

밀리미터 스케일의 이상 분해 반응기에 대한 실험적 연구

조정훈*, 이대훈†, 권세진**

(2003년 4월 2일 접수, 2004년 1월 26일 심사완료)

Experimental Study on Millimeter Scale Two Phase Catalytic Reactor

Chunghun Cho, Dae Hoon Lee and Sejin Kwon

Key Words : Catalyst(촉매), Reactor(반응기), Millimeter Scale(밀리미터 크기), Two-Phase(이상), Experiment(실험)

Abstract

Experiment study on a down scaled two-phase catalytic reactor is presented. As a preliminary step for the development of catalytic reactor, nano-particulate catalyst was prepared. Perovskite $La_{0.8}Sr_{0.2}CoO_3$ is chosen and synthesized as a catalyst considering superior catalytic performance in reduction and oxidation process where oxygen is involved among the reagent. Reactor that has a scale of $2 \times 10 \times 25$ mm was made by machining of Al block as a layered structure considering further extension to micro-machining. Hydrogen peroxide of 70wt% was adopted as reactant and was provided to the reactor loaded with 1.5 g of catalyst. Reactant flow rate was varied by precision pump with a range of 0.15cc/min to 17.2cc/min. Temperature distribution within reactor was recorded by 3 thermocouples and total amount of liquid product was measured. Temperature distribution and factors that affect temperature were observed and relation between temperature distribution and production rate was also analyzed. Relative time scale plays a significant role in the performance of the reactor. To obtain steady state operation, appropriate ratio of flow rate, catalyst mass and reactor geometry is required and furthermore to get more efficient production rate temperature distribution should be evenly distributed. The database obtained by the experiment will be used as a design parameter for micro reactor.

기호설명

A : 면적
 l : 길이
 t : 시간
 Q : 유량
 v : 속도
 η : 효율성
 ρ : 밀도
 ω : 화학반응률
 하첨자
 A : 면적
 c : 화학반응 특성 값

f : 유동 특성 값
 r : 유동스케일 대 화학반응 스케일 비
 상첨자
 * : 표준화된 값

1. 서론

다양한 기능의 마이크로 시스템의 개발과 함께 시스템의 규격 및 요구 동력 조건에 맞는 동력 장치의 개발이 기술적 과제로 등장하게 되었다. 이러한 기술적 요구하에 동력원으로 사용할 수 있는 다양한 개념의 열유체 장치들에 대해 초 소형화를 이루기 위한 연구들이 진행되어지고 있다. 이러한 열유체 장치로는 마이크로 엔진,⁽¹⁾ 마이크로 반응기,⁽²⁾ 마이크로 연료전지,⁽³⁾ 마이크로 열엔진⁽⁴⁾ 등이 있다. 이 중 마이크로 반응기의 경우 대형의 반응기가 가지고 있는 경제적, 기술적, 환경적인

* 한국과학기술원 대학원 항공우주공학전공

**회원, 한국과학기술원 항공우주공학전공

† 책임저자, 회원, 한국과학기술원 정보전자연구소

E-mail : eternal@kaist.ac.kr

TEL : (042)869-3786 FAX : (042) 869-3710

위험성을 줄여줄 수 있는 반응기 자체로서의 기능뿐만 아니라 mm 크기에서의 열원으로도 그 가능성을 주목 받게 되었다. 이러한 배경 하에 마이크로 가공 기술을 이용한 다양한 형태의 반응기들이 개발되었거나 개발 중에 있다.^(5,6)

시스템 차원의 초소형 반응기를 제작하기 위해서는 우선 요소기술에 해당하는 촉매 제작 및 현상적 특성에 대한 이해가 요구된다. 특별히 반응기 크기가 작아질수록 연료의 부피와 에너지 밀도에 대한 고려가 필요하므로 액상의 물질과 관련된 반응에 대한 필요가 증가하게 된다. 더구나 최근 주목 받고 있는 생체 물질을 이용한 초소형 반응기의 경우 밀리미터 혹은 수십에서 수백 마이크로미터의 크기를 가지는 공간에서의 액상의 반응에 대한 이해가 필요하다.

