

포메이트(HCOO^-)의 가역적 탈수소화 반응
메커니즘: 밀도범함수이론 이해

임동희[†], 신동윤¹, 김민수¹, 권정안¹, 윤창원²

충북대학교; ¹충북대학교 환경공학과;

²한국과학기술연구원 연료전지연구센터

(limkr@cbnu.ac.kr[†])

본 연구에서는 밀도범함수이론(density functional theory, DFT) 계산을 통하여 질소로 도핑된 그래핀 지지체의 팔라듐(Pd) 나노입자 표면에서 발생하는 포메이트(formate)의 가역적 탈수소화 및 수소화 반응 경로 및 반응 기작에 대한 해석을 수행하였다. 이를 위해, 포메이트의 음이온 효과를 적절히 모사하기 위한 DFT 모델 시스템을 구축하고 이를 바탕으로 포메이트의 탈수소화 및 수소화 반응 경로를 분석하였다. 결과로서, 개미산의 탈수소화 반응은 CO_2 와 H_2 가 생성되는 반면, 포메이트에서는 HCO_3^- 와 H_2 가 생성됨을 확인하였다. 전체반응 제한 단계는 반응경로 중 수소가 탈착되는 단계이며, 이로써 수소원자의 흡착강도가 탈수소화 반응 효율을 예측할 수 있는 지표로서 사용될 수 있음을 제안하였다. 또한, 질소가 그래핀에 도핑되는 양이 적절할 때 팔라듐 촉매에서의 포메이트 탈수소화 반응이 가장 효율적임을 알 수 있었는데, 질소 도핑양이 과도하지 않고 적절할 때 팔라듐 촉매의 d-band center와 스핀밀도가 최소로 되며 이로써 수소원자의 흡착강도가 작아지게 되며, 결과적으로 탈수소화 반응 제한단계의 에너지벽이 낮아질 수 있음을 증명하였다.