

# 귀금속촉매 (Pt, Pd) 를 이용한 일산화탄소 산화반응에 관한 연구

## A Study of Carbon Monoxide Oxidation on Pt & Pt-Pd Catalysts

金 京 林 · 이 원 목 · 유 홍 진

연세대학교 화학공학과

Kim Kyung Lim, Lee Won Mook, Yoo Hong Jin  
Department of Chemical Engineering, College of Engineering  
Yonsei University

### ABSTRACT

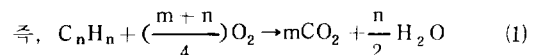
This study is concerned with the oxidation of carbon monoxide on platinum and platinum-palladium catalysts. Catalysts were made by the impregnation method and flow reactor was used in the catalytic reaction. As for the mixed gases, carbon monoxide concentration varied from 1 to 4% and that of oxygen from 1 to 4%. N<sub>2</sub> was used as carrier gas and GHSV varied from 24,000 h<sup>-1</sup> to 60,000 h<sup>-1</sup>. The temperature range was from 200 to 600°C. It was also taken into consideration that the heat and mass transfer resistance of our catalysts was negligible in the study. Experimental results showed that platinum-palladium catalyst was about 1.5-3.9% superior to platinum catalyst in conversion yield. When we used platinum-palladium catalyst, we observed that carbon monoxide oxidation was found to be 1st order with respect to carbon monoxide concentration. Activation energy of the catalyst was 23.5 kcal/mol.

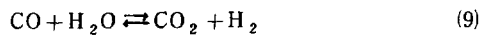
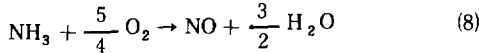
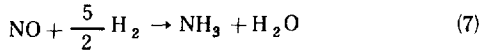
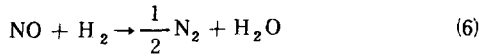
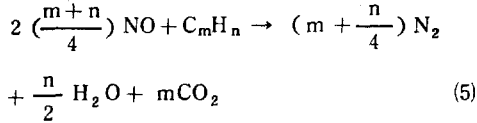
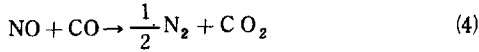
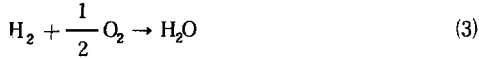
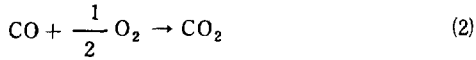
### 1. 서 론

에너지소비가 늘고 산업사회의 급속한 진보로 인한 대기오염문제는 점점 더 심각해지고 있다. 대기오염원 중 가장 큰 문제로 제기되고 있는 것은 연료의 불연소로 발생하는 일산화탄소이다. 일산화탄소의 전체 배출량의 50% 이상이 자동차 배출가스에 의하여 이루어지고 있으며 선진국미 각국에서는 자동차 배출가스를 감소시키기 위하여 촉매전환기를 개발하여 부착하고 있다.<sup>5, 21)</sup> 미국에서 개발된 촉매전환기에 사용된 촉

매의 화학적 조성을 보면 귀금속촉매의 사용이 지배적이며 따라서 본 연구에서도 Pt와 Pt-Pd 촉매를 사용하여 자동차 배출가스와 유사한 범위의 일산화탄소의 조성을 전환시키는데 그 기초이론을 정립하기 위하여 반응속도론적인 해석과 촉매의 activity, 그리고 활성화에너지를 구하고자 한다.

자동차 촉매전환기에서 일어나는 반응은 다음과 같이 추정될 수 있다.





이다. 이상의 반응에서 살펴보면 산화반응이 주로 일어나며 일부 환원반응이 동시에 일어난다. 그러나 환원반응에 대한 촉매의 활성을 높이기 위해서는 복잡한 공정을 거치게 되며 현재 대부분 선진국에서도 산화반응에 중점을 두고 촉매를 개발하고 있다.

일산화탄소의 촉매를 이용한 산화반응 연구는 1922년 Langmuir<sup>1, 19)</sup>에 의해 시작된 이후 촉매표면의 흡착, 표면화학, 촉매의활성 등과 연관되어 연구되어 왔으며 사용된 촉매는 주로 Cu, Mn, Pt, Pd, 회토류원소 등이었다.<sup>2, 11, 18)</sup> 담체는 주로 r-Alumina 가 주로 사용되었으며 Pt는 Pd보다 피독에 더 강하고 Pd는 Pt보다 thermal sintering에 강한 것으로 알려졌다.<sup>3)</sup> 촉매전환기의 개발을 위해서는 본 연구와 같이 기초적인 연구가 필요하게 되며 이와 관련하여 반응속도론적인 해석과 활성화에너지의 관찰은 필수적인 요소인 것이다.