본 연구에서는 초소형 반응기 개발의 기초 단계로서 나노 크기를 가지는 입자상의 촉매를 개발하고 이를 이용해 밀리미터 크기의 반응기 내에서 액상의 과산화 수소가 분해되는 이상 유동 반응에 대한 실험을 수행하고 그 특성을 파악하였다. 이러한 연구를 바탕으로 실제 MEMS 가공 기술을 이용한 마이크로 반응기의 개발에 대한 기반이 마련될 수 있을 것으로 기대된다.

2. 실험

2.1 페롭스카이트 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{CoO}_3$ 의 합성

본 연구에서는 초소형 반응기에 적합한 산화 환원 촉매로 페롭스카이트 계열의 $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{CoO}_3$ 을 선정하였다. 페롭스카이트 물질은 ABO_3 타입의 화합물로 (A, B 는 각각 2 가와 4 가의 양전위를 가지는 금속) 격자구조상의 특징으로 인해 영구적인 다이폴을 가지는 강자성 물질로 다양한 물리적 특성으로 인해 여러 분야의 응용이 연구되고 있는 물질이다. 이 중 LaCoO_3 은 전기 촉매적 (electrocatalytic) 특성이 우수하며 특히 산소가 포함되는 산화 환원 반응에서 높은 이온 전도성을 가지고 있다.⁽⁷⁾ 사용된 촉매는 전기전도도를 최적화 하기 위해 일부의 La 을 Sr 으로 도핑한 형태로 합성하였다. 이 때 촉매의 격자 구조는 Fig. 1 과 같은 형태를 가지게 된다.⁽⁸⁾ 촉매의 합성은 PAA(Poly Acrylic Acid)를 이용한 개선된 졸-겔 법을 이용하였다.⁽⁹⁾ 합성과정은 다음과 같다. 우선 적정량의 금속 질화물, $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 을 도핑 비와 농도를 고려해 0.56M, 0.14M, 0.7M 혼합 용액으로 만들어 전체적으로 1.4M 의 혼합물이 되게 한다.

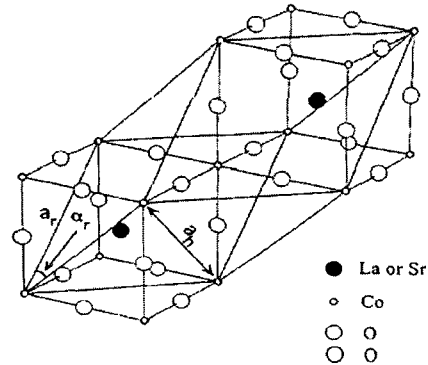


Fig. 1 Lattice structure of $\text{La}_x\text{Sr}_{1-x}\text{CoO}_3$

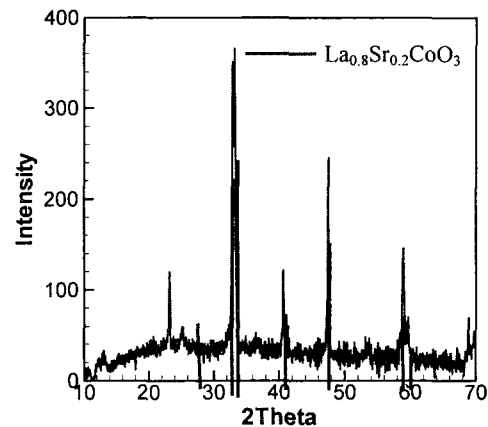


Fig. 2 XRD result of prepared catalyst powder

이렇게 만들어진 혼합물에 PAA(Poly Acrylic Acid)를 혼합하면 투명한 졸 상태가 된다. PAA 의 양은 합성되는 촉매의 크기와 금속 분자간의 결합성에 영향을 주는 인자가 된다. 실험에서는 0.07M~0.7M 범위에 대해 실험을 수행하였다. 얻어진 졸 상태의 혼합물은 건조과정을 통해 점도가 높은 겔 상태가 되고 로에서 하소(calcinations)를 통해 촉매 입자를 합성한다. 이 때 하소 온도는 400°C 로 한다. 하소과정에서 유기 용매가 사라지고 금속간의 결합이 형성되어 페롭스카이트 촉매 분말이 형성되게 된다.

