

УДК 519.2

ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ОБОСНОВАНИЕ МАТЕМАТИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ ПРОЦЕССА КАТАЛИТИЧЕСКОГО ПРЕВРАЩЕНИЯ СО

О. В. ВЕДЬ*

НТУ «ХПІ», Харків, Україна
*email: kml.kh.ua@email.com

АННОТАЦІЯ У роботі запропоновано математичну модель хімічної кінетики поверхневої каталітичної реакції. Математична модель описує реакцію доокислення монооксиду вуглецю до діоксиду вуглецю на платиновій поверхні каталізатора. У наближенні поділу кінетики на швидкі і повільні рухи. Практична ситуація, що відповідає досліджуваній моделі, полягає в тому, що відбувається допалювання монооксиду вуглецю до діоксиду вуглецю у вихлопах автомобільних двигунів для поліпшення стану атмосфери.

Ключевые слова: Математичне моделювання, конверсія, СО, СО₂, каталіз, випускні гази, хімічні процеси

АННОТАЦИЯ В работе предложена математическая модель химической кинетики поверхностной каталитической реакции. Математическая модель описывает реакцию доокисления монооксида углерода до диоксида углерода на платиновой поверхности катализатора. В приближении разделения кинетики на быстрые и медленные движения. Практическая ситуация, отвечающая изучаемой модели, состоит в том, что происходит дожигание монооксида углерода до диоксида углерода в выхлопах автомобильных двигателей для улучшения состояния атмосферы.

Ключевые слова: Математическое моделирование, конверсия, СО, СО₂, катализ, выпускные газы, химические процессы

THEORETICAL SUBSTANTIATION MODEL OF CATALYTIC CO CONVERSION PROCESS

O. VED*

senior lecturer NTU "KhPi", Kharkiv, UKRAINE

ABSTRACT Practical situation, accounting for the studied model is that CO Afterburning to CO₂ takes place in automobile engine's exhaust gases for atmospheric condition improvement. Initial gaseous mixture consist of nitrogen, oxygen and carbon monoxide while exit gases composed of nitrogen, carbon dioxide and oxygen. For change in mixture's component, physico-mechanical properties of the mixture, which determines its hydrodynamic and thermal behavior, changes. This paper presents a three-level modelling approach to the catalytic carbon monoxide oxidation in a temperature range between 400 K – 800 K. The first level involves the description of the chemical kinetics for the exothermic reactions on the catalyst surface. The second level models the thermal and hydrodynamic processes in the boundary diffusion layer between the catalyst surface and the reactive stream. Finally, the third modelling level focuses on the representation of the hydrodynamic and thermal properties for the bulk multi-component gas flow at various gas velocity and temperature ranges. The dynamic behaviour of the reactive system has been studied through simulated runs.

Keywords: Mathematical model, conversion, carbon monoxide, catalyst, chemical technology processes.

Введение

Современный этап технологического развития характеризуется активным интересом к нанотехнологиям. Это, в частности, требует разработки новых подходов в области моделирования реальных физических процессов в нанобъектах и поиска

эффективных методов исследования построенных моделей. Высокая сложность и ограниченность во времени становятся причиной совершения исследований не на реальных нанобъектах, а средствами математического моделирования с использованием компьютерных числовых

экспериментов. Со всеми этими проблемами сталкиваются исследования в области катализа на поверхности металлов. Специфика этой области заключается в том, что процессы отбывают, в основном, на микроуровне, из чего следует и значительная сложность, и сверхвысокая стоимость построения экспериментальных установок, и очевидные существенные затраты времени на такие исследования. Главной проблемой при этом является невозможность гарантировать их успешность. При таких условиях наиболее рациональным и выгодным становится математическое моделирование таких явлений. Исследование проблем каталитического окисления угарного газа стало одним из наиболее важных вопросов в современной науке. Связано это не только с высоким значением этого процесса для промышленности и быта, как, например, чистота окружающей среды в разрезе очистки выбросов со значительным содержанием СО в атмосферу и экономия энергоресурсов, необходимых для обеспечения адекватных очистных мероприятий. Проблема эффективного протекания таких химических реакций на поверхностях металлических катализаторов охватывает достаточно широкий спектр научных задач. К сожалению, до сих пор нет универсальных физических моделей, которые позволяли бы одновременно точно и легко связать результаты теоретических и практических исследований на основе простой для применения математической модели.