## 2. 이론적 배경

### 2.1 반응식에 대한 고찰

본 실험에서 반응에 참가하는 반응물은 일산화탄소, 산소, 질소, 헬륨으로 이 반응물질이 불균일 촉매 상에서 반응할 때, 외부물질 전달→내부확산→흡착→표면반응→탈착과정을 거친다. 그러나 이 과정들의 산화반응기구가 명확히 밝혀지지 않았으므로 겉보기 반응식은 식(2)와 같이 표현될 수 있다. 그리고, 열역학적 데이터들을 이용하여 반응열, 깃스자유에너지 등을 구해봄으로써 이론적인 반응의 가능성을 검토해 보았다. 그 결과를 정리해 보면

$$\Delta H_T^0 = -66583.06 - 6.0015T + 1.031 \times 10^{-2} T^2 - 7.376 \times 10^{-6} T^3 + 2.1015 \times 10^{-9} T^4 \quad (\text{cal/gmol})$$

$$\Delta G_T^0 = -66583.06 + 6.0015T \ln T - 1.035 \times 10^{-2} T^2 + 3.688 \times 10^{-6} T^3 - 14.295T \quad (\text{cal/gmol})$$

$$K_T = \text{EXP}(-\Delta G_T^0 / RT) \text{이다.}$$

이 식들에 반응조건의 온도 T값을 대입하여 계산한 값은 <표 1>에 나타났다. 따라서  $\Delta G_T^0 < 0$  이므로 열역학적으로 반응의 완결이 가능하며 발열반응으로 온도 증가에 따라 평형상수값이 줄어들음을 알 수 있다. 또한 질소의 반응성을 검토하여 본 결과 본 반응조건에서는 반응이 일어날 가능성이 없으므로 무시할 수 있었다.

### 2.2 일산화탄소의 산화반응 Mechanism

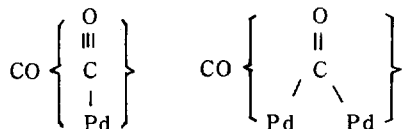
귀금속 촉매 상에서 일산화탄소의 산화반응은 촉매표면위에서 흡착된 산소와 일산화탄소의 반응이다. Eischen et al.<sup>6, 7, 15)</sup>은 Pd위에 흡착된 탄소의 적외선 분광스펙트럼으로부터 다음과 같이 선형결합일산화탄소와 가교결합된 일산화탄소가 있음을 밝혔다.

<표 1> Properties of gases as a function of temperature

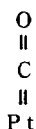
T (°C)	$\Delta H_T^0$ (cal/gmol)	$\Delta G_T^0$ (cal/gmol)	$K_T$
150	$-6.78 \times 10^4$	$-5.8873 \times 10^4$	$2.63 \times 10^{30}$
300	$-6.7799 \times 10^4$	$-5.5714 \times 10^4$	$1.78 \times 10^{21}$
400	$-6.7772 \times 10^4$	$-5.3609 \times 10^4$	$2.57 \times 10^{17}$
500	$-6.7721 \times 10^4$	$-5.1512 \times 10^4$	$3.67 \times 10^{14}$

〈표 2〉 Mechanism of carbon monoxide oxidation

Eley - Rideal	Langmuir - Hinshelwood
CO(a) → CO(g)	CO $\rightleftharpoons$ $\frac{1}{2}$ CO(a)
1/2 O <sub>2</sub> (g) → O(a)	O <sub>2</sub> → 2 O(a)
CO(g) + O(a) → CO <sub>2</sub> (g)	CO(a) + O(a) $\xrightarrow{4}$ CO <sub>2</sub>



A. Clark<sup>8)</sup> 은 백금촉매 상에서 일산화탄소의 흡착결합체는 다음과 같다고 밝혔다.



또한 CO<sub>2</sub> 가 재흡착되어 반응을 억제하는 경우도 있으나 높은 온도에서 탈착속도가 더 빠른 것으로 나타났다.

일산화탄소 산화반응 mechanism 은 두가지 모델이 있으며 그 하나는 Eley-Rideal 이 제시했고 다른 하나는 Langmuir-Hinshelwood 가 제시한 바 있다.<sup>16, 11)</sup> 이 밖에도 제시된 모델이 있으나 〈표 2〉에 두가지 형태를 표시하였다.

또한 반응차수를 살펴 보면 Baddour 와 Modell<sup>10)</sup> 은 낮은 압력, 438~483 K 온도에서 백금촉매를 사용하였을 때 일산화탄소에 대하여 1 차라고 보고하였고 Noel w. et al<sup>1)</sup> 은 390 k에서 Pd 촉매의 사용으로 산소농도에 대하여 1 차반응으로 보고하였다.

