

Хаотические колебания в простой гетерогенной каталитической реакции

© Кольцов*⁺ Николай Иванович и Федотов Владислав Харитонович

Кафедра физической химии и высокомолекулярных соединений. Чувашский государственный университет им. И.Н. Ульянова. Московский пр., 15, г. Чебоксары, 428015. Чувашская республика. Россия. Тел.: (8352) 45-24-68. E-mail: koltsovni@mail.ru

*Ведущий направление; ⁺Поддерживающий переписку

Ключевые слова: гетерогенно-каталитическая реакция, механизм, стадийная схема, закон действующих масс, нестационарная кинетика, хаотические колебания.

Аннотация

Для гетерогенных каталитических реакций окисления водорода, монооксида углерода и других реакций экспериментально обнаружены нерегулярные и хаотические колебания концентраций реагентов и скорости реакции во времени. Для описания хаотических колебаний в гетерогенных каталитических реакциях применяются различные подходы и механизмы, использующие усложняющие предположения: различные варианты отличной от закона действующих масс неидеальной кинетики; механизмы многоцентровой адсорбции с участием нескольких типов активных центров катализатора; механизмы, включающие "буферные" стадии; механизмы, учитывающие взаимодействие веществ в адсорбированном состоянии и их растворение в приповерхностном слое катализатора; параллельное протекание реакции на разных типах центров катализатора не связанных между собой нескольких каталитических осцилляторов (сложение колебаний); механизмы, учитывающие случайные возмущения (индуцированный шумом хаос); феноменологические модели с использованием нестандартных кинетических законов и необычных модельных конструкций ("резервуаров"); различные сочетания перечисленных подходов. Таким образом, до настоящего времени не найдены механизмы, способные описывать хаотические колебания гетерогенно-каталитических реакций в безградиентных химических реакторах в рамках моделей идеального адсорбированного слоя и закона действующих масс. В связи с этим представляет интерес описать сложное динамическое поведение гетерогенно-каталитических реакций простыми механизмами без усложняющих предположений. Особую роль в возникновении колебательных процессов играют автокаталитические стадии, способные при минимальной молекулярности порождать неустойчивые режимы в простых динамических системах. В данной статье приведена простейшая четырехстадийная схема с двумя автокаталитическими стадиями и установлена возможность описания с её помощью хаотических колебаний в гетерогенно-каталитических реакциях в рамках идеального адсорбированного слоя и закона действующих масс. Хаотичность колебаний подтверждена численными расчетами кинетической модели и экспонент Ляпунова.