

## Single stage WGS 반응용 Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매 연구

정대운 · 심재오 · 장원준 · 노현석<sup>†</sup>  
연세대학교 환경공학과

### A Study on Pt-Na/CeO<sub>2</sub> Catalysts for Single Stage Water Gas Shift Reaction

DAE-WOON JEONG, JAE-OH SHIM, WON-JUN JANG, HYUN-SEOG ROH<sup>†</sup>

Dept. of Environmental Engineering, Yonsei University, 1 Yonseidaegil, Wonju Gangwon-do 220-710, S. Korea

**Abstract** >> Na promoted Pt/CeO<sub>2</sub> catalysts with various Na amounts (1, 2, and 3wt%) have been applied to water gas shift reaction (WGS) at a gas hourly space velocity (GHSV) of 45515 h<sup>-1</sup>. 1wt%Pt-2wt%Na/CeO<sub>2</sub> catalyst exhibited the highest WGS activity at 240°C among the catalysts prepared in this study. In addition, 1wt%Pt-2wt%Na/CeO<sub>2</sub> catalyst showed relatively stable activity with time on stream. The high activity/stability of 1wt%Pt-2wt%Na/CeO<sub>2</sub> catalyst was correlated to its easier reducibility and higher oxygen storage capacity (OSC). As a result, 2wt% Na promoted Pt/CeO<sub>2</sub> can be a promising candidate catalyst for the single stage WGS, which requires high intrinsic activity at very high GHSV.

**Key words** : Na promoted Pt/CeO<sub>2</sub>, Water gas shift reaction(수성가스전이반응), Reducibility(환원력), Oxygen storage capacity(산소저장능력)

## 1. 서 론

현재 전세계적으로 사용되고 있는 화석연료는 전체 에너지 사용량의 약 80%를 차지하고 있으며 온실가스인 이산화탄소를 배출하기 때문에 지구온난화의 원인이 되고 있다. 반면 수소는 연소 시 이산화탄소를 배출하지 않고 물만을 배출하는 청정에너지로서 미래 에너지원으로 각광받고 있다. 현재 대용량 규모의 수소제조기술은 상업화 단계에 있다. 그러나, 연료전지의 효율적 공급 인프라 구축과 일체형 수소생산시스템의 실현을 위해서는 중소형 규모의 고순도 수소생산기술의 개발이 필요하다<sup>1)</sup>. 그러나, 공간제

약에 따른 스케일-다운의 어려움과 시스템 소형화에 따른 열효율 저하로 인해 기술 개발에 어려움을 겪고 있다<sup>1)</sup>. 특히, 고분자 전해질 연료전지(PEFC: polymer electrolyte fuel cell)의 이용가치를 높이기 위해서 소규모 및 내장형 수소 생산 시스템의 개발이 절실하다. 그 결과, 국제적으로 IEA(international energy agency) 실행프로그램(미국, 일본, 독일 등 OECD 11 개국/15 개 회사)을 통해 중소형 수소생산시스템 개발이 진행되고 있으며 운전용이성이 확보된 가스기기 수준의 통합형 수소생산시스템을 위한 새로운 열 및 시스템 통합 엔지니어링 기술이 제시되고 있다.

수소생산시스템은 탄화수소 연료의 개질을 통하여 수소를 생산하는 것이 일반적이며 천연가스(CH<sub>4</sub>) 수증기 개질을 통한 수소 생산이 전체 생산량의 약 50%

<sup>†</sup>Corresponding author : hsroh@yonsei.ac.kr

[ 접수일 : 2012.4.6 수정일 : 2012.4.13 게재확정일 : 2012.4.27 ]

를 차지한다. 특히, 화학공정 등에 필요한 수소를 제외한 순수 수소 제조 목적의 원료로는 천연가스 비중이 약 90%에 이를 정도로 천연가스 수증기 개질에 의한 수소생산이 매우 중요하다. 천연가스로부터 수소를 생산하는 공정은 탈황 공정(desulfurization), 개질(reforming), 수성가스전이반응 공정(WGS: water gas shift reaction), 선택적 산화반응 공정(PROX: preferential oxidation)으로 구성되어 있다. 개질반응을 통해 생산된 합성가스로부터 고순도 수소를 생산하기 위해서는 CO를 CO<sub>2</sub>로 전환하면서 추가적인 H<sub>2</sub> 생산이 가능한 WGS 반응( $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$ ,  $\Delta H = -41.1 \text{ kJ mol}^{-1}$ )이 매우 중요하다.

