



**XXXI. Országos Tudományos Diákköri  
Konferencia  
2013**



**Gépjárművek kipufogógáz emissziója és katalitikus tisztítása**

Készítette: Sinka Zsófia

Témavezető: dr. Kovács József

Pannon Egyetem, Mérnöki Kar, Környezetmérnöki Intézet

# Gépjárművek kipufogógáz emissziója és katalitikus tisztítása

Készítette: **Sinka Zsófia**, II. évf. környezetmérnök MSc  
Pannon Egyetem, Mérnöki Kar, Környezetmérnöki Intézet

Témavezető: **Dr. Kovács József** egyetemi adjunktus  
Mérnöki Kar, Környezetmérnöki Intézet

Az antropogén eredetű források között- az utóbbi évtizedben végbement motorkonstrukciós, üzemanyag és környezetvédelmi vonatkozások ellenére- a közlekedés továbbra is jelentős szerepet játszik a légszennyező anyagok kibocsátásában. A gépjárművek által kibocsátott anyagok emissziójának csökkentésére irányuló kutatások egészségvédelmi és környezetvédelmi szempontból is fontosak.

A gépjárművek motorjában az üzemanyag és a levegő keverékének tökéletes égésekor elvileg  $\text{CO}_2$  és vízgőz keletkezik, a gyakorlatban a kevésbé tökéletes az égés, így levegőszennyező gázok –  $\text{CO}$ ,  $\text{CH}_x$ ,  $\text{NO}_x$ , PAH-ok, VOC-k valamint aeroszolok-növekvő kibocsátását eredményezi. A gépjárművek kipufogórendszerébe épített katalizátorok gyorsítják a káros anyagok átalakulását, oxidációját ( $\text{CO}$ , VOC), vagy redukcióját ( $\text{NO}_x$ ).

Az általunk előállított modell kipufogógázzal (földgáz-vízgőz elegy és  $\text{NO}_x$  tartalmú gázkeverék) végzett különböző üzemidejű és eltérő üzemvitel mellett használt katalizátorok szénhidrogén és nitrogén-oxid átalakulási hatásfokának vizsgálatainak eredményire is alapozva saját katalizátor mintákat állítottunk elő. Kereskedelmi  $\gamma$ -alumínium-oxid hordozóra és annak hőkezelt formájára impregnálással kialakított Pd-CeO<sub>2</sub> aktív anyagokat tartalmazó mintákat készítettünk (1x, 2x, 3x és hőkezelt 1x impregnált minta). A katalitikus aktivitás vizsgálatokhoz szintén a modell kipufogógázt használtuk 250°C és 700 °C hőmérséklet tartományban. Meghatároztuk a katalizátorok morfológiai és szerkezeti tulajdonságait nyers és aktivitásmérés utáni állapotban is.

Dolgozatomban bemutatom a minta katalizátorok előállításának folyamatát, a morfológiai és aktivitás vizsgálatok eredményeit és az ebből levont következtetéseket.

# Tartalomjegyzék

|                                                                                    |           |
|------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| Bevezetés.....                                                                     | 1         |
| <b>I. Irodalmi rész .....</b>                                                      | <b>2</b>  |
| <b>1 Hazai gépjárműállomány, károsanyag emissziók .....</b>                        | <b>2</b>  |
| <b>2 Gépjárművek motorjai és károsanyag emissziói .....</b>                        | <b>4</b>  |
| 2.1 Négyütemű Otto-motor .....                                                     | 4         |
| 2.2 Négyütemű dízelmotor .....                                                     | 4         |
| 2.3 Károsanyag emissziók .....                                                     | 5         |
| 2.3.1 Szénhidrogének égése .....                                                   | 5         |
| 2.3.2 Nitrogén-oxidok .....                                                        | 6         |
| 2.3.3 Otto-és dízelmotorok károsanyag emissziói .....                              | 8         |
| <b>3 Gépjárművek kipufogógáz emissziójának csökkentése .....</b>                   | <b>10</b> |
| 3.1 Gépjárművekben alkalmazott katalizátorok.....                                  | 11        |
| 3.2 Az emisszió csökkentés fejlődése .....                                         | 12        |
| 3.2.1 Emisszió csökkentése katalizátor nélkül .....                                | 12        |
| 3.2.2 Első generációs (oxidációs) katalizátorok.....                               | 13        |
| 3.2.3 Második generációs (kétágas: dual bed) katalizátorok .....                   | 13        |
| 3.2.4 Harmadik generációs (háromfunkciós: three way) katalizátorok .....           | 14        |
| <b>4 Célkritériumok .....</b>                                                      | <b>16</b> |
| <b>II. Gyakorlati rész .....</b>                                                   | <b>17</b> |
| <b>5 Katalizátor minták előállítása .....</b>                                      | <b>17</b> |
| <b>6 Katalizátor minták szerkezet vizsgálata.....</b>                              | <b>18</b> |
| 6.1 A minták fázisösszetételének meghatározása röntgendiffrakciós módszerrel ..... | 18        |
| 6.1.1 Az XRD vizsgálatok eredménye .....                                           | 19        |
| 6.2 Morfológiai vizsgálat .....                                                    | 19        |
| 6.2.1 Nitrogén adszorpció vizsgálat.....                                           | 19        |
| 6.2.2 Híganypenetrációs vizsgálat.....                                             | 21        |
| 6.3 Morfológiai szerkezetvizsgálat eredményei.....                                 | 21        |
| <b>7 Aktivitás vizsgálat.....</b>                                                  | <b>23</b> |
| 7.1 A mérőrendszer vázlata .....                                                   | 23        |
| 7.2 Mérés folyamata .....                                                          | 25        |
| 7.2.1 Első mérési sorozat.....                                                     | 25        |
| 7.2.2 Második mérési sorozat.....                                                  | 25        |
| 7.2.3 Harmadik mérési sorozat.....                                                 | 25        |
| 7.3 Az aktivitás vizsgálat eredményei.....                                         | 25        |
| 7.4 Az aktivitási vizsgálat eredményeinek értékelése .....                         | 28        |