Цель работы

Целью настоящей работы является описание физической модели процесса окисления монооксида углерода на каталитически активной поверхности твердого носителя, которая включает в себя три описания математической модели процесса, в так же проведение уровня описания. Построение и лабораторных исследований. Для подтверждения адекватности построенной модели процесса окисления СО.

Изложение основного материала

Одной из наиболее широко изучаемых реакций гетерогенного катализа является реакция доокисления монооксида углерода. Этот процесс наиболее активно протекает на поверхности металлов платиновой группы [8–

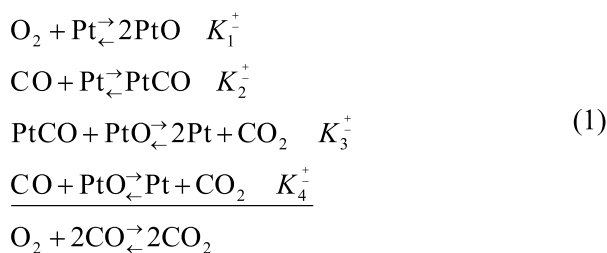
14]. Эта реакция является примером простой, но важной реакции, которая исследуется уже многие годы [8–14]. Важность этой реакции обусловлена тем, что несмотря на относительную простоту кинетического механизма, она демонстрирует весь набор явлений, присущий другим более сложным реакциям. К таким явлениям относятся химическая неидеальность, неизотермичность, критическое поведение, диффузия [1–7]. Реакция доокисления монооксида углерода до диоксида углерода молекулярным кислородом очень важна в экологическом отношении так, как происходит при дезактивации промышленных выбросов и выхлопных автомобильных газов. Окисление монооксида углерода происходит в несколько этапов, и реализуются эти этапы в форму ударного и безударного (механизмы Или – Ридила и Лэнгмюра – Ханшельвуда) [14, 15].

Последний механизм является адсорбционным. Принято считать, что адсорбция кислорода на металлах платиновой группы носит диссоциативный характер и характеризуется низкой энергией активации [8, 11, 12]. Десорбционная способность кислорода имеет немалую энергию активации и зависит от количества ранее адсорбированного кислорода [11–14]. Это же относится к адсорбции и десорбции монооксида углерода [11, 12, 14]. Данная реакция характеризуется набором констант скорости отдельных маршрутов и стадий. Значения этих констант определены в условиях низких и очень низких давлений. В области нормальных и высоких давлений значения констант испытывают значительные изменения. По общему мнению, в области высоких давлений маршруты и стадии остаются теми же, что и в области низких давлений [12–15].

В настоящей работе, учитывая построение модели описания реакции, включающей как уровень каталитической поверхности, так и уровень газовой смеси, текущей во внутреннем пространстве каталитической среды принято представление о двухмаршрутном механизме реакции как в области низких, так и в области нормальных давлений. Возможная неточность, связанная с выбором конкретного механизма имеет принципиального характера потому, что результаты, получаемые на уровне реакционной поверхности, входят отдельным блоком в модели других уровней описания.

В настоящей работе принята трехуровневая схема описания каталитической конверсии газовой смеси. Газовая смесь представляет собой смесь, состоящую из азота, кислорода, монооксида углерода и диоксида углерода. Практический интерес представляют два крайних случая: один – когда азот отсутствует или его очень мало, и второй – когда суммарное количество всех остальных компонентов в сравнении с количеством азота очень мало. Первый случай соответствует процессам химической технологии, а второй – дезактивации автомобильных отработанных газов. В настоящей работе рассматривается второй случай, причем считается, что азот химически неактивен и выполняет функцию фоновый газа – носителя. Описание конверсии газовой смеси при доокислении монооксида углерода основано на трёхуровневой модели. Первый уровень описания относится к каталитической поверхности. Второй уровень относится к области пограничного слоя, примыкающего к каталитической поверхности и ядру потока газовой смеси. Третий уровень относится к ядру потока. Модель первого уровня является сосредоточенной. Модель второго уровня является гидродинамической и включает в себя гидродинамические пограничные слои всех компонентов газовой смеси и тепловой пограничный слой общий для всех компонентов. Модель третьего уровня представляет собой сопряженную тепломассообменную одномерную модель, дополненную гидравлической моделью внутреннего пространства каталитической среды. Модели второго и третьего уровней описаний исходят из ламинарного режима течения смеси и при необходимости могут быть распространены на турбулентный режим течения.