상업용 플랜트에서 WGS 공정은 열역학적 평형을 고려하여 두 단계로 구성된다. 고온전이반응(HTS: high temperature shift, 350 - 400°C)과 저온전이반응(LTS: low temperature shift, 200 - 250°C)이 있으며 각각 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매와 Cu/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매가 사용된다<sup>2,3</sup>). 그러나, 상업용 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매와 Cu/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 촉매는 낮은 처리용량과 제한된 온도 영역에서만 사용이 가능하고 공정 조건의 변화에 민감해 촉매가 쉽게 변성되는 문제점이 있기 때문에 중소형 규모의 수소생산시스템에 적용하기 어렵다. 따라서, HTS반응과 LTS반응을 동시에 수행할 수 있는 고효율 Single stage WGS 반응용 촉매의 개발이 필요하다. 최근, 기술제한요소를 극복할 수 있는 WGS 촉매 개발을 위해 Pt, Rh, Ru, Pd, Au와 같은 귀금속 촉매가 제안되고 있으며 촉매 성능을 입증받고 있다<sup>4-7</sup>).

Panagiotopoulou 등의 보고에 따르면 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 담체로 하여 귀금속 촉매를 담지 시킨 촉매의 활성이 Pt > Rh ≈ Ru > Pd 순서로 나타났다<sup>3</sup>). 더불어 Pt과 Rh을 환원성 담체(reducible support: TiO<sub>2</sub>, CeO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>, Ce<sub>(1-x)Zr<sub>(x)</sub>O<sub>2</sub> 등)와 비환원성 담체(Irreducible support: Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, SiO<sub>2</sub> 등)에 각각 담지 시킨 결과 환원성 담체에 담지시킨 촉매가 비환원성 담체에 비해 높은 활성을 나타내었다<sup>8</sup>). 특히, 가장 우수한 WGS 반응용 촉매로 높은 활성을 지닌 Pt/CeO<sub>2</sub> 촉매가 각광받고 있다<sup>4,8</sup>). 그러나 대부분의 Pt 촉매가 담체와의 약한 상호작용으로 인해 저온 영역에서 낮은 활성과 Pt</sub>

입자 소결로 인한 촉매 비활성화가 문제 시 되고 있다<sup>8</sup>). 최근, Pt 촉매의 문제점을 극복하기 위해 알칼리 금속(Li, Na, K)을 첨가하여 Pt 촉매의 CO 산화능력을 증진 시킨 연구결과가 보고되고 있다<sup>5,9</sup>). 선행 연구 결과, Pt/CeO<sub>2</sub> 촉매에 Na를 첨가하여 전환된 PtO<sub>x</sub>종의 환원이 촉매의 활성 증진에 결정적 역할을 하는 것을 확인하였다<sup>5</sup>). 따라서, 본 연구에서는 Na 첨가량이 활성과 안정성에 미치는 영향을 연구하고 최적 Na 담지량을 도출하였다.