|                                  |           |
|----------------------------------|-----------|
| <b>Összefoglaló .....</b>        | <b>29</b> |
| <b>Köszönetnyilvánítás .....</b> | <b>30</b> |
| <b>Irodalomjegyzék.....</b>      | <b>31</b> |
| <b>Mellékletek .....</b>         | <b>32</b> |

## Bevezetés

Mindennapi tevékenységünk egyik fő szempontja a fenntartható fejlődés, ami magába foglalja az egyes folyamatok gépesítésén, automatizálásán túl a környezet védelmét, ezen belül is a környezeti levegő védelmét. Napjainkban a mobilitás - mint a fenntartható fejlődés egyik fontos eleme- óriási szerepet játszik mindennapi életünkben. A mobilitás megvalósításához használt belső égésű motorral hajtott járművek egyre nagyobb környezeti problémát jelentenek. A belső égésű motorok kipufogórendszerén távozó gázok negatív hatással vannak a környezetre és az emberi egészségre is. A társadalmi igények kielégítésére folyamatosan fejlődtek a járművek és velük együtt egyre nagyobb teljesítményű motorok jelentek meg, amivel egyenes arányban nőtt a fogyasztás, ezzel együtt a károsanyag-emisszió is. Mobilitás nélkül elképzelhetetlen lenne az életünk, így annak káros hatását csökkentenünk kell. Ehhez az szükséges, hogy ismerjük a károsító folyamatokat és a megfelelő módon csökkentjük, szabályozzuk azokat. A károsanyag-emisszió csökkentésre napjainkban a gépjárművek kipufogórendszerébe szerelt katalizátorok jelentik a megoldást, melyek az egyre szigorodó előírások következtében folyamatosan fejlődnek.

Dolgozatomban a kipufogógázok jellemzőit, környezeti hatásukat és a katalitikus tisztítását vizsgálom. Bemutatom a hazai károsanyag emissziók alakulását, különböző típusú belső égésű motorral ellátott gépjárművek eltérő károsanyag kibocsátását, a jelenleg érvényes jogi szabályozó eszközöket, valamint az alkalmazott katalizátorok típusait. A gyakorlati részben saját készítésű katalizátorok előállításának folyamatát, morfológiai és szerkezeti vizsgálatait valamint aktivitási vizsgálatait két különböző hőmérsékletszinten mutatom be.

A laboratóriumi körülmények között végzett aktivitás vizsgálatoknál a katalizátorok térfogata és az alkalmazott modellgáz összetétele, térfogatárama minden esetben megegyező volt, így a minták aktivitási vizsgálatának eredményi könnyebben összehasonlíthatóak. Megállapítottam, hogy az eredeti hordozóra háromszoros impregnálással felvitt aktív anyagot tartalmazó katalizátor aktivitása nem haladja meg az előre hőkezelt hordozóra egyszeri impregnálással előállított –transzport folyamatok szempontjából kedvezőbb pórusszerkezetű- minta aktivitását.

## I. Irodalmi rész

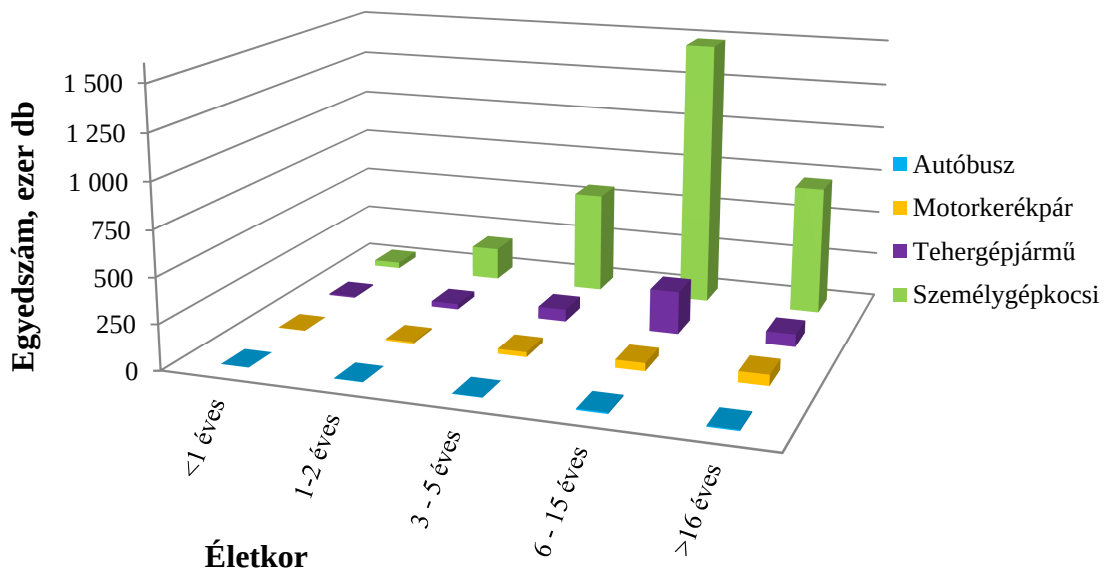
### 1 Hazai gépjárműállomány, károsanyag emissziók