Реакция доокисления записывается следующим образом [15]:



где $K_1^+, K_2^+, K_3^+, K_4^+$ – константы скоростей реакций, имеющие Аррениусовский вид.

Математическая модель сосредоточенной химической кинетики, соответствующей (1), представляет собой систему двух обыкновенных дифференциальных уравнений. Данная модель описывает изменение концентраций адсорбированных на поверхности Pt веществ и приповерхностного кислорода:

$$\begin{aligned} \frac{\partial x}{\partial t} &= 2k_1^+ a_s (1-x-y)^2 - 2k_1^- x^2 - k_3^+ xy - k_4^+ b_s x, \\ \frac{\partial y}{\partial t} &= k_1^+ b_s (1-x-y) - k_2^- y - k_3^+ xy, \end{aligned} \quad (2)$$

где x и y – поверхностные концентрации PtO и PtCO соответственно;

a_s – концентрация кислорода;

b_s – концентрация монооксида углерода;

Значения скоростей производства CO_2 задаётся следующим уравнением для условий стационарности протекания реакции (1):

$$\dot{c} = k_3^+ xy + k_4^+ b_s x. \quad (3)$$

Из условий материального баланса следует, что производство CO_2 можно выразить через концентрацию CO, следующим образом:

$$v_s = \frac{k_2^+ k_3 (b_{0s} - \dot{c}) x (1-x)}{k_2^+ (b_{0s} - \dot{c}) + k_2^- - k_3 x} + k_4^+ (b_{0s} - \dot{c}) x. \quad (4)$$

Величина x является решением следующего уравнения:

$$x = \frac{2k_1^+ a_s (k_2^-)^2 \cdot (1-x)^2}{(k_2^+ b_s + k_2^-) \cdot (k_2^+ k_3 b_s (1-x)) + (k_4 b_s + 2k_1^- x)(k_2^+ b_s + k_2^-)}. \quad (5)$$

Решение уравнения (5) в условиях низкого давления газовой смеси в широком интервале температур для различных значений давления и температурных интервалов имеет достаточно простой вид:

$$\begin{cases} x = \text{const} \cdot \left(\frac{a_s}{b_s}\right) \cdot (1-x)^2, & 10^{-6} \text{ Па} \leq P \sim 10^{-2} \text{ Па}, \quad 270^\circ \text{ К} \leq T \leq 700^\circ \text{ К}, \\ x = \text{const} \cdot \left(\frac{a_s}{b_s}\right) \cdot (1-x)^2, & 10^{-6} \text{ Па} \leq P \sim 10^{-2} \text{ Па}, \quad 700^\circ \text{ К} \leq T^\infty \leq 950, \\ x = \text{const} \cdot a_s \cdot (1-x)^2, & 10^{-6} \text{ Па} \leq P \sim 10^{-2} \text{ Па}, \quad 950^\circ \text{ К} \leq T \leq 1500^\circ \text{ К}, \\ x = \text{const} \cdot a_s \cdot \frac{(1-x)^2}{x}, & 10^{-6} \text{ Па} \leq P \sim 10^{-2} \text{ Па}, \quad 1500^\circ \text{ К} \leq T \leq 2100^\circ \text{ К}, \end{cases} \quad (6)$$

Значения *const* для каждого из представленных интервалов давлений и температур различны. Подстановка результатов (6) в выражение (4) после умножения на величину тепловыделения реакции *r* позволяет получить выражение для теплового источника реакции (1).

