

# 저압하에서 팔라듐촉매하의 일산화탄소 산화반응에서 나타나는 진동현상에 대한 반응 기구의 고찰

◦ 박 일재(학), 우 성일(정)  
한국 과학 기술원 화학공학과

## 1. 서론

저압하에서 백금 촉매상의 일산화탄소 산화 반응에 대한 연구는 실험뿐만 아니라 수치 모사까지도 상세히 연구되어져왔다.<sup>1-2)</sup> 반응에서 나타나는 진동 현상의 원인이 백금 촉매의 표면상에서 발생하는 표면 재구성이라는 것이 밝혀져 왔다.

팔라듐은 본 반응에 있어서 일산화 탄소에 대한 화학흡착과 반응 활성도에서 백금과 유사한 것으로 생각되고 있으나, 표면 재구성이 나타나지 않는다는 것과 반응 진동이 관찰되는 압력의 범위가 넓다( $10^{-3}$  - 1 Torr)는 점이 그 차이로 나타나고 있다.

표면 재구성이 나타나지 않는 상태에서도 발견되는 반응 진동 현상에 대한 원인으로 표면밀의 산소(Subsurface Oxygen)의 역할이 밝혀진 후<sup>3)</sup> 이를 이용한 수치 모사가 시도되었으나<sup>4)</sup>, 실험상 보여지는 비주기적 진동, 유량에 의한 영향등 여러가지 현상에 대한 모든 설명은 되지 않고 있다.

본 연구는 유량의 변화에 의한 반응기 내의 촉매 표면 압력의 변화에 따른 진동 현상의 변화에 대한 가능성과 일산화탄소의 흡착 속도의 변화를 포함시킴에 따르는 비주기성 진동 현상에 대한 그 수치모사를 작성하여 반응 기구를 고찰 하였다.

또한 저압하에서 실험적으로 나타난 두개의 촉매상에 의한 반응의 간섭 현상을 수식적으로 예측하여 모사할 수 있음을 보였다.

## 2. 연구 방법

기 연구된 3원 비선형의 수치 모사<sup>4)</sup>에 물질 수지 식을 첨가 하여 유량의 변화에 따른 일산화탄소와 산소의 표면압력의 변화에 대한 수식을 추가하고 일산화탄소의 흡착 속도의 변화를 포함시키도록 그 수식을 추가작성하여 비주기적 진동 현상을 예측하는 5원 비선형 미분 방정식을 풀었다.

이를 응용하여 두개의 촉매상에 의한 반응의 간섭 현상(Coupled Chemical Oscillators)을 8원 미분 방정식으로 모사하였다.

## 3. 결과 및 고찰

본 연구의 결과로 실험<sup>5)</sup>에서 보여지는 표면 분압의 변화(그림 1)와, 시료의 유량에 따르는 반응 진동주기의 변화(그림 2)가 예측되어지고 또한 비 주기적인 진동 현상에 대해서도 그 수치 모사가 가능해졌다.

특히 비 주기적인 진동 현상을 설명하기 위해서는 표면밀의 산소의 역할이외의 일산화 탄소의 흡착 속도에 대한 영향이 고려되어야 한다는 점이 특징할만한 사항이라 하겠다. 이 결과로 나타나는 현상은 반응 진동이 일반적으로 이해되는 산소가 풍부한 영역에서만 아니라 일산화탄소가 풍부한 영역에서도 발견된다는 사실이 수식적으로도 보여졌다.

또한 유량의 변화가 진동현상에 미치는 영향을 근거로 확장된 수치 모사가 두개의 진동자가 있을때 한쪽의 진동 현상의 소멸이 상대편의 진동 현상에 미치는 실험 결과<sup>6)</sup>를 수식적으로 입증할 수 있었다.(그림 3)

#### 4. 참고 자료

- 1) M. Eiswirth, P. Möller, K. Wetzl, R. Imbihl, and G. Ertl, J. Chem. Phys, 90(1), 510(1989)
- 2) R.M. Eiswirth, K. Krischer, and G. Ertl, Appl. Phys. A., 51, 79(1990)
- 3) S. Ladas, R. Imbihl, and G. Ertl, Surf. Sci., 197, 153(1988)
- 4) M.R. Bassett and R. Imbihl, To be published
- 5) M. Ehsasi, PhD Thesis, Univ. Berlin(1989)
- 6) M. Ehsasi, O. Frank, J.H. Block and K. Christmann, Chemical Physics Letter, 165, 115(1990)

그림 1. 반응율과 표면분압의 관계  
( $P_{Co}=8E-5$  Torr,  $P_{O_2}=4E-2$  Torr,  $T=420$  K)

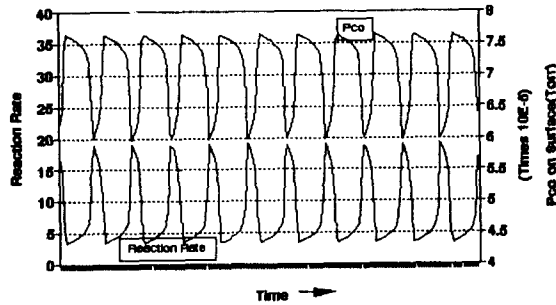


그림 2. 유량 변화에 따른 주기 변화  
( $P_{Co}=1.E-4$  Torr,  $P_{O_2}=4.E-2$  Torr)

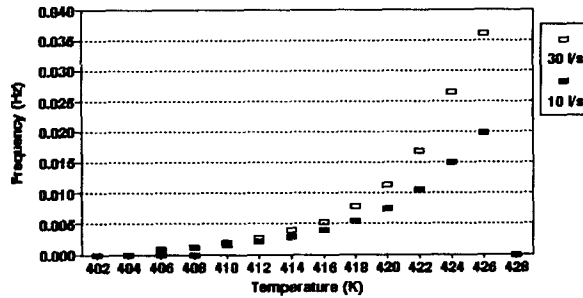


그림 3. 간섭 현상(Quenching)