A világszerte - elsősorban közlekedési eszközökben alkalmazott - belső égésű motorok darabszáma jóval meghaladja az egy milliárdot. A legnagyobb felhasználási területet a közlekedési eszközök jelentik. Az üzemben tartott belső égésű motorral hajtott gépkocsik (személygépkocsik, autóbuszok és tehergépkocsik) száma a Földön 2010-re egymilliárdra nőtt és az évenkénti növekménye megközelíti a 40 milliót, 2015-ben pedig már ennél is 124 millióval több jármű lesz világszerte.. Az országokénti járműállomány jelentős szóródást mutat, az 1. táblázat Magyarország közúti gépjármű állományának változását mutatja [1].

1. táblázat: Magyarország közúti gépjárműállománya (darab) [2]

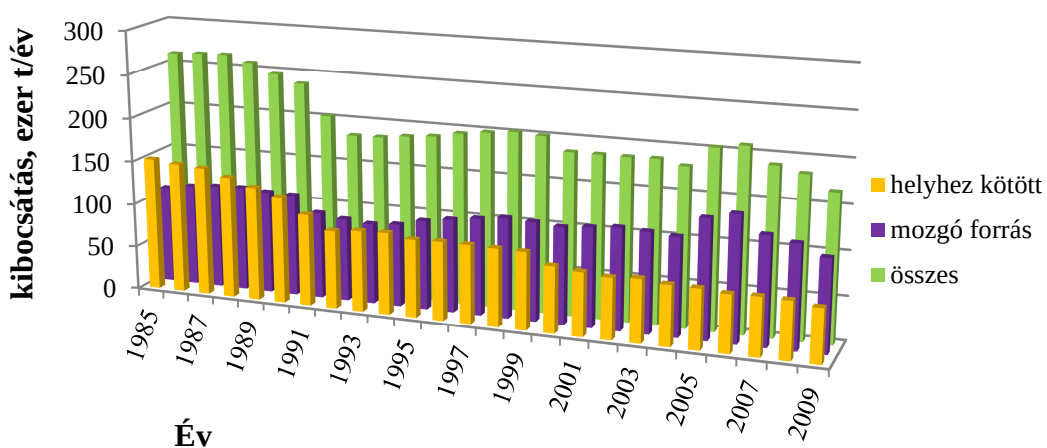
|                              | 1985      | 1990      | 1995      | 2000      | 2005      | 2010      |
|------------------------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| <b>Személygépkocsi</b>       | 1 435 937 | 1 944 553 | 2 245 395 | 2 364 706 | 2 888 735 | 2 984 063 |
| <b>Motorkerékpár</b>         | 395 622   | 168 817   | 159 091   | 91 193    | 122 705   | 142 251   |
| <b>Autóbusz</b>              | 24 854    | 26 121    | 20 223    | 17 855    | 17 450    | 17 641    |
| <b>Tehergépjármű, dömper</b> | 157 136   | 224 061   | 292 144   | 342 007   | 391 731   | 416 672   |
| <b>Közúti vontató</b>        | 31 392    | 38 397    | 32 613    | 24 426    | 35 917    | 48 207    |

Az 1960-as évekig a városokban az ipari termelés volt a légszennyezés legjelentősebb forrása, azonban napjainkban a közúti gépjárművek okozta légszennyezés meghatározó lett. A közlekedés okozta légszennyezés több, mint 85%-a a közúti gépjárművekből ered. Az országos összes károsanyag emisszió 35-40%-a a közúti közlekedésnek tulajdonítható, ami a városok főforgalmú útjain akár a 90%-ot is elérheti. Magyarországon a személygépkocsik száma majdnem a kétszeresére növekedett, ezzel ellentétben az autóbuszok száma jelentősen csökkent. A tehergépjárművek száma is jelentősen emelkedett az elmúlt időszakban, ahogy az 1. táblázat is mutatja. A statisztikai adatok alapján elmondható, hogy a közúti gépjárművek átlagéletkora évről évre nő, ahogy az 1. ábrán is látható.



1. ábra: Gépjárművek életkora, 2010. [2]

270 000 t/év-ről 180 000 t/év-re csökkent az elmúlt 23 évben a nitrogén oxid éves levegőterhelése hazánkban (2. ábra). Ez a jelentős csökkenés a helyhez kötött forrásokra kibocsátási értékeire bevezetett szigorú jogszabályoknak köszönhető. A mozgó forrásokból származó károsanyag kibocsátás évről évre növekszik a korszerű fejlesztések ellenére. A növekedés részben a forgalomban lévő gépjárművek darabszámának növekedésének (pl: tehergépjárműveknek nagyobb a károsanyag kibocsátása), részben pedig a magasabb átlagéletkoruknak tulajdonítható [3]. A motorok működéséből következik a károsanyagok keletkezésének lehetősége, ezért a kutatások és fejlesztések ennek csökkentésére irányulnak.