Обсуждение результатов

Используя представления о тепловом поверхностном источнике и стандартные представления о характере профилей скорости, температуры и концентрации компонентов газовой смеси можно сформулировать модель второго уровня описания. Эта модель использует такие условия: для профилей скорости условия обращения в ноль на каталитической поверхности и асимптотическое условие равенства скоростей пограничного слоя и ядра потока на границе слоя и ядра. Для профилей температуры – условия аналогичные условиям для скорости. Для концентраций кислорода и монооксида углерода в пограничных слоях используются условия $a = a_s$, $b = b_s$, в которых величины a_s и b_s заранее неизвестны. Для определения значений a_s и b_s надо использовать условие равенства плотности потоков компонентов на каталитической поверхности и на границах пограничных слоёв и ядра потока. Эти условия позволяют выразить значения величин a_s и b_s через значения концентраций кислорода и монооксида углерода a^∞ и b^∞ на границах с ядром потока. В случае газовой смеси с преобладанием химически неактивного фонового газа, свойства фонового газа в основном определяют вязкость, теплопроводность и теплоёмкость смеси как целого. Если для описания зависимостей вязкости и теплопроводности использовать формулы Сазерленда, то итогом описанного будет следующая система уравнений:

$$\frac{1}{3} \frac{\rho^* T^*}{T^\infty + (T_0 - T^\infty) \left(1 - \frac{\delta_w}{\delta_r}\right)} \left\{ \frac{U^\infty}{\delta_w} \frac{\partial \delta_w}{\partial x} - \frac{\partial U^\infty}{\partial x} \left[\frac{(T_0 - T^\infty) \left(1 - \frac{\delta_w}{\delta_r}\right) \frac{\delta_w}{\delta_r}}{T^\infty + (T_0 - T^\infty) \left(1 - \frac{\delta_w}{\delta_r}\right)^2} \right] \right\} = -\frac{2\mu(T_0)}{\delta_w^2} + \rho^* \frac{\partial U^\infty}{\partial x} \frac{T^*}{T^\infty + (T_0 - T^\infty) \left(1 - \frac{\delta_w}{\delta_r}\right)},$$

$$\frac{1}{3} \frac{\rho^* T^*}{T^\infty} C_p \left\{ 2U^\infty \frac{\partial T^\infty}{\partial x} - \frac{T_0 - T^\infty}{\delta_r} \left(\delta_r \frac{\partial U^\infty}{\partial x} + U^\infty \frac{\partial \delta_r}{\partial x} \right) \right\} = -\frac{2r\dot{C}(T_0)}{\delta_r},$$

$$\frac{2}{3} U^\infty \frac{\partial C^\infty}{\partial x} - \frac{1}{3} (C_0 - C^\infty) \frac{\partial U^\infty}{\partial x} - \frac{1}{3} U^\infty \frac{\partial \delta_c}{\partial x} \frac{C_0 - C^\infty}{\delta_c} = -2 \frac{\dot{C}(T_0)}{\delta_c},$$

$$U^\infty \frac{\partial C^\infty}{\partial x} = \frac{D(T^\infty)}{\delta_c^2} (C_0 - C^\infty),$$

$$\frac{\rho^* T^*}{T^\infty} C_p U^\infty \frac{\partial T^\infty}{\partial x} = \frac{\lambda(T^\infty)}{\delta_r^2} (T_0 - T^\infty), \quad (7)$$

$$T_0 = T^\infty + \frac{r\dot{C}(T_0)}{2\lambda(T_0)} \delta_r,$$

$$C_0 = C^\infty + \frac{\dot{C}(T_0)}{2D(T_0)} \delta_c,$$

$$\lambda(T_0) = \lambda^* \frac{T^* + C_\lambda}{T_0 + C_\lambda} \left(\frac{T_0}{T^*} \right)^{\frac{3}{2}}, \quad \lambda(T^\infty) = \lambda^* \frac{T^* + C_\lambda}{T^\infty + C_\lambda} \left(\frac{T^\infty}{T^*} \right)^{\frac{3}{2}},$$

$$\mu(T_0) = \mu^* \frac{T^* + C_\mu}{T_0 + C_\mu} \left(\frac{T_0}{T^*} \right)^{\frac{3}{2}}, \quad \mu(T^\infty) = \mu^* \frac{T^* + C_\mu}{T^\infty + C_\mu} \left(\frac{T^\infty}{T^*} \right)^{\frac{3}{2}},$$

$$D(T_0) = D(T^*) \left(\frac{T_0}{T^*} \right)^{1.85}, \quad D(T^\infty) = D(T^*) \left(\frac{T^\infty}{T^*} \right)^{1.85}.$$

В этой системе уравнений неизвестными являются величины: δ_w , δ_r , δ_c , T^0 , C^0 , T^∞ , C^∞ . Величины μ^* , λ^* , C_p , ρ^* , представляют собой плотность, теплоемкость, вязкость, теплопроводность молекулярного азота при нормальных условиях.