## 2. 실험방법

### 2.1 촉매제조방법

CeO<sub>2</sub> 담체는 Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>·6H<sub>2</sub>O(99%, Aldrich)을 사용하여 침전법(precipitation method)으로 제조하였다. CeO<sub>2</sub> 담체는 전구체를 증류수에 녹인 후 80°C까지 가열하고 항온상태에서 침전제인 15% KOH를 넣어 pH 값을 10.5로 조절한 뒤 3일 동안 80 °C를 유지하면서 숙성시켰다. 숙성된 용액에 남아있는 K<sup>+</sup> 이온을 제거하기 위해 수차례 증류수로 세척하였다. 제조된 침전물을 500°C에서 6시간 동안 소성하여 준비하였다. Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 제조된 CeO<sub>2</sub> 담체에 Pt(NH<sub>3</sub>)<sub>4</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> (99.9%, Aldrich)과 NaNO<sub>3</sub>(99%, Duksan)를 혼합하여 함침법(incipient wetness impregnation method)으로 담지시켰다. Pt 담지량은 1wt%로 고정하였으며 Na의 담지량은 0wt%(Pt/CeO<sub>2</sub>), 1wt%(Pt-1Na/CeO<sub>2</sub>), 2wt%(Pt-2Na/CeO<sub>2</sub>) 그리고 3wt%(Pt-3Na/CeO<sub>2</sub>)로 각각 담지하였다. 제조된 촉매는 500°C에서 6시간 소성하여 준비하였다.

### 2.2 특성분석

촉매의 특성분석은 BET, XRD, TPR, CO-Chemisorption을 수행하였다. BET 표면적 분석은 Micromeritics(ASAP 2000)으로 -196°C에서 질소 흡착정도를 측정하여 BET 표면적을 분석하였다. X-선 회절 분석(XRD: X-ray diffraction)은 Rigaku D/MAX-IIIC diffractometer(Ni

**Table 1** Characteristics of Pt-Na/CeO<sub>2</sub> catalysts

| Catalyst                | BET S.A. <sup>a</sup><br>(m <sup>2</sup> /g) | Dispersion <sup>b</sup><br>(%) | Pt S.A. <sup>b</sup><br>(m <sup>2</sup> /g) | Pt Size <sup>b</sup><br>(nm) |
|-------------------------|----------------------------------------------|--------------------------------|---------------------------------------------|------------------------------|
| Pt/CeO <sub>2</sub>     | 111                                          | 37.6                           | 0.92                                        | 3.0                          |
| Pt-1Na/CeO <sub>2</sub> | 109                                          | 76.9                           | 1.89                                        | 1.5                          |
| Pt-2Na/CeO <sub>2</sub> | 108                                          | 51.7                           | 1.28                                        | 2.2                          |
| Pt-3Na/CeO <sub>2</sub> | 67                                           | 28.0                           | 0.69                                        | 4.0                          |

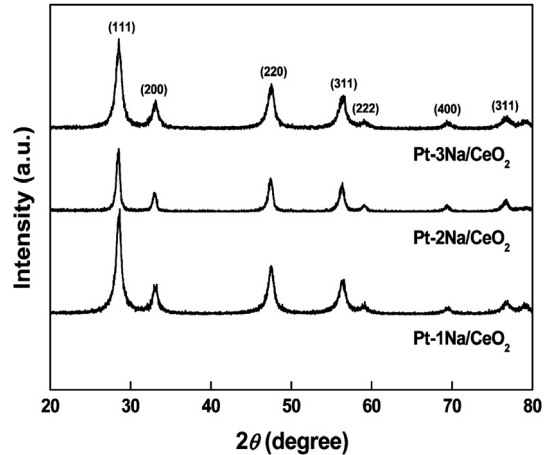
<sup>a</sup> Estimated from N<sub>2</sub> adsorption at -196°C.

<sup>b</sup> Estimated from CO-chemisorption at 50°C.

filtered Cu-K radiation, 40kV, 50mA) 장치를 사용하였다. CO 화학흡착분석(CO-Chemisorption)은 BEL-METAL-3(BEL JAPAN INC.) 장치를 사용하여 수행하였다. 제조된 촉매는 20% H<sub>2</sub>/Ar 분위기(400°C)에서 1시간 동안 환원시킨 후 분석하였다. TPR 분석(temperature programmed reduction)은 BEL-CAT(BEL JAPAN INC.)을 사용하여 10% H<sub>2</sub>/Ar 분위기에서 승온율 10°C/min으로 20°C에서 600°C까지 측정하였다.