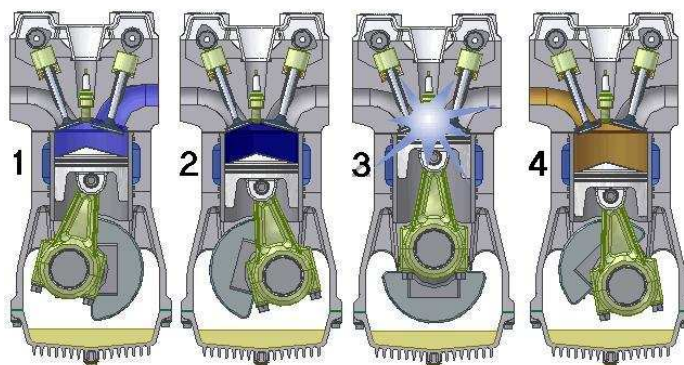
2. ábra: Nitrogén-oxid éves levegőterhelés Magyarországon [2]

## 2 Gépjárművek motorjai és károsanyag emissziói

Robbanómotornak azokat az Otto-, vagy dízelmotorokat nevezzük, amelyeknél a levegő és tüzelőanyag keveréket a körfolyamatok valamelyik szakaszában a motoron belül égetik el. A felszabaduló hőenergiából függőleges irányú mozgást állít elő a dugattyú, ezt a főtengely és a hajtókar forgó mozgássá alakítja át, ami különböző erőátviteli eszközökön keresztül eljut a kerekre. Az egyes típusok közül a négyütemű Otto- és dízelmotorokat emelném ki.

### 2.1 Négyütemű Otto-motor

A négyütemű robbanómotort használják a gépjárművek nagy részénél. A hagyományos Otto-motor működésének lényege, hogy a munkafolyamat a négy dugattyúlöket alatt történik (a dugattyú a ciklus minden negyedik ütemében végez munkát). Az üzemanyag keverék beömlése és távozása a motortérbe illetve onnan ki, a vezérműtengely által működtetett szívó és kipufogószelepekkel történik. A motor működése során az első ütem a szívás. Ilyenkor a szívó szelep nyitva van, dugattyú lefelé haladva maga után szívja a porlasztóból benzin-levegő keveréket. Megfelelő mennyiségű levegőt keverve az elporlasztott üzemanyaghoz, a kész elegy a szívócsövön keresztül áramlik a hengerbe. A második ütem a sűrítés. A dugattyú fölfelé kezd mozogni, szívószelep zárva van, így a beszívott benzin-levegő keverék nem tud kiáramlani. A felfelé mozgó dugattyú így összesűríti a felette lévő keveréket. Ezután következik a harmadik ütem, a munkaütem. Amikor a dugattyú a legfelső helyzetet eléri, a gyújtógyertya elektródái között szikra jön létre. A szikra begyújtja az összesűritett üzemanyag levegő keveréket, ami robbanásszerűen elég. A keletkező gázok nagy nyomása a dugattyút lefelé löki. Ekkor következik a negyedik ütem, a kipufogás. A keletkező égéstermékek ebben az ütemben távoznak a hengerből. A kipufogószelep nyitva van, a dugattyú a legalsó állásból ismét felfelé halad, így kinyomva a kipufogócsőbe a keletkező égéstermékeket (3. ábra).

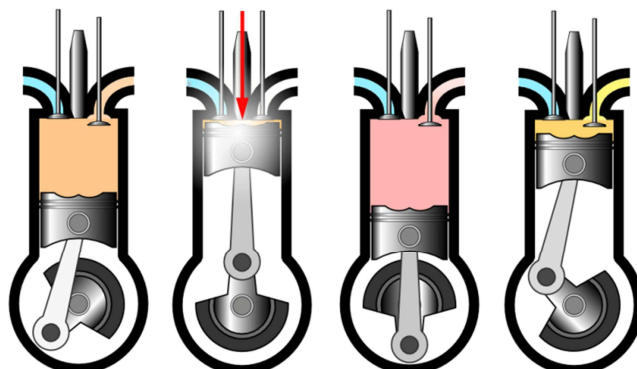


3. ábra: A négyütemű motor működésének lépései [4]

### 2.2 Négyütemű dízelmotor

A dízelmotor szerkezetében és működési elvében nagyon hasonló az Otto-motorhoz. Itt is megtalálható a négy ütem. Az első ütemben történik a szívás, a tiszta levegő beszívása. A második ütem itt is a sűrítés, ahol azonban a levegőt sűrítik össze. A nagy nyomás hatására a levegő felmelegszik, és ebbe a felmelegedett levegőbe injektálja bele az üzemanyagot az adagolószivattyú. A harmadik ütem a robbanás. A magas hőmérsékleten az üzemanyag-levegő keverék a gyulladási hőmérsékletig melegszik,

majd berobban. A robbanás a dugattyút lefelé löki, ekkor történik a munkavégzés. A negyedik ütemben szintén az ürítés, a nyitott kipufogószelepen keresztül távoznak a keletkező égéstermékek. (4.ábra)



4. ábra: A négyütemű dízelmotor működési elve [5]

Az alapvető különbség az Otto- és dízelmotorok között:

- a benzinmotor keveréket szív be, míg a dízelmotor tiszta levegőt,
- az Otto-motornál szikra gyújtja be az üzemanyag levegő keveréket, míg a másikonál öngyulladás gyújtja meg,
- az Otto-motor külső keveredésű és belső égésű, a dízel viszont belső keveredésű és belső égésű.