### 3. 실 험

#### 3.1 담 체

촉매의 담체는 모든 불균일계 촉매 반응에서 촉매성분을 안정화 시켜야 하며 촉매의 표면적을 증가시키고 촉매성분의 확산정도를 증가시켜야 한다.<sup>2)</sup> 특히 자동차 배출가스 처리에 사용될 때 낮은 비열을 갖고 열팽창 계수가 적고 가스의 난류흐름에 대한 마모성이 작아야 하고 도로위의 운전중 진동에 의한 변형이 일어나지 않

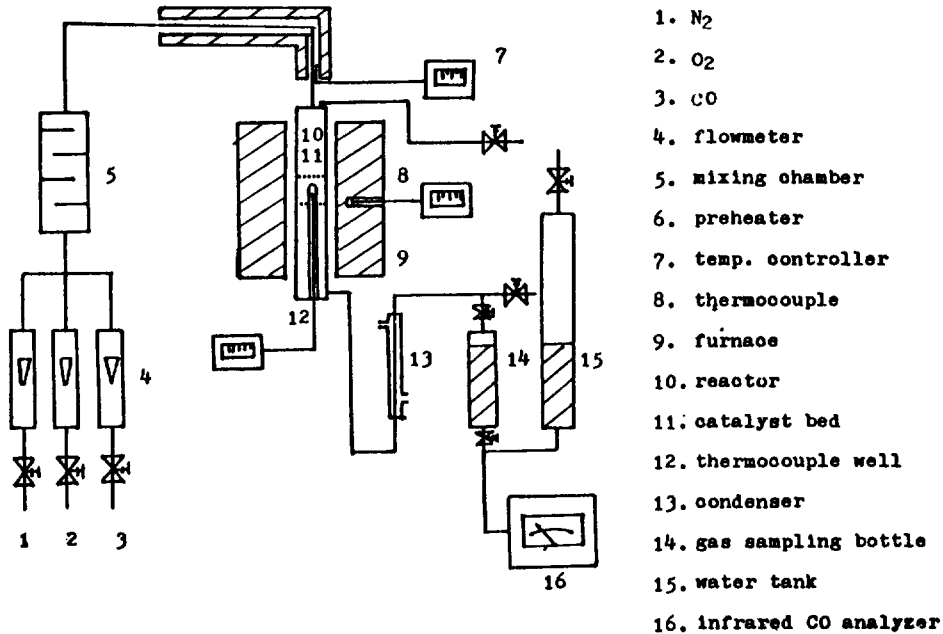
아야 하며 열적으로 안정해야 한다. 본 연구에서는 이에 적합한 담체로  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>22)</sup> 를 사용하였으며 Rhone-Poulenc 사로부터 제공받았고 그 주요 특성은 〈표 3〉과 같다.

〈표 3〉 Properties of  $\gamma$ -alumina

structure	$\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
bulk density (g/cm <sup>3</sup> )	0.66 - 0.72
pellet size (mm)	$\phi$ 2.4 - 4.0
surface area fresh (m <sup>2</sup> /g)	75 - 120
Na <sub>2</sub> O content (ppm)	< 1500
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> " "	< 650
SiO <sub>2</sub> " "	< 700

#### 3.2 촉 매

자동차배출가스 전환촉매가 갖추어야 할 조건으로는 저온에서도 산화촉매로서의 기능을 가지며 넓은 온도 범위에서도 안정해야 하며 피독성에 강해야 하며, 활성도가 높고 열적, 기계적충격에 견디며 수명이 길어서 경제성이 있어야 한다. 본 실험에 사용된 촉매는 Pt 와 Pd를 선정하였으며 그 제조는 합침법으로 하였다. 즉, Pt 촉매는 H<sub>2</sub>PtCl<sub>6</sub>·6H<sub>2</sub>O 용액에  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 를 합침시켜 건조시키고 400°C 공기중에서 소성시켰으며 Pt-Pd 촉매는 Pt 를 우선 합침 한 후에 건조시키고 다시 PdCl<sub>2</sub> 에 진한 NH<sub>4</sub>OH 용액을 첨가하여 합침 후 건조하고 400°C에서 3 시간동안 소성하여 활성을 부여하였다. Pt 촉매는 0.036 wt % 지지하였으며 Pt-Pd 촉매는 Pt 이 0.036wt %, Pd 이 0.021wt % 지지되었다. 본 연구에서 제작된 촉매는 X-Ray Diffractionmeter 로 확인 하였다. 또한 본 연구에 사용한 PdCl<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>PtCl<sub>6</sub>·6H<sub>2</sub>O 는 특급시약으로 일본 순정화학주식회사에서 구입하였고 일산화탄소는 99.8 %의 순도로 일본소화탄산공업주식회사 제품을 사용하였으며 질소와 산소 그리고 헬륨은 98 % 이상으로 시중에서 구입하였다.