### 2.3 반응실험

촉매 반응실험은 온도범위 200°C - 360°C에서 고정층 반응기를 이용하여 수행하였다. 촉매는 47mg 주입하였고 thermocouple를 촉매층에 설치하여 실제 반응 온도를 측정할 수 있도록 하였다. 촉매 반응을 진행하기 전에 5% H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 분위기에서 승온율 3.3°C/min으로 400°C까지 온도를 올려주어 환원 과정을 거쳤다. 환원이 끝난 뒤, 200°C까지 온도를 낮추고 반응가스(H<sub>2</sub>: 60.2%, N<sub>2</sub>: 19.8%, CH<sub>4</sub>: 1.0%, CO: 9.0%, CO<sub>2</sub>: 10.0%)를 흘려주면서 WGS 반응을 수행하였다. 반응가스의 H<sub>2</sub>O/(CH<sub>4</sub> + CO + CO<sub>2</sub>) 비는 2.0으로 고정하였다. 기체공간속도(GHSV: gas hourly space velocity)는 4551h<sup>-1</sup>로 수행하였다. 주입되는 H<sub>2</sub>O는 실린지 펌프를 이용하여 정량적으로 주입하였고 촉매 반응 전 히터(180°C)를 통과하면서 Steam이 생성되도록 하였다. 반응 후 가스는 냉각장치를 이용하여 수분을 제거하였다. 최종적으로 수분이 제거된 반응 후 가스는 On-line micro-gas chromatograph(Agilent 3000)를 이용하여 분석하였다. CO 전환율은 WGS 반응 후 배



**Fig. 1** XRD patterns of Pt-Na/CeO<sub>2</sub> catalysts with Na loading amount

출가스의 농도를 다음 식 (1)에 적용하여 계산하였다.

$$CO \text{ conversion} = \frac{F_{co,in} - F_{co,out}}{F_{co,in}} \quad (1)$$

촉매 안정도 테스트는 반응 온도 320°C에서 15시간동안 수행하였다.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 특성분석

Table 1에서는 Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 특성분석 결과를 나타내었다. Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 Na 첨가량이 증가함에 따라 BET 표면적이 감소하는 경향을 보였다. 1wt% Na를 첨가한 촉매는 가장 큰 BET 표면적 값을 나타내었다. Pt 결정 크기는 Na 첨가량이 증가함에 따라 1.5nm에서 4.0nm로 증가하였다. 그 결과, 분산도가 76.9%에서 28.0%까지 감소하였다. 특성분석 결과, Pt-1Na/CeO<sub>2</sub> 촉매가 가장 작은 결정크기와 높은 분산도를 나타내었다. Fig. 1은 Na를 첨가량에 따른 Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 XRD 패턴을 나타내었다.

Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 Na 첨가량에 상관없이 모두 형석형 구조(fluorite structure)를 나타내었다. 제조된 모든 촉매의 Pt 피크(Pt, PtO, PtO<sub>2</sub>)가 관찰되지 않았

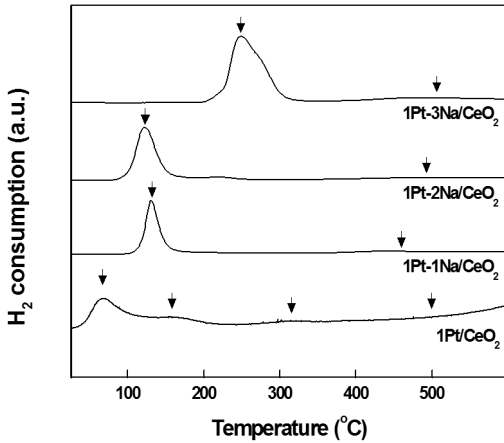


Fig. 2 TPR patterns of Pt/CeO<sub>2</sub> and Pt-Na/CeO<sub>2</sub> catalysts with Na loading amount