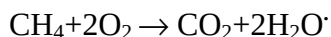
## 2.3 Károsanyag emissziók

A közúti gépjárművek motorjában az üzemanyag és a levegő keverékének tökéletes égésekor szén-dioxid ( $\text{CO}_2$ ) és vízgőz keletkezik. Az üzemanyag tökéletes égéséhez az optimális levegő-üzemanyag tömegarány szükséges, az ettől eltérő összetétel, valamint az égéshez rendelkezésre álló idő kevésbé tökéletes égést eredményez és a levegőszennyező gázok: szén-monoxid ( $\text{CO}$ ), szénhidrogének ( $\text{CH}_x$ ), nitrogén-oxidok ( $\text{NO}_x$ ), poliaromás szénhidrogének (PAH-ok), illékony szerves vegyületek (VOC-k), valamint aeroszolok (szálló por) növekvő kibocsátását eredményezi.

### 2.3.1 Szénhidrogének égése

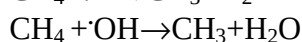
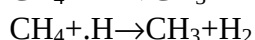
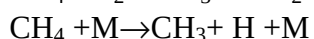
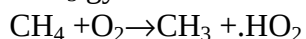
A benzinmotorok tüzelőanyagában található szénhidrogének az el nem égetett és az égés során keletkező szénhidrogénekből származnak. A szénhidrogének égése láncreakció. Az egyszerűség kedvéért a metán égésének példáján mutatnám be a folyamatot [6]:

A bruttó reakció:

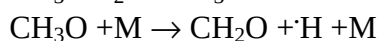
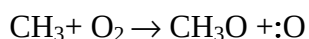


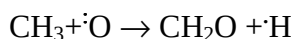
Az égés mechanizmusa:

1.  $\text{CH}_3$  gyök előállítása

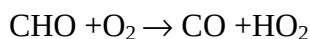
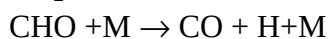
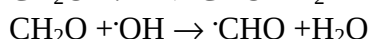
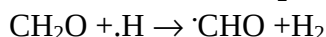


2. Formaldehid előállítása  $\cdot\text{CH}_3$ -ből

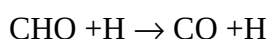




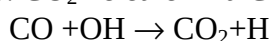
3.  $\cdot\text{CHO}$  előállítása  $\text{CH}_2\text{O}$ -ból



4. CO előállítása CHO-ból

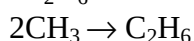


5.  $\text{CO}_2$  keletkezik a CO-ból



Az egészhez az elegendő gyököket a  $\text{H}_2/\text{O}_2$  reakciók adják

6.  $\text{C}_2\text{H}_6$  keletkezése és elégetése:



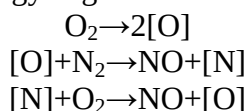
### 2.3.2 Nitrogén-oxidok

A nitrogén-oxidok ( $\text{NO}_x$ ) magas hőmérsékletű égés során a levegő nitrogén és oxigéntartalmából termikus oxidációval alakul ki. A leggyakrabban nitrogén-monoxid és nitrogén-dioxid keletkezik. A légkör nitrogénje villámlás és erdőtüzek esetében természetes módon oxidálódik és jönnek létre nitrogén-oxidok. Az antropogén  $\text{NO}_x$  kibocsátásnak a fő forrásai a hőerőművek, nitrogénművek, kazánok és a közlekedés (gépjárművekben az üzemanyag elégetésekor). Ezekben az esetekben a nitrogén fő forrása a levegő nitrogén tartalma, és csak kisebb arányban az alkalmazott tüzelőanyag vagy üzemanyag nitrogéntartalma. [7] A belső égésű motorokból kibocsátott nitrogén-oxidok körülbelül 75 %-a nitrogén-monoxid és 25 %-a nitrogén-dioxid, de az emisszió után a nitrogén-monoxid gyorsan reagál a környezeti levegő oxigénjével. A távozó füstgáz nitrogén-oxidjai több forrásból származhatnak:

- termikus NO mechanizmus
- prompt vagy gyors NO mechanizmus
- tüzelőanyag NO mechanizmus

**Termikus nitrogén-oxid** keletkezése:

A termikus nitrogén-oxid forrása a tüzeléshez felhasznált levegő nitrogénje és oxigénje. A reakció lassan, 1000 °C felett megy végbe a láng utáni térben, rendkívül hőmérsékletfüggő. A folyamatot befolyásolja még a légfelesleg tényező (nitrogén és oxigén koncentrációja), a tüzelőanyag minősége és a tüzelés módja. A reakció a Zeldovics mechanizmus szerint megy végbe:

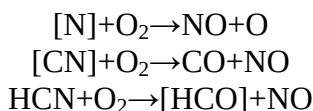
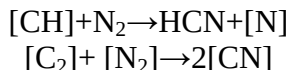