제작된 촉매의 XRD (X-ray Diffractometer) 결과는 Fig. 2 와 같다. 그림을 통해서 0.2 의 Sr 도핑율과 3 방정(Rhombohedral) 격자 구조를 확인할 수 있다. 분말 상태로 합성된 촉매는 동전 형태로 압착(Pelletize) 한 후 분쇄 하여 액상의 반응물과 접촉할 때 반응기 내에 잔존 할 수 있도록 처리한다.

2.2 실험 장치

밀리미터 스케일의 이상 촉매 분해 반응을 관찰하기 위해 Al 블록으로 반응기를 제작하였다. 제작된 반응기의 형상은 Fig. 3 과 같다. 추후 반도

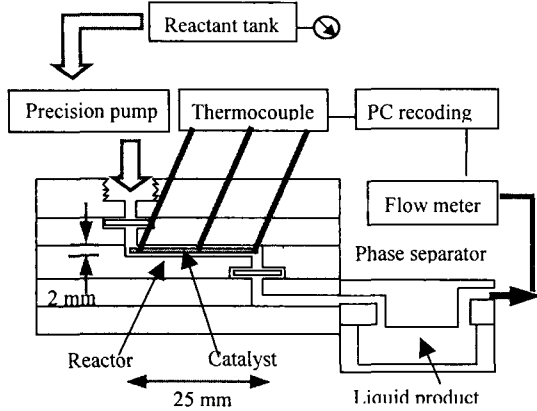
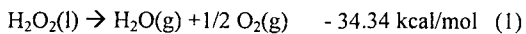


Fig. 3 Schematic of experimental apparatus

체 공정을 이용한 적층 구조로 적용하기 위해 전체적인 구조는 판형의 Al 블록을 적층 해서 제작 되도록 설계하였다. 반응기 입출력 단에는 촉매의 유출을 막기 위해 세라믹 울로 스크린을 설치하였고 1.5g의 촉매를 25×10×2 mm 크기의 반응기 내에 장착한다. 반응기 측면으로 3개의 열전대가 일정한 거리를 두고 배치되어 반응기 길이방향에 따른 온도의 변화를 측정하고 기상과 액상이 혼합된 생성물은 반응기 끝단에 연결된 상 분리기를 통과한 후 기체는 유량계를 통해 유량을 측정하고 액상은 상 분리기에 잔존하는 양을 측정한다.

이상 촉매 반응을 얻을 수 있는 화학반응은 촉매 존재 하에서의 과산화 수소의 이상 분해반응을 선택하였다. 과산화 수소의 분해반응은 단일 추진제 로켓의 연료로 사용될 수 있는 발열반응 특성을 가지고 있으므로 형상 축소된 반응기의 열 특성을 파악하는 데 유리할 것으로 판단되었다. 촉매 존재 하에서의 전체적인 화학 반응은 아래와 같다.⁽¹⁰⁾



고농도 상태의 폭발성으로 인해 일반적으로 상용화된 과산화 수소는 40wt% 정도의 그레이드를 가진다. 본 실험에서는 열 특성을 관찰하기 위하여 70wt% 고농도로 농축된 과산화 수소를 사용하였다. 과산화 수소는 미량을 공급할 수 있는 정밀 펌프에 의해 반응기로 공급되어진다.

일반적으로 과산화 수소의 수용액인 경우 액상의 반응물이 반응기로 들어갈 때 가능한 생성물은 액상의 물과 기상의 수증기, 액상 혹은 기상의 과산화 수소 그리고 기상의 산소이다. 각각이 차지하는 질량 분율은 반응물의 농도, 반응기 온도, 촉매에 의한 반응성 등에 의해 결정된다.