으며 Pt 결정크기가 매우 작은 것이 원인으로 판단된다. 이 결과는 제조된 모든 Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 높은 Pt 분산을 나타내며 CO 화학흡착분석 결과와 일치한다. Fig. 2는 Pt/CeO<sub>2</sub>와 Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 TPR 패턴을 나타내었다. Pt-1Na/CeO<sub>2</sub> 촉매와 Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 첫 번째 환원 피크가 131°C와 121°C에서 각각 확인되었다. Panagiotopoulou 등의 보고에 따르면 150°C 온도 부근의 환원피크는 PtO<sub>x</sub> 종의 환원을 나타내며 250°C 온도에서의 환원은 CeO<sub>2</sub>에 결합된 PtO<sub>x</sub> 종의 환원을 나타낸다<sup>10)</sup>.

특히, PtO<sub>x</sub> 종은 낮은 온도의 WGS 반응에서 촉매의 활성결정 짓는 활성 종으로 알려져 있다<sup>10)</sup>. 두 번째 환원 피크는 400°C 이상에서 시작되었으며 bulk CeO<sub>2</sub>의 환원을 나타낸다. Pt-3Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 경우, 약 250°C에서 주요 환원피크를 나타내어 대부분 CeO<sub>2</sub>와 결합된 PtO<sub>x</sub> 종이 환원된 것임을 알 수 있었다. 이와 달리, Pt/CeO<sub>2</sub> 촉매는 65°C, 156°C 그리고 314°C에서 3개의 매우 작은 환원피크가 관찰되었다. 각각의 환원 피크는 CeO<sub>2</sub> 표면에서 metallic Pt<sup>0</sup> 종의 환원, PtO<sub>x</sub> 종의 환원, CeO<sub>2</sub>에 결합된 PtO<sub>x</sub> 종의 환원을 나타낸다<sup>10)</sup>. 500 °C이상 에서는 bulk CeO<sub>2</sub>의 환원이 관찰되었다. TPR 분석 결과를 종합해보면 Na를 첨가한 Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 오직 PtO<sub>x</sub> 종의 환원만이

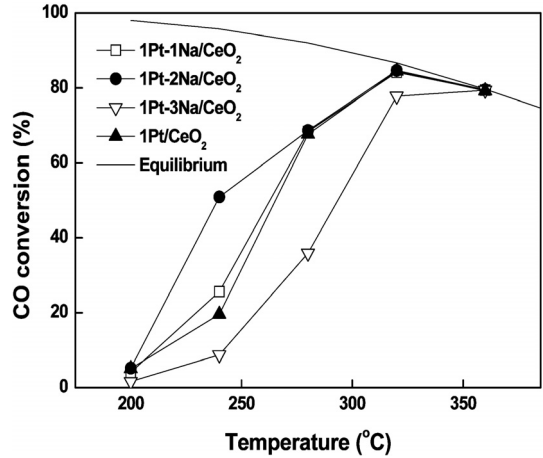


Fig. 3 CO conversion with reaction temperature over Pt/CeO<sub>2</sub> and Pt-Na/CeO<sub>2</sub> catalysts with Na loading amount ( $H_2O/(CH_4 + CO + CO_2) = 2.0$ ; GHSV = 45515 h<sup>-1</sup>)

관찰되었다. 반면, Pt/CeO<sub>2</sub>는 metallic Pt<sup>0</sup> 종의 환원과 PtO<sub>x</sub> 종의 환원이 모두 관찰되었다. 따라서, Pt/CeO<sub>2</sub> 촉매에 Na를 첨가함에 따라 metallic Pt<sup>0</sup> 종이 WGS 반응에서 활성 종으로 알려진 PtO<sub>x</sub> 종으로 전환되는 것을 확인하였다. Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 경우, Pt-1Na/CeO<sub>2</sub>와 Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 PtO<sub>x</sub> 종이 주로 분포하고 Pt-3Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 CeO<sub>2</sub>와 강하게 상호 결합된 PtO<sub>x</sub> 종이 대부분이다. 따라서, Pt-2Na/CeO<sub>2</sub>, Pt-1Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 강한 환원력에 기인한 높은 산소이동 및 저장능력으로 인해 Pt-3Na/CeO<sub>2</sub> 촉매보다 높은 활성을 보여줄 것으로 예상된다.