Величины δ_w , δ_r , δ_c обозначают гидродинамический, температурный и диффузионный пограничные слои. T^0 , T^∞ – температуры на каталитической поверхности и в ядре потока, соответственно. C^0 , C^∞ концентрации CO_2 на каталитической поверхности и в ядре потока соответственно. λ , μ , D – коэффициенты теплопроводности, вязкости и диффузии соответственно. c_p – теплоёмкость газовой смеси. C_λ , C_μ – постоянные Сазерленда для теплопроводности и вязкости. Мощность источника \dot{C} задается выражениями (4) и (6). Система уравнений (7), (4), (6) исследуется довольно сложно. Для

упрощения используется следующий подход: вместо уравнения (7) исследуется система уравнений сопряженного тепло- и массообмена, состоящая из двух уравнений для неизвестных T^∞ , C^∞ . В приближении которое использует объёмные источники тепла и концентрации с мощностями, равными мощностям настоящих поверхностных источников. В результате решения такой системы уравнений и нахождения величин $T^\infty(x)$, $C^\infty(x)$ и подстановки в остальные уравнения (7) получаются не уравнения, а формулы для вычисления величин δw , δT , δc , T_0 , C_0 , система уравнений для T^∞ , C^∞ с объёмным источником имеет следующий вид:

$$\begin{cases} U^\infty \frac{\partial c^\infty}{\partial x} = \dot{c}, \\ \frac{\rho^* \cdot T^* \cdot C_\rho \cdot U^\infty}{T^\infty} \cdot \frac{\partial T^\infty}{\partial x} = \frac{r \cdot \dot{c}}{V} - \frac{K \cdot P}{S_1} (T^\infty - T^e), \end{cases} \quad (8)$$

где V – объём, приходящийся на единичную площадь каталитической поверхности; K – коэффициент теплопередачи между каталитической средой и внешней средой, которая его окружает. Если значения мощности источника коэффициентов теплопроводности и диффузии, взятые на каталитической поверхности выразить через их же значения в ядре потока при помощи разложения Тэйлора, то получается следующая система уравнений:

$$\Delta T = \frac{r}{2} \cdot \delta_T \cdot \frac{\dot{c}^\infty + \left(\frac{\partial \dot{c}^\infty}{\partial T^\infty}\right) \cdot \Delta T}{\lambda^\infty + \left(\frac{\partial \lambda^\infty}{\partial T^\infty}\right) \cdot \Delta T}, \quad \Delta T = T_0 - T^\infty, \quad (9)$$

$$\Delta c = \frac{\delta_c}{2} \cdot \frac{\dot{c}^\infty + \left(\frac{\partial \dot{c}^\infty}{\partial T^\infty}\right) \cdot \Delta T}{D^\infty + \left(\frac{\partial D^\infty}{\partial T^\infty}\right) \cdot \Delta T}, \quad \Delta c \equiv c_0 - c^\infty,$$

Для толщин пограничных слоёв δ_T , δ_c получаются следующие уравнения:

$$\delta_T = \sqrt{\frac{\lambda^\infty \cdot T^\infty \cdot \Delta T}{\rho^* \cdot c_\rho \cdot T^* \cdot U^\infty \cdot \frac{\partial T^\infty}{\partial x}}}, \quad \delta_c = \sqrt{\frac{D^\infty \cdot \Delta c}{U^\infty \cdot \frac{\partial c^\infty}{\partial x}}}, \quad (10)$$