〈그림 1〉 Experimental apparatus

### 3.3 실험장치

반응기는 반응성이 없는 stainless steel tube 를 사용하였으며 내경이 2 cm, 내부단면적이 3.14 cm<sup>2</sup>, 반응기 두께가 0.3 cm, 전체반응기 길이가 89 cm, 촉매 층의 길이가 1.6~1.8 cm, 열전대의 길이가 45 cm 이었다. 촉매층의 온도를 측정하기 위해 thermocouple well의 끝이 촉매층의 중심에 가도록 하였으며 반응기의 촉매층 아래 부분과 위부분은 불활성인 cordierlite성분의 요업물질로 충전시켜 촉매층을 고정시켰다.

### 3.4 실험방법

실험장치는 〈그림 1〉에 나타내었다. 실험시작 전에 촉매에 활성을 부여하기 위하여 He 가스를 통과시키면서 온도를 300°C 이상으로 높였으며 자동차 배출가스 조성과 유사한 조건의 일산화탄소, 질소, 산소를 혼합하여 일정유량으로 미리 가열된 반응기에 통과시켜 일산화탄소의 전화율을 측정했다. 일정압력에서 각각의

가스는 미리 보정한 유량계를 통과시켜 가스혼합장치로 보내며 이안에 방해판을 설치하여 혼합을 하였다. 유량계의 보정은 실린더를 사용하여 수상치환법<sup>27)</sup>으로 가스를 포집하였으며 시간당 포집량(10회)을 계산한 결과 그 측정 오차는 무시할 수 있었다. 반응기의 촉매층을 통과하기 전에 혼합가스는 100-150°C로 유지하는 예열장치를 통과하여 미리 일정 온도로 유지시킨 반응기로 보내게 되며 열전대로써 촉매층의 온도를 기록하였다. 또한 로(Furnace) 중심에 열전대를 장치하여 로의 온도를  $\pm 10^{\circ}\text{C}$  이내에서 조절하고 로(Furnace)의 최고온도는 600°C까지 올릴 수 있었다. 반응기 상단에는 by-pass 장치를 하였으며 이것은 촉매층의 발열반응으로 반응열에 의해 촉매층의 온도가 갑자기 상승하여 내부압력이 높아짐을 막기 위함이다. 냉각장치를 통과한 가스는 증류수탱크를 통해 일정시간 by-pass되며 sample포집병으로 포집하여 분석하였다. 본 실험의 반응조건은 〈표 4〉에 표시하였다. 본 실험에서 사용한 분석장치는 Horiba사의 ND-IR (Non Dispersive Infrared) 방식의 MEXA-201을 사용하였으며 일산화탄소 측정범위는 0-2%, 0-8%의 범위를 갖는 것으로서 Horiba사에서 공

〈표 4〉 Reaction condition

N <sub>2</sub> (%)	CO <sub>2</sub>		O <sub>2</sub>		Temp. (°C)	GHSV (h <sup>-1</sup> )	Volume (g)
	%	cm <sup>3</sup> /min	%	cm <sup>3</sup> /min			
92	1-4	35	1-4	35	200	24,000	pellet
98		140		140	600	60,000	

급하는 표준농도의 일산화탄소가스로 수시로 보정하였다. 측정 전에 30분간 기기를 예열시켰으며 12ℓ의 포집병을 사용하였다.

#### 4. 결과 및 검토

##### 4.1 외부 물질 전달 저항과 열 전달 저항

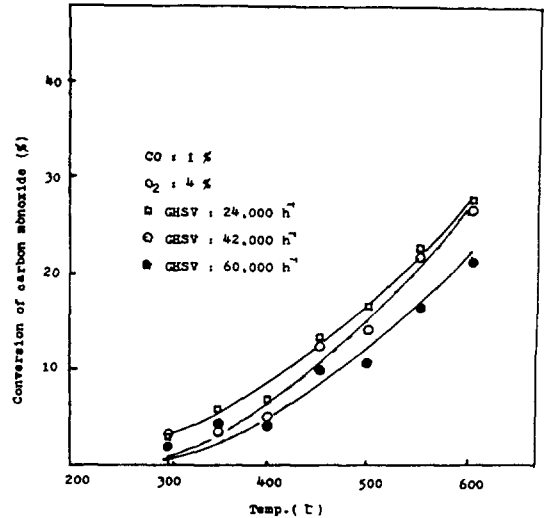
반응속도에 미치는 외부물질 전달 저항은 촉매표면과 bulk flow 사이에서 일어나는데 본 반응기에 사용된 촉매입자의 크기에서 촉매의 량과 bulk flow를 변화시키면서 GHSV(Gas Hourly Space Velocity)는 일정하게 하여 같은 조건에서 실험한 결과 전화율은 일정하였다. 이 결과는 Voltz와 Morgan et al<sup>5)</sup>의 자동차 모사배출가스 전환실험 결과와 일치하였다. 이상과 같은 결과로 미루어 보아 본 실험조건에서 물질 전달 저항이 전체 반응속도의 RDS (Rate Determining Step)가 아님을 알 수 있었다. 또한 촉매입자는 같은 반응조건에서 충분한 시간이 경과한 후에 전화율을 측정하였으므로 등온조건에 부합되어 열 전달 저항을 무시하였다.