### 3.2 반응결과

일반적으로 대규모 상용 WGS 반응 공정에서의 GHSV는 3000h<sup>-1</sup>로 비교적 낮은 편이다. 본 연구에서는 상용 WGS 반응 공정의 GHSV 보다 약 15배 높은 GHSV = 45515h<sup>-1</sup>에서 반응을 수행하여 촉매 활성을 비교하였다. Fig. 3에서는 GHSV = 45515h<sup>-1</sup>에서 Pt/CeO<sub>2</sub> 촉매와 Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 CO 전환율을 나타내었다. 200°C에서는 제조된 모든 촉매가 낮은 활성을 나타내었다.

반응온도가 240°C일 때, Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매가 약

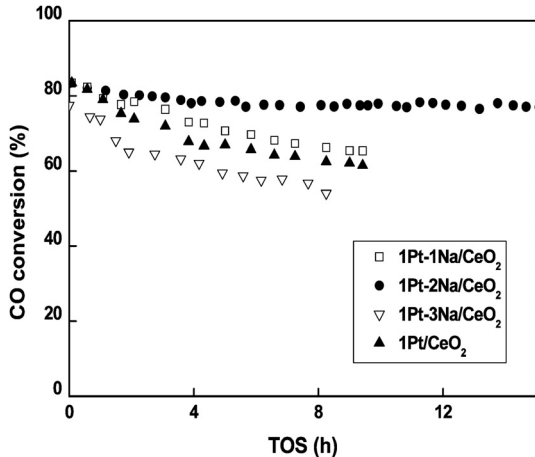


Fig. 4 CO conversion with time on stream over Pt/CeO<sub>2</sub> and Pt-Na/CeO<sub>2</sub> catalysts with Na loading amount ( $T = 320^{\circ}\text{C}$ ;  $\text{H}_2\text{O}/(\text{CH}_4 + \text{CO} + \text{CO}_2) = 2.0$ ;  $\text{GHSV} = 45515\text{h}^{-1}$ )

51% CO 전환율을 나타내어 제조된 촉매 중 가장 높은 촉매 성능을 나타내었다.  $280^{\circ}\text{C}$ 에서는 Pt-2Na/CeO<sub>2</sub>  $\approx$  Pt-1Na/CeO<sub>2</sub>  $\approx$  Pt/CeO<sub>2</sub> > Pt-3Na/CeO<sub>2</sub> 순서와 같이 CO 전환율이 나타났다. 반응온도  $320^{\circ}\text{C}$  이상에서는 제조된 모든 촉매가 열역학적 평형전환율과 유사한 CO 전환율을 나타내었다. Pt-3Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 경우, 모든 온도영역에서 낮은 CO 전환율을 나타내었다. 이것은 과량의 Na 첨가로 인해 Pt의 활성 표면이 줄어든 것이 원인으로 판단된다. 상기 WGS 반응결과는 TPR 분석 결과에서 나타난 환원 경향을 통해 설명할 수 있다. TPR 분석 결과에 따르면, Pt/CeO<sub>2</sub> 촉매에 1wt%, 2wt% Na를 첨가한 촉매는 metallic Pt<sup>0</sup> 종이 PtO<sub>x</sub> 종으로 전환되어 낮은 온도에서 WGS 활성이 강화되었다. 특히, Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 가장 낮은 온도에서 PtO<sub>x</sub> 종의 환원이 시작되어 높은 환원능력을 나타냈다. 그 결과, CeO<sub>2</sub>의 증진된 산소이동 및 저장 능력이 산화-환원( $\text{Ce}^{4+} \leftrightarrow \text{Ce}^{3+}$ )에 의한 이동성 산소(Mobile Oxygen)의 공급( $\text{CO} + \text{O}^* \rightarrow \text{CO}_2$ )을 가속화시켜 낮은 온도에서 높은 CO 전환율을 나타낼 수 있었다. 반면 Pt-3Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 CeO<sub>2</sub>와 강하게 상호 결합된 PtO<sub>x</sub> 종의 환원이 주로 관찰되어 모든 온도 영역에서 상대적으로 낮은 활성을 나타내었다. 이 결과는 Panagiotopoulou 등이 보고한 WGS 반응