Исключая из (8) и (9) все неизвестные, кроме ΔT получается следующее уравнение такого вида:

$$\Delta T^{\frac{3}{2}} - \frac{r}{2} \cdot \frac{\partial \dot{c}^\infty}{\partial T^\infty} \cdot \left(\frac{\lambda^\infty \cdot T^\infty}{\rho^* \cdot c_\rho \cdot T^* \cdot U^\infty \cdot \frac{\partial T^\infty}{\partial x}} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot \Delta T + \frac{\lambda^\infty}{\partial \lambda^\infty / \partial T^\infty} \cdot \Delta T^{\frac{1}{2}} - \frac{r \cdot \dot{c}^\infty}{2} \cdot \left(\frac{\lambda^\infty \cdot T^\infty}{\rho^* \cdot c_\rho \cdot T^* \cdot U^\infty \cdot \frac{\partial T^\infty}{\partial x}} \right)^{\frac{1}{2}} = 0 \quad (11)$$

Совокупность уравнений (8) – (11) позволяет приближенно найти зависимости величин δw , δT , δc , T_0 , C_0 , T^∞ , C^∞ от предельной координаты x вдоль каталитической поверхности. Если во втором уравнении системы $K = 0$, то это соответствует случаю теплоизолированной системы. Такой случай позволяет решить систему уравнений (8) точно путём выражения величины C^∞ через T^∞ . При этом величина источника \dot{c} также становится функцией температуры T^∞ , а продольная координата x вдоль каталитической поверхности в уравнение для температуры T^∞ явно не входит. В этом случае уравнение для T^∞ интегрируется в квадратурах. В более реалистическом случае, когда имеется внешний теплоотвод система уравнений (8) может быть сведена к единственному уравнению для температуры, которое относится к уравнениям Абеля и Рикатти. При решении уравнений в случае тепловой изоляции или внешнего теплоотвода возникает проблема недостаточности информации относительно значений констант скорости в выражении для источника. В области низких давлений эти значения хорошо определены, а в области нормальных давлений сильно уменьшается. Ниже считается, что при нормальном давлении в выражении для источника доминирует второе слагаемое k_4^+ константой скорости k_4^+ , значение которой при низких и нормальных давлениях отличаются примерно на семь порядков. Это обстоятельство формально можно учесть, если ввести перенормирующий множитель $\xi \sim 10^{-7}$. Еще одна проблема, осложняющая решение системы уравнений (8) путем сведения его к единственному уравнению для температуры $T^\infty(x)$ заключается в том, что при больших температурах на каталитической поверхности

становится значимым радиационный теплообмен. В рассматриваемом случае доминирования нейтрального фонового газа в смеси всю смесь можно считать почти прозрачной для теплового излучения так, что радиационный теплообмен играет значимую роль только для теплоотдачи во внешнюю среду. Учитывая сказанное, коэффициент теплопередачи K может быть записан в следующем виде:

$$K = \frac{1}{\frac{1}{\alpha_i} + \frac{\delta_{ct}}{\lambda_{ct}} + \frac{1}{\alpha_{ec} + \alpha_{er}}}, \quad (12)$$

где α_i – коэффициент теплоотдачи со стороны каталитической среды к стенке, ограничивающей эту среду; δ_{ct} – толщина ограничивающей стенки; λ_{ct} – коэффициент теплопроводности стенки; α_{ec} – коэффициент теплоотдачи от стенки в окружающую среду по конвективному механизму; α_{er} – коэффициент теплоотдачи от стенки в окружающую среду по радиационному механизму; Суммируя всё сказанное уравнение для температуры $T^\infty(x)$ после исключения величины $c^\infty(x)$ из системы уравнений (8) принимает следующий вид:

$$\frac{\partial T^\infty}{\partial x} = u \cdot T^\infty (\alpha T^\infty + \beta) \cdot \left(\frac{T^\infty \cdot \beta \cdot v}{T_n^\infty \cdot u \cdot \beta \cdot \xi + \omega \cdot T_e} \times \frac{\frac{\alpha \cdot v}{u \cdot \alpha \cdot \xi - \omega} \cdot \frac{\beta \cdot v}{u \cdot \beta \cdot \xi - \omega \cdot T_e}}{T^\infty + \frac{u \cdot \beta \cdot \xi + \omega \cdot T_e}{u \cdot \alpha \cdot \xi - \omega}} \right) - \left(\frac{T^\infty \cdot \beta \cdot v}{T_n^\infty \cdot u \cdot \beta \cdot \xi + \omega \cdot T_e} \right) \times \left(\frac{\frac{\alpha \cdot v}{u \cdot \alpha \cdot \xi - \omega} \cdot \frac{\beta \cdot v}{u \cdot \beta \cdot \xi - \omega \cdot T_e}}{T^\infty + \frac{u \cdot \beta \cdot \xi + \omega \cdot T_e}{u \cdot \alpha \cdot \xi - \omega}} \right) - \omega \cdot T(T - T_e), \quad (13)$$