반응기 온도가 반응기 성능에 미치는 영향을 알아보기 위해 반응기 벽면 온도를 305K, 355K 두 조건으로 유지하면서 실험을 수행하였다. 고온 상태의 반응기를 유지하기 위해 물중탕 상태로 가열하면서 반응기 주변 온도를 유지하고 벽면에 부착된 열전대를 통해 반응기 온도를 유지할 수 있도록 실험을 수행하였다.

2.3 반응기내 이상유동 현상

이상 유동 반응기의 경우 기상과 액상의 상대적인 양에 따라 반응기 내의 유동의 형태가 달라진다.⁽¹¹⁾ 기상과 액상이 반응기 스케일에 비해 공히 작은 양일 경우 반응기 내의 압력저하는 기상 반응기와 큰 차이가 없지만 상대적으로 액상이 많아지게 되면 반복적인 액상 덩어리(alternate slug)가 발생해서 반응기 내의 비정상 상태를 유도하게 되고 압력 저하를 높게 된다. 전체적으로 이상 유동 반응기에서의 시간 스케일은 유동 스케일과 화학반응 스케일로 구분할 수가 있다. 이들 두 시간 스케일의 비로 이상 유동 특성을 살펴볼 수 있게 된다. 반응기내로 유입되는 반응물의 유량과 반응기의 형상, 즉 반응기의 길이 스케일과 단면적으로부터 유동의 시간 스케일을 구할 수 있다. 본 실험에 사용된 것과 같이 촉매가 충전된 형태의 경우 실제 반응물의 유동이 차지하는 단면적을 고려해서 시간 스케일을 유량 대 단면적 속도의 비와 특성 길이로부터 구할 수가 있다.

$$v^* = \frac{Q}{\eta_A A}, \quad v^* t_f^* = l \quad (2)$$

$$t_f^* = \frac{l}{v^*} = \frac{l \eta_A A}{Q} \quad (3)$$

한편 화학 반응 시간 스케일은 촉매의 특성으로 대표 생성물과 반응 생성물의 비로부터 구해지며 아래와 같이 표현할 수 있다.

$$t_c^* = \frac{\rho}{\omega} \omega^* \quad (4)$$

위 식 (3) 과 (4)를 고려할 때 유동 시간 스케일과 화학반응 시간 스케일의 상대적인 비는 아래 식 (5)와 같이 구해진다.