Légfelesleg tényező:

$$\lambda = \frac{\text{bevezetett levegő mólszám}}{\text{sztöchiometrikusan szükséges levegő mólszám}}$$

### **Prompt vagy gyors nitrogén-oxid** keletkezése

A prompt nitrogén-oxid a felhasznált levegő nitrogénjéből és oxigénjéből keletkezik a szénhidrogén-lángban szénhidrogén gyökök segítségével 1300 °C fölött. Az égetés oxigénhiányos környezetben történik, a szénhidrogén gyökök felgyorsítják a folyamatot. A Fenimore-mechanizmussal írható le a folyamat:

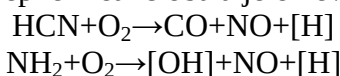


A rendszerben oxigénhiány áll fenn, a szénhidrogén-gyökök ezért reagálhatnak a nitrogénmolekulával. A prompt nitrogén-oxid a gyors égési reakciókkal együtt keletkezik, ezek pillanatszerűen játszódhatnak le, így az NO képződése is gyors.

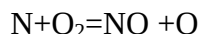
### **Tüzelőanyag nitrogén-oxid** keletkezése

A tüzelőanyagok szerves nitrogénvegyületeiből keletkezik a tüzelőanyag nitrogén-oxid 500-600 °C-on. Az itt felszabaduló nitrogén a levegő oxigénjével a lángban vagy a láng utáni térben nitrogén-monoxidot képez. A nitrogén-monoxid képződés kétféleképpen történhet:

- a tüzelőanyagban lévő nitrogén vegyületek kisebb nitrogén-tartalmú vegyületekre, gyökökre bomlanak (ammónia (NH<sub>3</sub>), amin [NH<sub>2</sub>] és hidrogén cianid (HCN), és ezek lépnek reakcióba a jelenlévő oxigénnel:



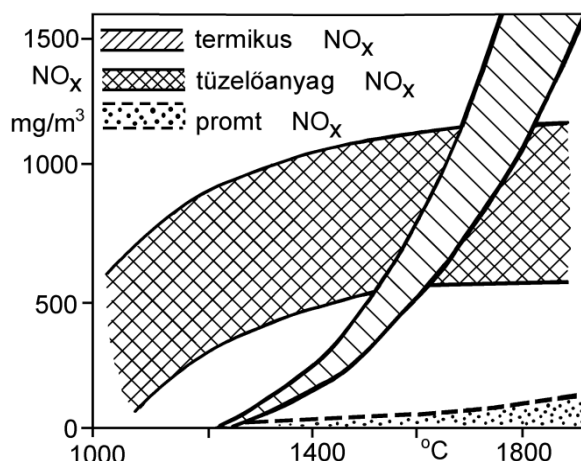
- a tüzelőanyagban lévő nitrogén vegyületeinek bomlása során [N] gyökök keletkeznek, melyek oxidálódnak:



A három nitrogén-oxid keletkezési mechanizmus jellemzőit a 2. táblázatban foglaltam össze, az 5. ábrán pedig a hőmérséklet hatását mutatom be a képződési módokra:

**2. táblázat: A nitrogén-oxidok keletkezési mechanizmusának jellemzői**

| Jellemző                     | Termikus NO                               | Prompt NO                                      | Tüzelőanyag NO                  |
|------------------------------|-------------------------------------------|------------------------------------------------|---------------------------------|
| <b>Előfordulás</b>           | magas hőmérsékletű (t>1000 °C) tüzelésnél | szénhidrogénben dús égetésnél                  | szén- és olajtüzelésnél         |
| <b>Forrás</b>                | levegő nitrogén és oxigén tartalma        | levegő nitrogén- és oxigén-tartalma, CH gyökök | tüzelőanyag nitrogén és levegő  |
| <b>Képződés helye</b>        | főként a láng után zónában                | lángban                                        | lángban                         |
| <b>Befolyásoló tényező</b>   | hőmérséklet és oxigénkoncentráció         | szénhidrogén- és oxigéntartalom                | tüzelőanyag nitrogén-tartalom   |
| <b>Reakciósebesség</b>       | lassú                                     | gyors                                          | gyors                           |
| <b>Tüzelőanyag</b>           | gáz és folyadék tüzelőanyag               | szénhidrogén alapú tüzelőanyag                 | nitrogéntartalmú tüzelőanyag    |
| <b>Csökkentés lehetősége</b> | tüzelési körülmények módosítása           | légfelesleg növelése                           | tüzelési körülmények módosítása |



5. ábra: A hőmérséklet hatása a keletkező nitrogén-oxidokra [8]

A tüzelőanyag nitrogén-oxidok előfordulásának elsősorban széntüzelésnél és nehéz fűtőolajoknál van jelentősége. Míg gáztüzelésnél a termikus és különösen a prompt nitrogén-oxid mennyisége nő. A belső égésű motoroknál a szikragyújtás környezetében 1500 – 2000 °C hőmérséklet is kialakulhat, amely különösen kedvező a szénhidrogén-oxidok képződésének és ezen keresztül a prompt nitrogén-oxid kialakulásának.