$$u = \frac{S}{V} \cdot \frac{\xi \cdot k_4^+ \cdot r \cdot b_n}{U^\infty \cdot \rho^* \cdot c_p \cdot T^*}, \quad v = \frac{S}{V} \cdot \frac{\xi \cdot k_4^+}{U^\infty}, \quad \omega = \frac{K \cdot P}{U^\infty \cdot S_1 \cdot \rho^* \cdot c_p \cdot T^*},$$

где S – площадь боковой поверхности каталитической среды; V – объем каталитической среды; b_n – начальная концентрация монооксида углерода; S_1 – площадь поперечного сечения каталитической среды; P – периметр поперечного сечения каталитической среды; α , β – параметры равные $0,6 \cdot 10^{-3}$, $0,22$ соответственно.

Вешение уравнения (13) после подстановки в первое уравнение системы (8) позволяет найти зависимость концентрации CO_2 в газовой смеси.

Уравнение (13) применялось для описания процесса каталитического доокисления отработанных газов в нейтрализаторе.

Выводы

В ходе работы была создана физическая модель процесса окисления монооксида углерода на каталитически активной поверхности твердого носителя, которая включает в себя три стадии. На первой стадии происходит процесс химического превращения с образованием промежуточных веществ между каталитически активными центрами носителя и продуктом неполного окисления углерода с последующими актами доокисления на подобных активных центрах. Математическая модель, которая описывает физические процессы протекания конверсии, также содержит три уровня описания. Первый уровень описывает химическую кинетику поверхностной каталитической реакции в приближении разделения кинетики на быстрые и медленные явления. Второй уровень описания связан с представлением о пограничном слое. В изучаемой модели пограничный слой представляет собой тонкий слой переменной толщины, в котором всякая величина, являющаяся характеристикой потока газовой смеси, изменяется от своего приповерхностного значения до значения вдали от поверхности. На третьем уровне описания разработаны гидродинамическая и тепловая модели для скорости движения газового многокомпонентного потока и его температуры в объемной решетке носителя с каталитически активными центрами с регулярным и нерегулярным порядками.

Физическая модель процесса каждой стадии представлена системами уравнений. Уравнения описывают протекание кинетических актов взаимодействия реагирующих молекул газовой среды с каталитически активными центрами, массообменные и тепловые процессы.

Предварительные лабораторные исследования, подтвердили адекватность предложенной математической модели физическим данным кинетического, газодинамических и тепловых исследованиям. Это дало возможность посредством предложенной модели процесса конверсии CO теоретически рассчитать параметры каталитического нейтрализатора выпускных

газов двигателя внутреннего сгорания с искровым зажиганием объемом 1,1 дм³.

Нейтрализатор выпускных газов двигателя внутреннего сгорания был изготовлен и на нем проведены исследования качества очистки выпускных газов. Испытания показали 0,9 степень конверсии угарного газа и прочих насыщенных и ненасыщенных углеводородов в нейтрализаторе.