에서 귀금속 촉매의 활성화와 산화된 금속의 환원특성이 밀접한 연관이 있다는 주장과 일치한다<sup>8)</sup>.

Fig. 4에서는 Pt-Na/CeO<sub>2</sub>(Na = 1, 2, 3wt%) 촉매의 안정성을 검증하기 위해  $320^{\circ}\text{C}$ 에서 15시간 동안 WGS 반응을 수행하였다. 반응시작 직후 활성은 Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> (83%)  $\approx$  Pt-1Na/CeO<sub>2</sub>(83%) > Pt/CeO<sub>2</sub>(83%) > Pt-3Na/CeO<sub>2</sub>(77%)과 같이 나타났다. Pt-3Na/CeO<sub>2</sub> 촉매의 경우, WGS 반응 시작과 동시에 촉매가 급격히 비활성화가 일어나 반응 시작 8시간 후에는 CO 전환율이 54%로 감소하였다. Pt-1Na/CeO<sub>2</sub> 촉매와 Pt/CeO<sub>2</sub> 촉매는 반응을 9시간동안 WGS 반응을 수행 한 후에는 CO 전환율이 각각 65%와 62%로 감소하였다. 반면, Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 15시간이 지난 후에도 80% CO 전환율을 나타내어 촉매 비활성화가 거의 일어나지 않았다. Zhu 등은 Pt과 NaO<sub>x</sub>간의 강한 상호작용은 WGS 반응에서 활성을 증진시킬 뿐만 아니라 Pt 입자의 소결을 억제한다고 보고하였다<sup>11)</sup>. 따라서, 2wt% Na를 첨가한 촉매는 촉매-조촉매간의 강한 상호 작용(strong metal-promoter interaction)으로 인해 높은 안정성을 나타낸 것으로 판단된다. 결과적으로, Na 첨가로 인해 Pt/CeO<sub>2</sub> 촉매의 활성뿐만 아니라 안정성을 향상시킬 수 있었으며 최적 Na 첨가량은 2wt%로 나타났다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 WGS 반응용 Pt-Na/CeO<sub>2</sub> 촉매를 제조하여 Na 첨가량이 촉매 활성화에 미치는 영향을 연구하였다. 특성 분석 결과, Na 첨가량이 증가함에 따라 BET 표면적과 분산도가 감소하여 Pt-1Na/CeO<sub>2</sub> 촉매가 가장 작은 Pt 결정크기와 높은 분산도를 나타내었다. 한편 Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매가 가장 낮은 온도에서 PtO<sub>x</sub> 종의 환원이 시작되어 높은 환원성과 산소이동 및 저장능력을 지닌 촉매로 확인되었다. WGS 반응 결과, 가혹한 조건( $240^{\circ}\text{C}$ ,  $\text{GHSV} = 45515\text{h}^{-1}$ )에서 Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매가 제조된 모든 촉매와 비교하여 약 2.4 배 높은 CO 전환율을 나타내었다. 이것은 높은 환원능력으로 인해 산소저장 및 이동능력이 증진되어

나타난 결과이다. 더불어, Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 15시간이 지난 후에도 촉매 비활성화가 거의 일어나지 않아 낮은 온도에서 높은 활성뿐만 아니라 높은 안정성도 가진 것으로 나타났다. 결과적으로 Pt-2Na/CeO<sub>2</sub> 촉매는 Single stage WGS 반응용 촉매로서 유망한 촉매임을 입증하였다.

