

Entwicklung eines Gesamtmodells zur Beschreibung des instationären Verhaltens eines 3-Wege-Katalysators

*J. Koop^a, M. Crocolfi^a, S. Tischer, O. Deutschmann^a, D. Chatterjee^b,
B. Bandl-Konrad^b, J. Halber^c,*

*^a Institut für Technische Chemie und Polymerchemie, Universität Karlsruhe (TH),
Kaiserstraße 12, D-76128 Karlsruhe*

^b DaimlerChrysler AG, Mercedesstraße 137/1, D-70327 Stuttgart

^c J. Eberspächer GmbH & Co, Eberspächerstraße 24, D-73730 Esslingen.

Einleitung

Die ständige Verschärfung der Abgasgrenzwerte seitens des Gesetzgebers erfordert eine stetige Weiterentwicklung und Verbesserung der Katalysator Technologien zur Abgasnachbehandlung. Zur Einhaltung der Emissionsgrenzwerte haben sich für den Ottomotor 3-Wege-Katalysatoren (TWC = Three-way-catalyst) durchgesetzt. An solchen Katalysatoren werden Abgaskomponenten wie CO, HC und Stickstoffoxide an den Edelmetallen Platin, Palladium und Rhodium umgesetzt. Die optimale Funktionsweise des 3-Wege-Katalysators wird bei Abgasgemischen im Bereich von $\lambda = 1$ ($\lambda = 1$) erreicht, wobei λ das Verhältnis von tatsächlich zugeführter zu der zur theoretischen Verbrennung benötigten Luftmenge angibt.

Mikrokinetische Untersuchungen

Das Ziel des vorliegenden Beitrags ist das bessere Verständnis und die Vorhersage der an den jeweiligen Edelmetallkomponenten (Pt, Pd und Rh) des Katalysators ablaufenden Reaktionen inklusive der Entwicklung eines Gesamtmodells zur Beschreibung des instationären Verhaltens eines 3-Wege-Katalysators. Hierzu wird die Mikrokinetik des komplexen Reaktionssystems an einem gradientenfreien Differentialkreislaufreaktor untersucht. Da bei diesem Reaktortyp keine Konzentrations- und Temperaturgradienten auftreten, kann die Kinetik unabhängig vom Stoff- und Wärmetransport bestimmt werden. Der Kreislaufreaktor stellt somit den Idealtyp eines kontinuierlich betriebenen Rührkessels (CSTR) dar.

Als Modellkatalysatoren kommen beschichtete Monolithe mit Pt/Pd/Rh/ γ -Al₂O₃ zum Einsatz. Die mit unterschiedlicher Edelmetallbeladung sowie mit variierendem Edelmetallverhältnis synthetisierten Monolithkatalysatoren werden mit Hilfe physikalisch-chemischer Analysemethoden wie XRD, N₂-Physisorption, CO-

Chemisorption, AAS, REM und Lichtmikroskopie charakterisiert. Zur Modellentwicklung und deren Validierung werden definierte Betriebszustände eingestellt. So wird die Kinetik nahe der stöchiometrischen Abgaszusammensetzung ($\lambda=0,9$) sowie unter mageren ($\lambda=1,6$) und unter fetten ($\lambda=0,5$) Betriebsbedingungen studiert [1]. Für die einzelnen Edelmetalle Pt, Pd und Rh werden Reaktionsmechanismen entwickelt, die bei Vorliegen von 2 oder 3 Edelmetallkomponenten zusammengeführt und evaluiert werden. Hierbei kann es zu spill-over-Phänomenen oder zu einer Erweiterung der Reaktionsmechanismen für z.B. bi-metallische Partikel führen, die durch neue Modellansätze beschrieben werden müssen.

Numerisches Modell

Die numerischen Simulationen werden mit Hilfe der entwickelten Modelle, unter Benutzung des in vorangegangenen Studien vorgestellten Softwarepakets DETCHEM, durchgeführt [2]. Als Basis der Modellierung dienen detaillierte Transportmodelle, sowie die auf dem molekularen Geschehen basierenden Oberflächenreaktionsmechanismen [3]. Diese heterogenen Reaktionen werden mittels der mean-field-Approximation beschrieben, bei der die Oberfläche lokal durch mittlere Bedeckungsgrade modelliert wird.

Ergebnisse

Vorgelegt werden die experimentellen, sowie die numerischen Ergebnisse verschiedener Pt/Pd/Rh/ γ -Al₂O₃ beschichteter Modellkatalysatoren. Weiterhin wird ein Einblick in die durch die Modellentwicklung gewonnenen detaillierten Reaktionsmechanismen gegeben.

Literatur

- [1] J. Braun, T. Hauber, H. Többen, P. Zacke, D. Chatterjee, O. Deutschmann, J. Warnatz., SAE paper 2000-01-0211 (2000).
- [2] O. Deutschmann, S. Tischer et al.: DETCHEM, Version 2.0, <http://www.detchem.de>
- [3] D. Chatterjee, O. Deutschmann, J. Warnatz, Faraday Discussions 119 (2001) 371-384.