

I120

自動車排ガス触媒コート層内部での吸着と拡散

(名大工) ○(学)橋本良崇・(正)山田博史・(正)田川智彦*・(豊田中研) (正)加藤悟

【緒言】

近年の自動車排ガス触媒は多様化しており、酸素の貯蔵機能や NO_x の吸蔵機能をもつ触媒をモノリス基材へコートするなど複雑な構造となっている。自動車排ガス処理は非定常状態で行われるため、触媒コート層内部におけるガスの拡散挙動が触媒の反応性能に大きな影響を与える可能性がある。本研究では自動車排ガス触媒の反応性能を制御する際に、その性能の因子となる触媒コート層内部におけるガスの拡散挙動を評価するシステムを構築することを目的としており、ガスの拡散挙動について吸着による影響を考慮するための検討を開始した。

【実験方法】

モノリス基材に触媒担体をコートし、縦 3mm、横 3mm、長さ 5cm に切りとったものを標準試料として使用した。スイープガス(Ar)を流通させ、目的成分ガス(CO₂ or C₃H₈)をパルスで注入した。試料通過後の目的成分ガスの波形を試料出口に接続されたTCDで分析した。実験は室温にて行った。

【吸着-物質移動モデル】

触媒のコート層に対する吸着の影響が無視できる C₃H₈ と吸着する CO₂ の試料通過後の波形を比較し吸着の影響を調べた。尾関ら¹⁾の測定から CO₂ と C₃H₈ は触媒のコート層に対して有効拡散係数の値が近いことがわかった。モデルについて以下のように仮定した。

(a) CO₂ と C₃H₈ の細孔内拡散と気相での拡散の影響は吸着の影響に比べ微小であるので無視できる

(b) C₃H₈ は吸着の影響が無視できる

(c) コート層厚みを 0 と仮定することで、細孔内拡散を無視しコート層内部の吸着もコート層表面での吸着で近似する

(a)~(c)の仮定をもとに式(1)~式(6)で試料を通過する際の吸着による濃度変化を表した。試料通過後の CO₂ の測定波形に対して吸着パラメータをフィッティングした。

$$t \geq 0, x = 0 \text{ において、} \quad (1)$$

$$C = (\text{試料入口波形})$$

$$t = 0, 0 < x \leq L \text{ において、} C = w = 0 \quad (2)$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = k_a \left(\frac{l}{4} C - \frac{w}{K_a} \right) \quad (3)$$

$$\frac{l}{4} C \geq \frac{w}{K_a} \text{ のとき、} k_a = k_{a1} \quad (4)$$

$$\frac{l}{4} C < \frac{w}{K_a} \text{ のとき、} k_a = k_{a2} \quad (5)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -v \frac{\partial C}{\partial x} - \frac{4}{l} \frac{\partial w}{\partial t} \quad (6)$$

(t:経過時間[s], x:空間位置[m],

C: 気相における目的成分ガスの濃度[mol/m³],

L: x 軸方向におけるモノリス基材の全長[m],

w:担体上に吸着している目的成分ガスの濃度[mol/m²],

l:モノリスの開口部の辺の長さ[m], k_a:吸脱着速度定数

[s⁻¹], k_{a1}:吸着速度定数[s⁻¹], k_{a2}:脱離速度定数[s⁻¹], K_a:吸

着平衡定数[-], v:線速度[m/s])

【結果および考察】

標準試料を使用した CO₂ の測定結果に対して吸着パラメータのフィッティングを行った。これをもとに試料の長さを倍にした時の CO₂ の挙動を計算し測定結果と比較した。この結果を Fig.1 に示す。長さを倍にした場合の測定結果と計算結果はほぼ一致しているため、(a)~(c)の仮定により吸着が影響する場合の拡散現象をモデル化することができた。

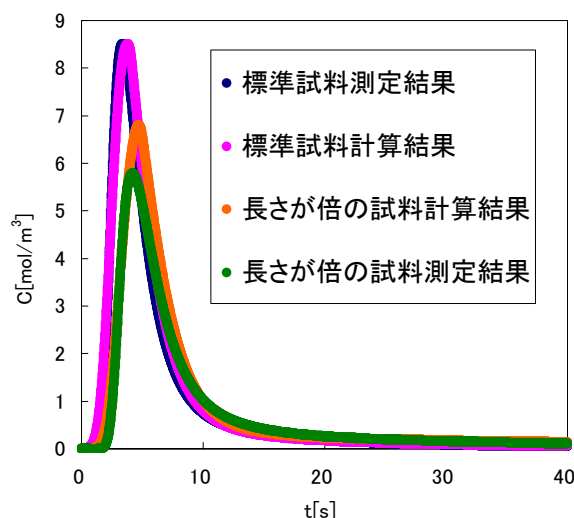


Fig.1 試料を使用した CO₂ の測定結果及び計算結果

*tagawa@nuce.nagoya-u.ac.jp

1) 化学工学会 第 39 回秋季大会予稿集 M208