##### 4.2 Blank Test

일산화탄소 및 산소의 농도를 고정시키고 촉매의 지지없이 공간속도와 온도를 변화시키면서 측정한 결과를 〈그림 2〉에 나타내었다. 200°C에서는 각각의 GHSV에 대하여 반응이 일어나지 않고 300°C에서 전환이 시작되었다. 이는 자동차의 평균 공간속도와 유사치인 GHSV 42000h<sup>-1</sup>, 온도 600°C에서 27%의 전환이 일어났 것으로 보아 실제 자동차 정상운행시 이 정도의 전환은 자동차의 배출가스 온도에서의 전환과 유사함을 추측할 수 있다.

##### 4.3 온도의 영향

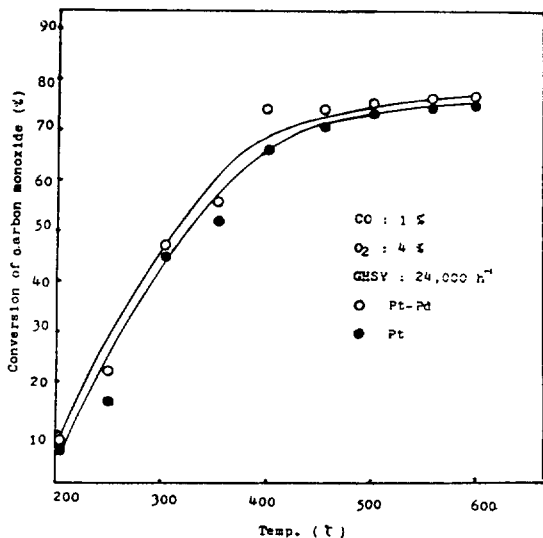
Pt 촉매와 Pt-Pd 촉매를 사용하여 GHSV 24000<sup>-1</sup> Vol. 1 (通卷 1號, 1985)



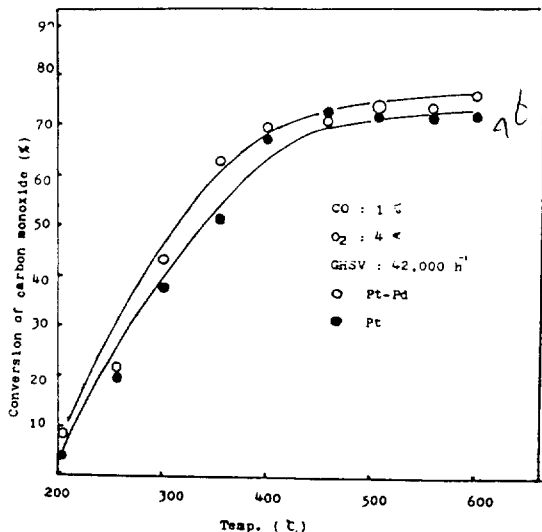
〈그림 2〉 Effect of blanktest on carbon monoxide conversion

로 고정시키고 실험한 결과를 〈그림 3〉에 나타내었다. 각각의 촉매상에서 200°C 이하에서는 10% 이하의 전화율을 나타내었으며 500°C 이상에서 부터는 전화율의 증가폭이 둔화됨을 알 수 있었다. 또한 400°C에서는 Pt와 Pt-Pd 촉매의 전화율 차이가 10% 정도의 차이를 보였다. 이는 Francis G. Dwyer<sup>3)</sup> 등이 발표한 내용중 Pd가 고온에서 Pt보다 활성이 강한 것으로 발표한 것과 부합되는 것으로 생각되어진다. GHSV 42000h<sup>-1</sup>로 증가시켜 실험한 결과를 〈그림 4〉에 나타냈으며 각각의 촉매에 대한 전화율의 차이는 350°C에서 가장 컸다. 또한 450°C 이상에서 전화율의 증가폭은 둔화되었으며 둔화의 정도는 각각의 촉매에 대하여 비슷하였다. GHSV 60000h<sup>-1</sup>에서의 결과를 〈그림 5〉에 표시하였으며 GHSV 60000h<sup>-1</sup> 이상에서는 각각의 촉매에 대하여 200°C 이하에서는 전화율을 나타내지 않았다. 이상의 결과를 종합하면 과잉산소 존

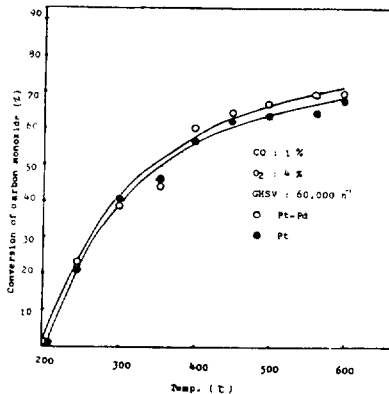
재하에 두 촉매 모두 200°C 부근에서는 거의 전환이 일어나지 않고 전체 온도 구간에서는 Pt 촉매보다는 Pt-Pd 촉매가 activity가 우수하였다. 또한 각각의 GHSV에 대하여 600°C 이상에서는 70% 이상 전환되었으며 각각의 촉매에 대한 GHSV의 변화에 따라 온도에 대한 민감도(Sensitivity)는 비슷하였다. 결국 반응 온도 범위에서 contact time이 중요한 변수임을 알 수 있었다.