Список литературы

- 1 **Churaev, N** The physical chemistry of transport processes in porous bodies / **N. Churaev** // Chemistry. – Moscow, 1990.
- 2 **Heifetz L, Neimark A.** Multiphase processes in porous media / **L. Heifetz, A. Neimark** // Chemistry. – Moscow, 1999
- 3 **Collins R,** During the fluids through porous materials / **R. Collins** // Myr. – Moscow, 2000
- 4 **Gebhart B, Jaluria Y, Mahajan R, Sammokia B** Buoyancy-induced flows and transport./**B. Gebhart, Y. Jaluria, R. Mahajan, B. Sammokia** // Hemisphere Publishing Corporation.– New York, 2001
- 5 **Dulnev G, Novikov V.** Transfer processes in inhomogeneous media / **G. Dulnev, V. Novikov** // Energoatomizdat.– Moscow, 1999
- 6 **Gebhart B, Dzhauriya J, Mahajan R, Sammakiya B.** Free convective flow of heat and mass transfer / **B. Gebhart, J. Dzhauriya, R. Mahajan, B. Sammakiya** // Myr. Moscow, 1991
- 7 **Groot S, Mazur P.** Non-Equilibrium thermodynamics./ **S. Groot, P. Mazur** // North Holland publishing company.– Amsterdam, 2000
- 8 **Idelchik I.** Directory of hydraulic resistance./ **I. Idelchik** // Mashinostroenie.–Moscow, 2000
- 9 **Kutateladze S.** Heat transfer and hydraulic resistance./ **S. Kutateladze** // Energoatomizdat.– Moscow, 2001
- 10 **Kutateladze S.** Analysis of the similarity in thermal physics / **S. Kutateladze** // Nayka.– Novosibirsk, 2000
- 11 **Landau L, Lifshitz E.** Theoretical physics. Hydrodynamics./ **L. Landau, E. Lifshitz** // Nayka. – Moscow, 1986
- 12 **Romm E.** Structural models of the pore space of rocks. / **E. Romm** // Nedra.– Leningrad, 1986
- 13 **Suzdalev I.** Nanotechnology. Physics and chemistry of nanoclusters, nanostructures, nanomaterials. / **I. Suzdalev** // Kom. Kniga.– Moscow, 2006
- 14 **Tsybenova S.** Basic models of thermal kinetics./ **S. Tsybenova** // *Phys and Chem Kinetics in Gas Dynamics*, 2008.– J 6:44–66

- 15 **Tuttliies U, Schueisser V, Eigenberger G** Modellierung der NO_x Speicherung und Reduction on Barium Shrinking Core Model./ **U. Tuttliies, V. Schueisser, G. Eigenberger** // *Chem Engin Sci*, 2006.– J 59(23):4731–4735.

References

1. **Churaev, N** The physical chemistry of transport processes in porous bodies. Chemistry, Moscow, 1990.
2. **Heifetz L, Neimark A.** Multiphase processes in porous media. Chemistry, Moscow, 1999
3. **Collins R,** During the fluids through porous materials. Myr, Moscow, 2000
4. **Gebhart B, Jaluria Y, Mahajan R, Sammokia B** Buoyancy-induced flows and transport. Hemisphere Publishing Corporation, New York, 2001
5. **Dulnev G, Novikov V.** Transfer processes in inhomogeneous media, Energoatomizdat, Moscow, 1999
6. **Gebhart B, Dzhauriya J, Mahajan R, Sammakiya B.** Free convective flow of heat and mass transfer. Myr, Moscow, 1991
7. **Groot S, Mazur P.** Non-Equilibrium thermodynamics. North Holland publishing company, Amsterdam, 2000
8. **Idelchik I.** Directory of hydraulic resistance. Mashinostroenie, Moscow, 2000
9. **Kutateladze S.** Heat transfer and hydraulic resistance. Energoatomizdat, Moscow, 2001
10. **Kutateladze S.** Analysis of the similarity in thermal physics. Nayka, Novosibirsk, 2000
11. **Landau L, Lifshitz E.** Theoretical physics. Hydrodynamics. Nayka, Moscow, 1986
12. **Romm E.** Structural models of the pore space of rocks. Nedra, Leningrad, 1986
13. **Suzdalev I.** Nanotechnology. Physics and chemistry of nanoclusters, nanostructures, nanomaterials. Kom. kniga, Moscow, 2006
14. **Tsybenova S.** Basic models of thermal kinetics. *Phys and Chem Kinetics in Gas Dynamics*, 2008, J 6:44–66
15. **Tuttliies U, Schueisser V, Eigenberger G** Modellierung der NO_x Speicherung und Reduction on Barium Shrinking Core Model. *Chem Engin Sci*, 2006, J 59(23):4731–4735.

Надійшла (received) 08.12.2014