

МАТЕМАТИЧНА МОДЕЛЬ ОКИСНЕННЯ ЧАДНОГО ГАЗУ: ВПЛИВ СТРУКТУРИ ПОВЕРХНІ КАТАЛІЗАТОРА

Ірина Рижа

Національний університет “Львівська політехніка”, iri.saj@gmail.com

Розглянуто математичну модель реакційно-дифузійних процесів каталітичного окиснення чадного газу (CO) на поверхні платиного (Pt) каталізатора на основі узагальнення моделі Крішер-Айсвірт-Ертла (КЕЕ) [1], яка враховує особливості механізму Ленгмюра-Гіншелвуда [2] проходження хімічної реакції. Проведено числовий аналіз моделі на поверхні Pt(111), яка, на відміну від грані (110), є стійкою у структурі (1×1) і під дією адсорбованого CO не перебудовується до нових конфігурацій [3]. Поверхня каталізатора вважається плоскою із заданою декартовою системою координат XOY. Температура каталізатора T є сталою і виступає зовнішнім параметром моделі. Система кінетичних рівнянь, які описують зміну в часі поверхневих покриттів адсорбованих CO (u) та кисню O (v) на поверхні каталізатора має вигляд [4]:

$$\frac{\partial u}{\partial t} = p_{co} \kappa_u s_u \left(1 - \left(u/u_{sat}\right)^3\right) - k_1 uv - k_2 u + D_x \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 u}{\partial y^2}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} = p_{o_2} \kappa_v s_v \left(1 - u/u_{sat} - v/v_{sat}\right)^2 - k_1 uv. \quad (2)$$

Рівняння (1)-(2) складають двовимірну математичну модель процесу окиснення чадного газу на поверхні платиного каталізатора. Величини параметрів, що використовувалися в числових розрахунках, наведені в [4].

Для системи (1)-(2) проаналізовано питання стійкості стаціонарних розв'язків (u^s, v^s) . Показано, що для довільних парціальних тисків p_{co} і

$p_{o_2} \sim 10^{-5}$ тор система (1)-(2) є стійкою, а тому області автоколивного режиму (спричиненого нестійкістю Хопфа) для заданих параметрів моделі не існує. Умови виникнення бифуркації Тюрінга не виконуються, тобто система залишається стійкою за наявності дифузійних ефектів.

Отримано експериментально спостережувану на Pt(111) [3] бістабільну поведінку каталітичної реакції окиснення CO. Система переходить від

Конференція молодих учених «Підстригачівські читання – 2019», 27–29 травня 2019 р., Львів

стійкого стану з високою каталітичною активністю, коли на поверхні каталізатора перебувають адсорбовані молекули CO і атоми кисню, до іншого стійкого стану з низькою каталітичною активністю, коли адсорбований CO блокує адсорбцію кисню і величина поверхневого покриття O падає.

Перехід у стаціонарний режим супроводжується зменшенням виходу реакції, тому при практичному конструюванні поверхні каталізатора слід використовувати кристаліти з робочою гранню (110), оскільки на останній можливий автоколивний режим хімічної реакції окиснення CO.

1. *Krischer K., Eiswirth M., Ertl G.* Oscillatory CO oxidation on Pt(110): Modeling of temporal self-organization // *J. Chem. Phys.* – 1992. – Vol. 96, no. 12. – P. 9161-9172.
2. *Langmuir I.* Heterogeneous reactions. Chemical reactions on surfaces // *Trans. Faraday Soc.* – 1922. – Vol. 17. – P. 607–620.
3. *Imbihl R., Ertl G.* Oscillatory kinetics in heterogeneous catalysis // *Chem. Rev.* – 1995. – Vol. 95, no. 3. – P. 697–733.
4. *Kostrobij P., Ryzha I., Markovych B.* Mathematical model of carbon monoxide oxidation: influence of the catalyst surface structure // *Math. Model. Comput.* – 2018. – Vol. 5, no. 2. – P. 158–168.
5. *Ehsasi M., Matloch M., Frank O., Block J. H.* Steady and nonsteady rates of reaction in a heterogeneously catalyzed reaction: Oxidation of CO on platinum, experiments and simulations. // *J. Chem. Phys.* – 1989. – Vol. 91, no. 8. – P. 4949–4960.

MATHEMATICAL MODEL FOR CARBON MONOXIDE OXIDATION: INFLUENCE OF THE CATALYST SURFACE STRUCTURE

A mathematical model of reaction-diffusion processes is built for the Langmuir-Hinshelwood mechanism on the surface of metal catalyst. It takes into account the peculiarities of occurrence of oxidation reaction on platinum surface. Mathematical modeling of CO oxidation process was carried out for Pt(111) surface, of which, unlike (110) facet, the structural phase transition is not characteristic. Stability regions of reaction and conditions for Hopf and Turing instabilities to arise were investigated. It was established that system is stable at partial pressures $\sim 10^{-5}$ Torr. Therefore, the region of auto-oscillatory mode does not exist for the given model parameters. The qualitative agreement of results for numerical modeling with experimental data for CO oxidation reaction on Pt(111) was obtained.