<그림 3> Effect of temp. on carbon monoxide conversion



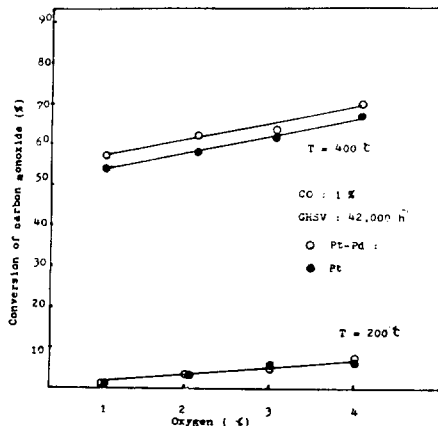
<그림 4> Effect of temp. on carbon monoxide conversion



<그림 5> Effect of temp. on carbon monoxide conversion

#### 4.4 산소의 영향

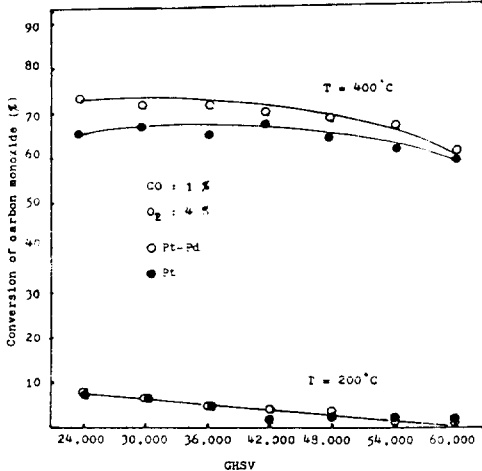
일산화탄소 1%, GHSV 42,000 h<sup>-1</sup>에서 Pt-Pd 촉매와 Pt 촉매를 사용하였을 때 일산화탄소의 전환에 대한 산소의 농도 영향은 온도를 변화시켜 고찰했고 <그림 6>에 표시하였다. 산소농도 1-4%, 온도 200°C일 때는 두 촉매 모두 약간의 전환율을 보이고 activity의 차이가 없었다. 같은 산소농도 범위에서 400°C일 때는 두 촉매가 산소농도를 변화시킬 때 전환의 차이가 있었으며 산소 4%일 때 Pt-Pd 촉매는 70%로 전 산소농도 범위에서 Pt-Pd 촉매가 효율이 좋았다. 산소의 증가에 따른 전환율의 증가는 촉매의 active site 위에 과량의 산소가 존재하여 표면흡착이 커진 것에 기인한 것으로 추측되어 진다.



<그림 6> Effect of oxygen on carbon monoxide conversion

#### 4.5 공간속도(GHSV)의 영향

〈그림 7〉에 나타낸 바와 같이 공간속도의 영향은 200°C 때 Pt-Pd와 Pt 촉매는 전화율의 차이없이 공간속도의 증가에 따라 감소함을 알 수 있다. 400°C 일 때 두 촉매는 차이를 많이 보이며 공간속도의 증가에 따라 감소하고 GHSV 60000 h<sup>-1</sup>에서는 차이가 거의 없었다. 전체 GHSV 구간에서 Pt-Pd 촉매의 성능이 높았다.



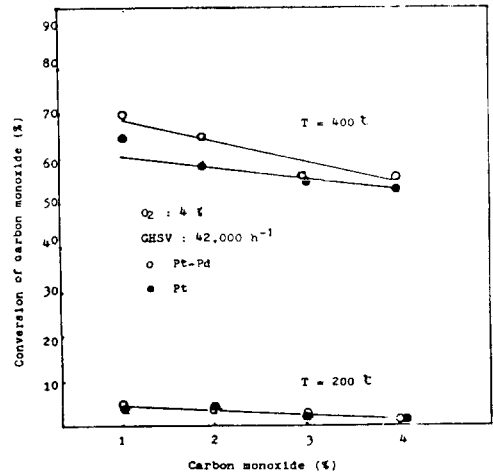
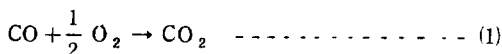
〈그림 7〉 Effect of GHSV on carbon monoxide conversion

