

# ΦΩΤΟΚΑΤΑΛΥΤΙΚΗ ΕΠΕΞΕΡΓΑΣΙΑ ΚΑΥΣΑΕΡΙΩΝ ΑΥΤΟΚΙΝΗΤΩΝ ΣΕ ΘΕΡΜΙΚΑ ΕΠΕΞΕΡΓΑΣΜΕΝΟ $\text{TiO}_2$ ΜΕ ΠΡΟΣΘΗΚΗ ΠΛΑΤΙΝΑΣ

Πουλάκης Ευάγγελος, Φιλιππόπουλος Κωνσταντίνος

Εργαστήριο Τεχνικής Χημικών Διεργασιών, Σχολή Χημικών Μηχανικών, ΕΜΠ, Ηρώων Πολυτεχνείου 9, Αθήνα

Τα καυσαέρια των αυτοκινήτων συνεχίζουν να αποτελούν σήμερα βασικό περιβαλλοντικό πρόβλημα, με την ταυτόχρονη ύπαρξη  $\text{CO}$ ,  $\text{NO}$  και υδρογονανθράκων να τα καθιστά δύσκολα στην επεξεργασία τους. Η αυτοκινητοβιομηχανία τις τελευταίες δεκαετίες για την επεξεργασία χρησιμοποιεί τους τριοδικούς καταλύτες οι οποίοι περιέχουν πολύτιμα μέταλλα όπως πλατίνα, παλλάδιο και ρόδιο. Η υψηλή τιμή αυτών των μετάλλων καθώς και η μικρή απόδοση των τριοδικών καταλυτών τα πρώτα λεπτά λειτουργίας στην εκκίνηση της μηχανής, όπου η θερμοκρασία των καυσαερίων είναι χαμηλή, δημιουργούν την ανάγκη για την ανάπτυξη μιας εναλλακτικής τεχνικής επεξεργασίας.

Στη παρούσα εργασία προτείνεται η φωτοκαταλυτική επεξεργασία των καυσαερίων η οποία πλεονεκτεί έναντι των τριοδικών καταλυτών επειδή η επεξεργασία γίνεται σε ήπιες συνθήκες θερμοκρασίας και επειδή δεν απαιτεί αναγκαστικά τη χρήση πολύτιμων μετάλλων και κυρίως ρόδιου.

Ως καταλύτης χρησιμοποιήθηκε θερμικά επεξεργασμένο  $\text{TiO}_2$ -P25 στους 600C με στόχο την ενίσχυση της οξειδωσης του  $\text{CO}$  μέσω της αλλαγής της αναλογίας ανατάσιου/ρουτήλιου και στη συνέχεια στο καταλύτη προστέθηκε 1% πλατίνα με τη μέθοδο του ξηρού εμποτισμού. Ο καταλύτης τοποθετήθηκε σε δακτυλιοειδή αντιδραστήρα με επιφάνεια 121,5  $\text{cm}^2$  με δυνατότητα ανακύκλωσης μέσω αντλίας ώστε να διαμορφωθούν συνθήκες πλήρους ανάμιξης στο εσωτερικό του. Η σύσταση της τροφοδοσίας του αντιδραστήρα είναι ίδια με τυπική σύσταση καυσαερίων αυτοκινήτων στη στοιχειομετρία: 1000ppm  $\text{NO}$ , 0.7%  $\text{CO}$ , 225ppm  $\text{CH}_4$ , 450ppm  $\text{C}_3\text{H}_6$ , 225ppm  $\text{C}_3\text{H}_8$ , 15%  $\text{CO}_2$ , 0.3%  $\text{H}_2$ , 0.777%  $\text{O}_2$ . Συνολικά έγιναν πειράματα με όλους τους ρύπους ώστε να μελετηθεί η απόδοση του καταλύτη σε πραγματική σύσταση καυσαερίων και επιπλέον έγιναν πειράματα ώστε να μελετηθούν ξεχωριστά οι αντιδράσεις που πραγματοποιούνται στον καταλύτη με στόχο την εύρεση της κινητικής.

Από τα πειράματα οξειδωσης του  $\text{CO}$  παρατηρήθηκε ότι η μεταβολή της αναλογίας ανατάσιου/ρουτήλιου λόγω της θερμικής επεξεργασίας του  $\text{TiO}_2$ , οδήγησε σε αύξηση της μετατροπής του  $\text{CO}$  σε σχέση με τον μη θερμικά επεξεργασμένο καταλύτη. Από τους υδρογονάνθρακες το  $\text{C}_3\text{H}_6$  επιλέχθηκε για να μελετηθεί η οξείδωσή του, ως ο κύριος υδρογονάνθρακας στα καυσαέρια, και παρατηρήθηκε επίσης αύξηση της μετατροπής. Ακόμα μελετήθηκε η επίδραση της συγκέντρωσης του οξυγόνου και της υγρασίας στη τροφοδοσία και από την επεξεργασία των αποτελεσμάτων εκτιμήθηκε η έκφραση του ρυθμού για το  $\text{CO}$  και  $\text{C}_3\text{H}_6$  με χρήση των μηχανισμών L-H και Eley-Rideal.

Για το  $\text{NO}$  έγιναν πειράματα με και χωρίς υγρασία για να παρατηρηθεί η τυχόν ύπαρξη αντίδραση διάσπασης σε  $\text{N}_2$  και  $\text{O}_2$ , όπως και πειράματα με την προσθήκη οξυγόνου για να εξεταστεί η ύπαρξη αντίδρασης οξειδωσης η οποία είναι ανεπιθύμητη λόγω της παραγωγής  $\text{HNO}_3$  το οποίο μπορεί να αποδραστηκοποιήσει τον καταλύτη. Ακόμα έγιναν πειράματα μεταξύ  $\text{NO}$  και  $\text{C}_3\text{H}_6$  με και χωρίς την παρουσία οξυγόνου και υγρασίας ώστε να μελετηθεί η αντίδραση οξειδωαναγωγής και από την επεξεργασία των αποτελεσμάτων εκτιμήθηκε η έκφραση του ρυθμού.

Από την φωτοκαταλυτική επεξεργασία του μίγματος των καυσαερίων στη στοιχειομετρία παρατηρήθηκε πολύ μικρή μετατροπή του  $\text{CO}$  παρόλο την καλή απόδοση του καταλύτη στα πειράματα οξειδωσης. Αυτό οφείλεται κυρίως στις ανταγωνιστικές αντιδράσεις οξειδωσης των υδρογονανθράκων και της αντίδρασης οξειδωαναγωγής του  $\text{C}_3\text{H}_6$  με το  $\text{NO}$  κατά τις οποίες η προσρόφηση του  $\text{C}_3\text{H}_6$  είναι πιο ισχυρή σε σχέση με το  $\text{CO}$  όπως υποδεικνύουν και οι εκφράσεις των κινητικών.

Σύμφωνα με τα παραπάνω η φωτοκαταλυτική επεξεργασία των καυσαερίων είναι αρκετά υποσχόμενη λόγω της απόδοσης στον καταλύτη στη μείωση των εκπομπών σε  $\text{NO}$  και υδρογονάνθρακες ενώ περαιτέρω έρευνα χρειάζεται πάνω στην ενίσχυση της απόδοσης της οξειδωσης του  $\text{CO}$ .