$$\eta_c = \frac{t_c^*}{t_f^*} = \eta_r \frac{Q}{\omega} \quad (5)$$

이 때 화학반응에서 지배적인 시간 스케일에 따라 즉 η_c 가 1 보다 클 때와 작을 때 현상이 변

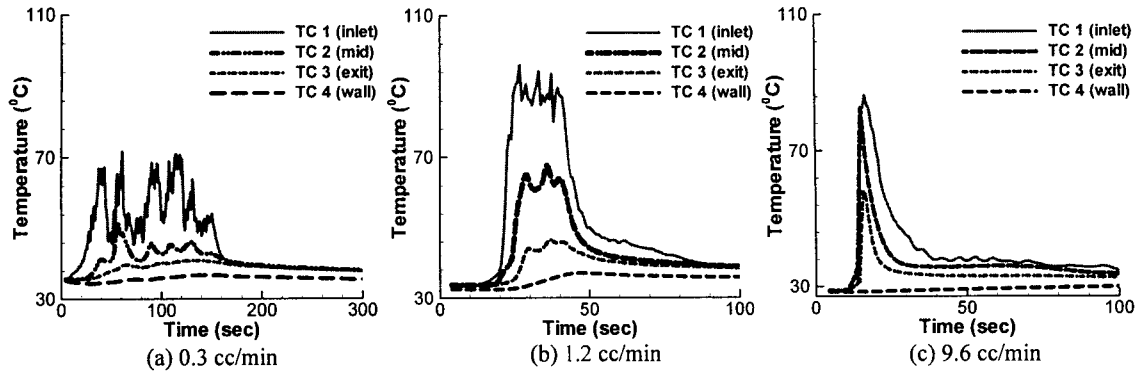


Fig. 4 Temperature distribution within reactor following each reactant feed rate

화하게 된다. 본 실험의 경우 유효 면적에 대한 비 η_A 를 0.05 가정하고 미량 펌프에 의해 반응기에 공급된 반응물의 유량 (0.15cc/min ~ 19.2cc/min) 을 고려해 볼 때 대략 0.1~10 초 정도의 시간 스케일을 가진다. 한편 촉매 합성 반응물을 확인 하기 위한 기초 실험의 결과를 토대로 반응기에 공급된 0.9g 의 반응물에 대한 화학 반응 시간은 대략 0.4 초 정도의 크기를 가진다. 이러한 상대적인 시간 스케일의 차이는 결과에서 제시될 바와 같이 반응기내 온도 분포와 같은 특성에 영향을 미치게 된다. 반응기에서 유동과 화학반응의 균형으로 정상 상태의 거동을 얻을 수 있는 구간은 반응기 형상이나 촉매량 등에 영향을 받으며 본 실험의 경우 초기 온도 305K 조건에서는 대략 0.9~3cc/min 유량 범위에서 정상 상태로 판단할 수 있다.

3. 결과

3.1 온도분포

반응기내로 유입되는 반응물을 총량 0.6cc 로 고정시킨 상태에서 유량을 변화시켜 가면서 관찰하였다. 0.6cc 의 반응물을 4 분에서 2 초로 시간을 변화시켜 가면서 관찰하였다. 이 때 반응기내 온도 분포는 상대적인 유동 시간 스케일과 화학반응 스케일에 따라 정상, 비정상 상태의 변화를 보여 준다. 각 유량에 따른 결과인 Fig. 4 는 그 차이를 잘 보여준다. Fig. 4(a)는 상대적으로 유동 시간 스케일이 커서 비정상 상태의 액상 덩어리가 형성된 결과를 보여 준다. 이 경우 액상 덩어리가 기상의 생성물 유동의 흐름을 저지하게 되고 결과적으로 부분적으로 높아진 압력이 형성되고 이 압력이 액상 덩어리를 밀어내는 식의 유동 패턴이 반복적으로 일어나 반응기 내의 온도 요동 범위가 큰 값을 가지는 것을 알 수 있다. Fig. 4(b)의 경우 유동 시간 스케일과 화학반응 시간 스케일이 유사한 범위

에 있어서 어느 정도 정상 상태에 가까운 온도 변화를 보이는 것을 확인할 수 있다. Fig. 4(c)의 경우 상대적으로 화학 반응의 시간 스케일이 커서 유동이 충분한 화학 반응을 일으키기 전에 반응기 영역을 지나가 버리게 되는 결과를 보여 주고 있다. 이 경우 초기에 최대 온도 값에 도달하는 시간이 반응기 입력 단보다 후방에서 더 짧게 되는 현상이 관찰된다.

정상 상태 반응을 얻을 수 있는 반응물 유량 범위에서 정상상태가 유지되는 시간동안의 반응기내 온도 분포가 Fig. 5 에 나와 있다. 일반적인 기상 반응기의 경우 입력단을 조금 지난 영역에서 최고 온도가 발생하는 것에 비해 전반적으로 반응기 입력단 부근에서 가장 활발한 화학 반응이 발생하는 것을 확인할 수 있다. 유량이 증가할수록 상대적으로 반응기 중앙부의 온도가 크게 증가하는 것을 알 수 있는 데 이 것은 활발하게 반응을 일으키는 영역이 유량의 증가와 함께 확대될 뿐 아니라 후방으로 이동되어지는 것을 의미한다.