#### 4.6 일산화탄소 농도의 영향

산소과량존재(4%), GHSV 42,000 h<sup>-1</sup>, 온도 200°C, 400°C에서 일산화탄소의 농도에 따른 두 촉매의 전화율은 〈그림 8〉과 같다. 200°C에서 일산화탄소의 농도변화에 의한 두 촉매의 전화율은 미비했고 일산화탄소의 반응억제 작용에 의해 전화율은 감소하였다. 또 온도를 증가시켰을 때 두 촉매는 전환차이를 보이면서 전화효율은 증가하였다. 일산화탄소가 과량일 때는 촉매표면의 산소농도는 적어지고 일산화탄소와 접촉시간이 짧아져서 일산화탄소의 생성율이 떨어짐을 알 수 있다.

#### 4.7 반응속도론

본 연구의 화학반응식은 (1)과 같이 나타낸다.



〈그림 8〉 Effect of carbon monoxide concentration on conversion

flow reactor는  $\frac{V}{F} = \int_0^{x_t} \frac{dx_t}{-r}$  ----- (2) 이므로

$$\begin{aligned} \text{여기서 } x_t &= x \frac{(y_{\text{CO}})_{\text{in}}}{(y_{\text{CO}} + y_{\text{O}_2})_{\text{in}}} = x \frac{1}{1 + (y_{\text{O}_2}/y_{\text{CO}})_{\text{in}}} \\ &= \frac{x}{1+a} \text{ 이다. } a = \left(\frac{y_{\text{O}_2}}{y_{\text{CO}}}\right)_{\text{in}} \text{ 이므로} \end{aligned}$$

$x = x_t (1 + a)$ 로 표시할 수 있다. 본 실험조건에서는 일산화탄소 농도에 대하여 1차라 가정하여 위 식(2)를 이용하면 식(3)과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{V}{F} = \int_0^{x_t} \frac{dx_t}{-r} = \int_0^{x_t} \frac{dx_t}{k \cdot P_{\text{CO}}} = \int_0^{x_t} \frac{dx_t}{k \cdot y_{\text{CO}}} \quad \text{----- (3)}$$

여기서  $-r = k \cdot P_{\text{CO}}$ ,  $P_{\text{CO}} = y_{\text{CO}} \cdot P_t = y_{\text{CO}}$ ,  $P_t = 1 \text{ atm}$  이므로

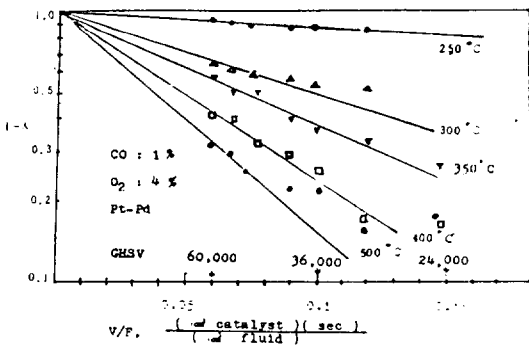
$$y_{\text{CO}} = \frac{1}{1+a} - x_t \quad \text{----- (4)}$$

식(4)를 식(3)에 대입하여 적분하면 다음과 같다.

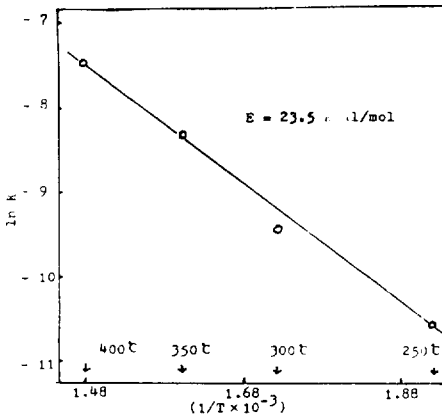
$$\frac{V}{F} = \frac{1}{k} \int_0^{x_t} \frac{dx_t}{(1/1+a) - x_t} = -\frac{1}{k} \ln(1-x)$$

따라서  $k = -\frac{F}{V} \ln(1-x)$ 로 나타낼 수 있다.

〈그림 9〉에서 일산화탄소 1%, 과잉산소(4%)에서 각 온도에 따른 전화율을 측정하여 공간속도에 대해 나



〈그림 9〉 Effect of temperature on carbon monoxide oxidation



〈그림 10〉 Arrhenius plot for carbon monoxide oxidation

타낸 결과, 일직선임을 알았고 이것은 이상의 반응조건 범위에서 반응차수는 일산화탄소 농도에 대하여 1 차임을 알 수 있었다. 〈그림 9〉에서 각 온도에 따른 k 값을 산출하여 Arrhenius plot 하면 〈그림 10〉과 같이 나타낼 수 있고 이 그래프의 기울기로부터 활성화 에너지값을 구할 수 있다. 활성화 에너지값은 23.5 kcal/mol 이었다.