## 후 기

본 연구는 2011년도 지식경제부 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행한 신재생에너지융합원천기술개발사업 연구 과제입니다(2011T100200273). 이 논문은 환경부의 폐기물에너지화자원화 전문인력양성사업으로 지원되었습니다. 이 논문은 2010년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업입니다(2010-0002521).

## 참 고 문 헌

1. D.-J. Seo, W.-L. Yoon, K.-S. Kang, J.-W. Kim, "Patent Trend for Hydrogen Production Technology by Steam Reforming of Natural Gas", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 18, No. 4, 2007, pp. 464-480.
2. Y. T. Seo, D. J. Seo, J. H. Jeong, and W. L. Yoon, "Development of compact fuel processor for 2 kW class residential PEMFCs", *J. Power Sources*, Vol. 163, No. S1, 2006, pp. 119-124.
3. P. Panagiotopoulou, and D. I. Kondarides, "Effect of the nature of the support on the catalytic performance of noble metal catalysts for the water-gas shift reaction", *Catal. Today*, Vol. 112, No. 1-4, 2006, pp. 49-52.
4. H.-S. Roh, D.-W. Jeong, K.-S. Kim, I.-H. Eum, K. Y. Koo, and W. L. Yoon, "Single stage water-gas shift reaction over supported Pt catalysts", *Catal. Lett.*, Vol. 141, No. 1, 2011, pp. 95-99.
5. D.-W. Jeong, H. S. Potdar, K.-S. Kim, and H.-S. Roh, "The effect of sodium in activity enhancement of nano-sized Pt/CeO<sub>2</sub> catalyst for water gas shift reaction at low temperature", *Bull. Korean Chem. Soc.*, Vol. 32, No. 10, 2011, pp. 3557-3558.
6. H. S. Potdar, D.-W. Jeong, K.-S. Kim, and H.-S. Roh, "Synthesis of highly active nano-sized Pt/CeO<sub>2</sub> catalyst via a cerium hydroxy carbonate precursor for water gas shift reaction", *Catal. Lett.*, Vol. 141, No. 9, 2011, pp. 1268-1274.
7. H.-S. Roh, H. S. Potdar, D.-W. Jeong, K.-S. Kim, J.-O. Shim, W.-J. Jang, K. Y. Koo, and W. L. Yoon, "Synthesis of highly active nano-sized (1 wt.% Pt/CeO<sub>2</sub>) catalyst for water gas shift reaction in medium temperature application", *Catal. Today*, Vol. 185, No. 1, 2012, pp. 113-118.
8. P. Panagiotopoulou, and D. I. Kondarides, "Effect of morphological characteristics of TiO<sub>2</sub>-supported noble metal catalysts on their activity for the water-gas shift reaction", *J. Catal.*, Vol. 225, No. 2, 2004, pp. 327-336.
9. J. H. Pazmino, M. Shekhar, W. Damion Williams, M. Cem Akatay, J. T. Miller, W. Nicholas Delgass, and F. H. Ribeiro, "Metallic Pt as active sites for the water-gas shift reaction on alkali-promoted supported catalysts", *J. Catal.*, Vol. 286, 2012, pp. 279-286.
10. P. Panagiotopoulou, J. Papavasiliou, G. Avgouropoulos, T. Ioannides, and D. I. Kondarides, "Water-gas shift activity of doped Pt/CeO<sub>2</sub> catalysts", *Chem. Eng. J.*, Vol. 134, No 1-3, 2007, pp. 16-22.
11. X. Zhu, M. Shen, L.L. Lobban, R.G. Mallinson, "Structural effects of Na promotion for high water gas shift activity on Pt-Na/TiO<sub>2</sub>", *J. Cat.*, Vol. 278, No. 1, 2011, pp. 123-132.