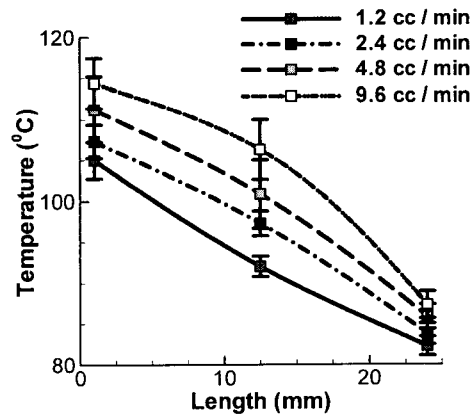


Fig. 5 Temperature distribution within reactor in each flow rate condition ($T_w=355K$)

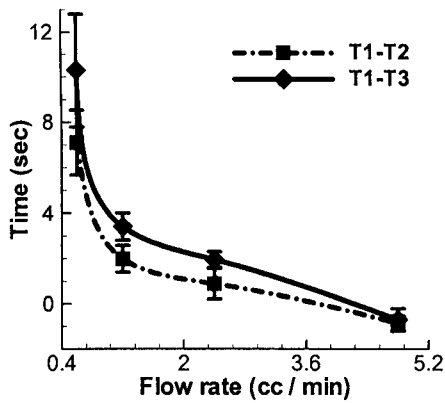


Fig. 6 Time gap between the points of measurements which is required to reach the steady state operation of the reactor

반응물을 주입한 후 반응기 내에서 최고 온도에 도달하는 시간은 앞서 말한 시간 스케일의 영향을 받는다. Fig. 6 에 나와 있는 바와 같이 유량이 작을 때 상대적인 유동 시간 스케일이 커져서 화학 반응이 지배적인 현상이 되면 반응기 입력단 부근에서 촉매 반응이 활발하게 발생한다. 이로 인해 상대적으로 반응기 중앙부가 정상상태 최고 온도에 도달하기까지는 시간이 더 필요하게 된다. 하지만 유량이 증가하면서 이 시간 차이가 점점 줄어들게 되고 특정한 값 이상이 되면 이 차이가 역전되게 된다. 즉 반응기 중앙부가 더 일찍 최고 온도에 도달하게 된다. 이러한 결과는 반응기 설계에 있어 반응기 내에 장착 되는 촉매의 반응물과 사용하는 반응물의 유량 범위가 반응기의 길이 스케일과 어떠한 상관관계를 가져야 하는 가에 대한 정보를 제공해 준다. 효율적인 반응기 설계를 위해서는 반응기 스케일에 따른 촉매량과 반응량에 대한 실험적 설계 파라미터가 필요하기 때문에 이러한 경험과 결과의 축적이 필요하다. 더구나 반응기가 작아져서 cm 혹은 mm 크기로 내려가게 되면 기존의 반응기 보다 훨씬 큰 온도 구배를 가지게 되므로 반응기 설계 및 제작 시에 열손실을 비롯해 반응기 열 특성에 대한 실험적 이해가 요구된다.

3.2 촉매 반응률

유량 조건을 변화시킨 각 실험 조건에서 반응기를 통해 얻어진 생성물 중 상 분리기에 의해 포집된 액상의 반응물의 질량을 측정하였다. 305K 초기 온도 조건에서 얻어진 결과는 Fig. 7 과 같다. 액상의 생성물이 작을수록 기상의 생성물 즉 원하는 반응이 많이 일어난 것이며 유량이 커졌을 때

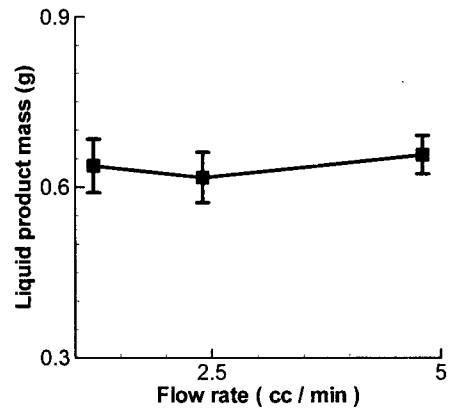


Fig. 7 Liquid product mass in each flow rate condition ($T_w=305K$)

