (09/264.65.56)
<http://molmod.ugent.be/student-corner>