## 5. 결 론

일산화탄소 산화반응에서 백금(Pt) 및 백금(Pt) - 팔라듐(Pd) 촉매를 사용하여 본 실험 조건에서 전환율을 측정, 비교한 결과 다음과 같은 전환율을 측정, 비교한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 본 연구에서 백금/팔라듐 = 1.71 무게비로 만든

촉매가 순수한 백금촉매보다 평균 1.5~3.9% 높은 전환효과를 나타내었고 이것은 피독에 강한 백금과 thermal sintering에 강한 팔라듐의 동시지지에 의한 작용으로 볼 수 있었다.

2) 백금-팔라듐 및 백금촉매 모두 일산화탄소의 증가와 공간속도의 증가는 일산화탄소의 전환율을 감소시켰고 이것은 촉매표면에서 산소의 흡착을 억제하는 역할로 간주된다.

3) 백금-팔라듐 촉매에 대하여 일산화탄소 1%, 산소 4%, 온도 250~400°C일 때 산화반응은 일산화탄소에 대하여 1차 반응이며 이때 활성화 에너지는 23.5 kcal/mol 이었다.

## 기 호 실 명

- a : constant
- E : activation energy, kcal/mol
- F : gas flow rate, cm<sup>3</sup>/s
- GHSV: gas hourly space velocity, h<sup>-1</sup>
- ΔG<sup>⊖</sup> : heat of reaction, kcal/mol
- k : rate constant, g mol/g cat. s. atm.
- Pco : partial pressure of CO, atm
- Pt : total pressure, atm
- T : temperature, °K
- V : catalyst volume, cm<sup>3</sup>
- x : fractional conversion
- Yco : mole fraction of CO
- YO<sub>2</sub> : mole fraction of O<sub>2</sub>
- η : effectiveness factor.

## 참 고 문 헌

1. Noel W. Cant, P.C. Hicks, and B.S.Lennon, J. Catal., 54, 372-383 (1978).
2. Francis G. Dwyer, Catal. Rev., 6, 277 (1972)
3. Jack C. Summers and L. Louis Hegedus, J. Catal., 51, 186 (1978)
4. Charles N. Satterfield, "Mass Transfer in Heterogeneous Catalysis, pp.4-9, M.I.T. (1970)"
5. Sterling E. Voltz, Charles, R. Morgan, David Liedermann, and Solomon M. Jacob, Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Develop., 12, 294 (1973)
6. F.M. Hoffmann and A.M. Bradshaw, J. Catal., 44, 328 (1976)
7. S.J. Stephens, B.T.L., 63, 192 (1958)
8. A. Clark, "The Chemisorptive bond basic concept," P.25, Academic press (1974)



9. W. K. Lee "수증기하에서 일산화탄소의 copper chromite 촉매에 의한 산화반응" 서울대학교(1980)
10. James Wei. *Adv. in Catal.*, 24, 90 (1975)
11. Richard K. Herz and Samuel P. Marin, *J. Catal.*, 65, 281 (1980)
12. K.F. Blurton and J.R. Stetter, *J. Catal.*, 46, 230 (1977)
13. John S. Close and John M. White, *J. Catal.*, 36, 195 (1975)
14. Octave Levenspiel, "Chemical Reaction Engineering," pp.108, New York, 1972
15. A. Palazov, C.C. Chang, and R.J. Kokes, *J. Catal.*, 36, 338 (1975)
16. Tatsuo Matsushima, *J. Catal.*, 64, 38 (1980)
17. Engel, T., and Ertl, G., *J. Chem. Phys.* 69, 1267 (1978)
18. E. McCarthy, J. Zahradnik, G.C. Kuczyvski and J.J. Carberry, 39, 29 (1975)
19. Tatsuo Matsushima, *J. Catal.*, 55, 337 (1978)
20. Charles, M. Grill, Richard D. Gonzalez, *J. Catal.*, 64, 487 (1980)
21. K.I. Jagel, F.G. Dwyer, "HC/CO Oxidation Catalysts for Vehicle Exhaust Emission Control," SAE Print No. 710290, SAE Automotive Engineering Congress, Detroit, Michigan, January 1-2, 1971
22. H.C. Yao, M. Sieg, and H.K. Plummer, Jr. *J. Catal.*, 59, 365-367 (1979)
23. S. Yamaguchi, *J. Catal.*, 50, 541 (1977)
24. S.H. Oh, K. Baron, E.M. Sloan, and L.L. Hebedus, *J. Catal.*, 59, 273 (1979)
25. Ertl, G., and Koch, J., in "Adsorption-Desorption Phenomena" (F. Ricca ed.), p.345. Academic Press, New York, 1972
26. Engel, T., and Ertl, G., *J. Chem. Phys.*, 69, 1267 (1978)
27. 김경림, *Yonsei Eng. Report.* 14, No. 1, 16 (1982)