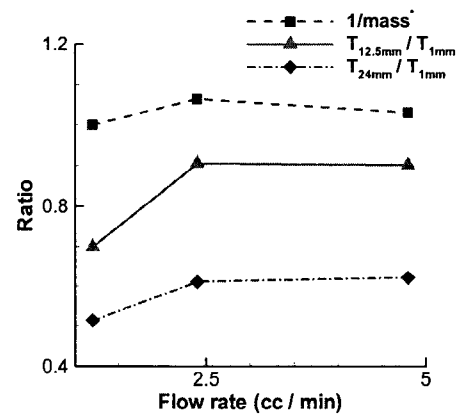


Fig. 8 Comparison of liquid product mass which is inversely normalized and normalized temperature which shows correlation between temperature and product mass ($T_w=305K$)

액상의 생성물이 증가한 것은 유동 시간 스케일의 감소로 인한 반응이 감소한 결과이다. 유량조건과 반응기내 온도 조건이 반응에 미치는 영향을 분석하기 위해 온도와 생성물의 상관 관계를 분석해보았다. 각 유량 조건에서 반응기 내 온도 분포에 대한 지표가 될 수 있는 입력단 온도로 표준화 된 온도 값의 분포와 최소 유량 값 조건에서 생성된 액상 생성물 값으로 표준화 된 각 유량 조건에서의 액상 생성물 값의 역수가 Fig. 8 에 비교되어져 있다. 결과로부터 보다 많은 반응을 유발해서 기상의 반응물을 얻기에 유리한 온도 분포에 대해 알 수 있다. 유량 조건의 변화로부터 반응기내 온도 분포가 고온 영역이 입력 단에만 분포하는 것이 아니라 반응기 길이 방향으로 중앙에 가까운 위치에 있을 때, 즉 그림에서 온도 비의 값이 클 때 액상 생성물의 값이 줄어든다는 것을 확인할 수가 있는데 이 것은 반응이 더 활발해져서 기상

의 생성물이 더 많아진다는 것을 의미한다. 실제 유동 시간 스케일이 상대적으로 작아지면서 초기에 반응물이 반응기 전체에 보다 많이 공급된 상태에서 화학 반응이 일어나게 되었을 때 더 많은 기상의 생성물을 얻을 수 있는 것임을 확인할 수 있다. 하지만 유동 시간 스케일이 일정 수준이상으로 작아지면 오히려 액상의 생성물이 증가하게 되는 데 이것은 화학 반응을 위한 충분한 시간이 없이 유동이 반응기 영역을 통과하기 때문인 것으로 이해할 수 있다.

3.3 반응기 설계변수

이상의 결과로부터 반응기 설계에 필요한 설계 변수로서의 화학반응 시간 스케일에 대한 설계 변수들과의 상관 관계를 얻을 수가 있는데 그 관계는 아래 식 (6) 과 같이 구해진다.

$$t_c^* = \eta_r \eta_A \frac{lA}{\omega} \quad (6)$$

여기에서 η_r 은 반응기의 특성이 되는 유동과 화학 반응의 상대적인 시간 스케일 비로 반응기 초기 온도 305K 에서는 대략 4 정도의 값이, 355K 에서는 대략 8 정도의 값에서 기상의 생성물량이 최대화 되는 것을 알 수 있다. η_A 는 유효 단면적으로 반응기 내에 촉매가 충전 되는 방식과 형상에 대한 설계인자로 이해할 수 있다. l, A 는 반응기 길이와 단면적에 대한 기하학적 형상 변수이고 ω 는 반응물로 촉매의 특성에 대한 변수가 된다. 이상의 결과를 통해 형상이 축소되어 cm 및 mm 크기에 까지 이르는 이상 유동 촉매 반응기 설계 및 제작에 대한 접근 방법으로서의 반응기 특성에 대한 평가를 수행하였다.

4. 결 론

미세한 촉매 반응기를 개발하기 위한 기초 연구 단계로 cm 스케일의 이상유동 반응기에 대한 실험적 연구를 수행하였다. 나노 입자상을 가지는 촉매를 개선된 졸-겔 법으로 합성하였다. 반응기가 작아질수록 화학반응의 반응물이 액상이거나 액상과 기상이 공존하는 형태가 많아지기 때문에 반응 대상은 과산화 수소의 촉매 존재 하에서의 이상 분해반응으로 설정하였다. 실제 마이크로 연료 개질기(fuel reformer) 의 경우 액상의 반응물의 이상 유동을 취급하기 때문에 이러한 모델 연구 접근 방법이 필요한 것으로 판단된다.

실험으로부터 반응기 형상과 크기, 촉매의 양에

다른 반응 및 열 특성을 관찰하였다. 기계 가공을 통해 초소형의 촉매 충전된 반응기를 제작하였고 이를 이용한 실험으로부터 주어진 촉매량에서 반응기내 유량에 따른 온도 분포와 액상 생성물의 양을 얻었다. 이러한 결과를 토대로 유동과 화학 반응 시간 스케일의 비교로부터 반응기 설계를 위한 설계 조건들에 대한 개념을 얻게 되었고 초소형의 이상 반응기의 열 특성에 대한 자료를 얻을 수 있게 되었다. 이러한 결과는 추후 마이크로 가공을 통한 MEMS 화학반응 장치설계에 사용될 수 있게 될 것으로 판단된다.

참고문헌

- (1) Dae Hoon Lee, Dae Eun Park, Joon Bo Yoon, Sejin Kwon and Euisik Yoon, 2002, "Fabrication and Test of a MEMS Combustor and Reciprocating Device," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, Vol. 12, No. 1, pp. 26-34.
- (2) Srinivasan R., Firebaugh S. L., Hsing I. M., Ryley J., Harold M. P., Jensen K. F., and Schmidt M. A., 1997, "Chemical Performance and High Temperature Characterization of Micromachined Chemical Reactors," *Transducers 97. International Conference on Solid State Sensors and Actuators* 1C3.01.
- (3) Sukhan Lee and Yonggyo Seo, 2002, "The Status of Micro Fuel Cell Research in Korea," *Proceeding of Power MEMS 2002, International Workshop on Power MEMS*, Tsukuba, Japan, pp. 10-13.
- (4) Richards, C. D., Bahr, D. F. and Richards, R. F., 2002, "A Micro Heat Engine for MEMS Power," *ASME IMECE 2002-39385*
- (5) Jenifer Brakel, 2001, "Microreactors : An Invention of the Future," *Chemical Reaction Engineering Weekly News*, April 9, Univ. Michigan.
- (6) <http://dcwww.epfl.ch/icp/ICP-3/ICP3-Research.html>
- (7) Kharton V. V., Figueiredo F. M., Kovalevsky A. V., Viskup A. P., Naumovich E. N., Yaremchenko A. A., Bashmakov I. A., Marques F. M. B., 2002, "Processing, Microstructure and Properties of LaCoO_{3,δ}," *Journal of European Ceramic Society* 21, 2301-2309.
- (8) Mineshige, A., Kobune, M., Fujii, S., Ogumi, Z., Inaba, M., Yao, T. and Kikichis K., 1999, "Metal-Insulator Transition and Crystal Structure of La_{1-x}Sr_xCoO₃ as Functions of Sr-Content, Temperature, and Oxygen Partial Pressure," *J. Solid State Chemistry* 142, pp. 374-381.
- (9) Taguchi, H., Yoshioka H. and Nagao, M., 1994, "Synthesis of Perovskite-type LaCoO₃ Using Poly(acrylic acid)," *J. Material science letters* 13, pp. 891-892.
- (10) Kuo, K. K., 1986, *Principles of Combustion*, John Wiley & Sons
- (11) Giuseppe Biardi and Giancarlo Baldi, 1999, "Three-phase catalytic reactors," *Catalysis Today* 52, pp. 223-234.