Az emisszió mértékének nagyobb hatékonyságú csökkentésére akkor van lehetőség, ha meg tudjuk határozni a legnagyobb mértékben lejátszódó keletkezési módot. Ha már ismerjük a keletkezés módját, akkor tudjuk megválasztani a megfelelő technológiát a kibocsátás csökkentésére.

### 2.3.3 Otto-és dízelmotorok károsanyag emissziói

A dízel- és a benzinüzemű gépjárművek kibocsátása eltérő, ami a két motortípus működésének eltéréséből adódik. A dízelmotorok legnagyobb részben a krakk-termékeket tartalmazó részecske-kibocsátásuk jelentős, egy nagyságrenddel meghaladja a benzin-motorokét [2]. A koromrészecskék jelentős felületük révén hordozóanyagként viselkednek, szorbeálják az el nem égett szénhidrogéneket. További jelentős szennyező az aeroszol formátumú szulfát, melyért a gázolaj kéntartalma a felelős. A benzinüzemű motorokból elsősorban gáznemű légszennyezők, míg a dízelüzemű motorokból főképpen szilárd részecskék (aeroszol) és NO<sub>x</sub>-ek kerülnek a levegőbe. A benzinüzemű és dízelüzemű motorok károsanyag kibocsátásának eltérését a 3. táblázat mutatja.

3. táblázat: A benzin- és dízelüzemű motorok károsanyag kibocsátása és egészségügyi hatásai

| Szennyezőanyag       | Benzinüzem                            | Dízelüzem | Benzinüzem/<br>Dízelüzem | Egészségügyi hatás   |
|----------------------|---------------------------------------|-----------|--------------------------|----------------------|
|                      | g emisszió/ dm <sup>3</sup> üzemanyag |           |                          |                      |
| Szén-monoxid         | 350                                   | 20        | 17,5                     | nem rákkeltő         |
| Szénhidrogének       | 50                                    | 39        | 1,28                     | rákkeltő             |
| Nitrogén-oxidok      | 17                                    | 23        | 0,74                     | rákkeltő             |
| Ólom-vegyületek      | 0,4                                   | 0         | -                        | rákkeltő             |
| Korom<br>(részecske) | 1,5                                   | 8         | 0,2                      | rákkeltő             |
| Kén-dioxid           | 0,2                                   | 8         | 0,03                     | csökkenő tüdőfunkció |

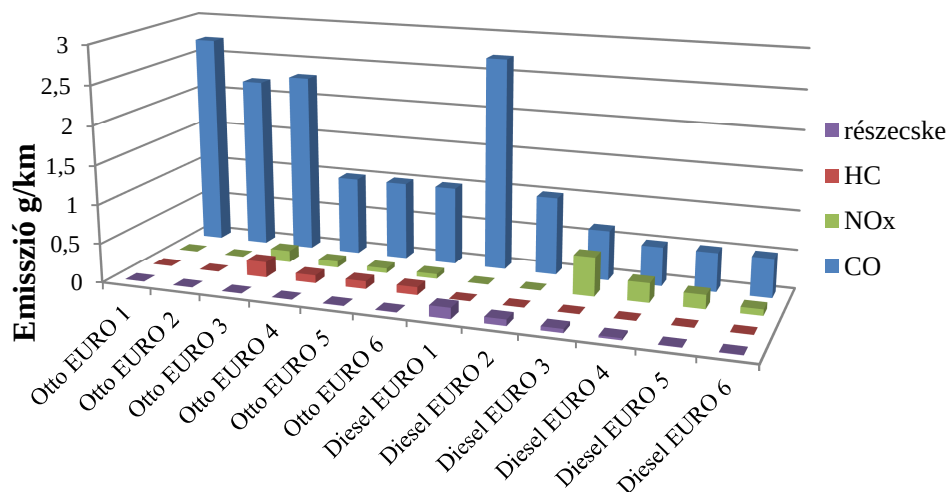
A közép-európai országok uniós csatlakozása óta kiemelt szerepet kapott a környezet védelme és ezen belül is a levegő védelme. Magyarországon többek között a következő jogszabályok szabályozzák az emberi létet biztosító környezeti levegő minőségét:

- 306/2010. (XII. 23) Kormányrendelet a levegő védelmével kapcsolatos egyes szabályokról,
- 4/2011. (I. 14.) VM rendelet a levegőterheltségi szint határértékeiről és a helyhez kötött légszennyező pontforrások kibocsátási határértékeiről,
- 5/2011. (I. 14.) I. 14.M rendelet egyes miniszteri rendeletek levegővédelemmel összefüggő módosításáról,
- 6/2011. (I.14.) VM rendelet a levegőterheltségi szint és a helyhez kötött légszennyező források kibocsátásának vizsgálatával, ellenőrzésével, értékelésével kapcsolatos szabályokról,
- 4/2002. (X. 7.) KvVM rendelet a légszennyezettségi agglomerációk és zónák kijelöléséről,
- 6/1990. (IV. 12.) KöHÉM rendelet a közúti járművek forgalomba helyezéséről és forgalomban tartásának műszaki feltételeiről. [9]

Magyarország EU tagállam révén az Európai Unió jogrendjét követi. Az Unióban jogszabály szabályozza az újonnan forgalomba kerülő gépjárművek károsanyag kibocsátását, ezek az EURO normák. A kibocsátási normákat több uniós irányelv alapján határozzák meg, melyek az idő előrehaladtával egyre szigorodnak. A következő 4. táblázatban és 6. ábrán foglaltam össze a különböző EURO normák határértékeinek változását:

**4. táblázat: Benzin- és dízelmotoros személygépjárművek emissziójának határértékei (EU) [10]**

|              | Fokozat | Bevezetés<br>éve | Kibocsátás, g/km |     |                 |                    |           |
|--------------|---------|------------------|------------------|-----|-----------------|--------------------|-----------|
|              |         |                  | CO               | HC  | NO <sub>x</sub> | HC+NO <sub>x</sub> | Részecske |
| Otto-motorok | EURO 1  | 1993             | 2,72             | -   | -               | 0,97               | -         |
|              | EURO 2  | 1996             | 2,2              | -   | -               | 0,5                | -         |
|              | EURO 3  | 2000             | 2,3              | 0,2 | 0,15            | -                  | -         |
|              | EURO 4  | 2005             | 1                | 0,1 | 0,08            | -                  | -         |
|              | EURO 5  | 2009             | 1                | 0,1 | 0,06            | -                  | 0,005     |
|              | EURO 6  | 2014             | 1                | 0,1 | 0,06            | -                  | 0,005     |
| Dízelmotorok | EURO 1  | 1992             | 2,72             | -   | -               | 0,97               | 0,14      |
|              | EURO 2  | 1996             | 1                | -   | -               | 0,7                | 0,08      |
|              | EURO 3  | 2000             | 0,64             | -   | 0,5             | 0,56               | 0,05      |
|              | EURO 4  | 2005             | 0,5              | -   | 0,25            | 0,3                | 0,025     |
|              | EURO 5  | 2009             | 0,5              | -   | 0,18            | 0,23               | 0,005     |
|              | EURO 6  | 2014             | 0,5              | -   | 0,08            | 0,17               | 0,005     |



6. ábra: Otto- és dízel személygépjárművek emisszió határértékei

Napjainkban mind az Otto-, mind a dízelmotorokra az EURO 5-ös normák vonatkoznak, csak ezeknek a határértékeknek megfelelő gépjárművek helyezhetők forgalomba. 2014-ben tervezik bevezetni a szigorúbb EURO 6 normákat. 2010-ben Magyarországon a közúti gépjárművek átlagéletkora 11,41 év volt. Az 1. ábra alapján elmondható, hogy a Magyarországon forgalomban lévő gépjárművek legnagyobb része 6-15 éves kor közötti. 6-15 évvel ezelőtt még az EURO 1 – 3 volt hatályban. Ha továbbra is ezt az értéket tartjuk, akkor prognosztizálható, hogy 10 év múlva jelentősen csökkenhet- a 6. ábrát figyelembe véve - a károsanyag kibocsátás, hiszen akkor már az EURO 4-5 normáknak megfelelő gépjárművek lesznek zömmel forgalomban. A fent ismertetett kibocsátási határértékek –a szakirodalmi adatok alapján- csak pótlólagos kipufogógáz szennyezés csökkentő módszerek alkalmazásával valósítható meg, melynek egy releváns módszere a katalitikus átalakítás.

### 3 Gépjárművek kipufogógáz emissziójának csökkentése

A kémiai átalakulások során molekulán belüli és molekulák közötti kötés átrendeződések mennek végbe. A reakció több lépésben (közttermékeken) játszódik le, mert egyszerre csak egy kötés szabadulhat fel vagy jöhet létre. A kémiai reakció sebessége függ:

- az átrendeződő kötések kötéserősségétől
- hőmérséklettől
- és a reagáló anyagok koncentrációjától.

A reakció sebességét katalizátorokkal növelik. A katalizátor jelenlétével elősegíti a kívánt reakciót, azonban a végtermékbe nem épül be. A reakció útja során átmenetileg lép kölcsönhatásba a reaktánszal, majd a termékkel. A katalitikus reakció során az átalakulás lépésekben megy végbe, a katalizátor és a reagáló molekulák között specifikus kölcsönhatás jön létre. A katalizátor szelektívvé teszi az átalakulást, mert csak egy specifikus átalakulás sebességét gyorsítja. [11]

### 3.1 Gépjárművekben alkalmazott katalizátorok

A gépjárműveknél heterogén katalizátorokat használnak, melyeknél a gázfázisban lévő vegyületek a katalizátoranyag felületén lévő aktív helyeken lépnek egymással reakcióba

A heterogén katalízis rendszerében 5 zónát különböztetnek meg. A szilárd anyag belsejéből indulva a zónák a következőképpen néznek ki:

- 1. zóna a katalizátor főtömege, ezen helyezkedik el a
- 2. zóna a katalizátor aktív felülete, amit reagáló eleggyel kölcsönhatásba lépő atomok és atomcsoportok építenek fel.
- 3. zónában a reagáló atomok helyezkednek el, kötéstrendeződések játszódnak le, ehhez kötődik a
- 4. zóna a szubsztitensek zónája, ahol nem történik kötéstrendeződés.
- 5. zóna a transzport folyamatok zónája, ahol a áramlással vagy diffúzióval történik a transzport folyamat. A különböző zónák és ezen lépések sorozata számos publikációban szerepelnek.(ezért most itt részletesebben nem térnek ki rá)

A heterogén katalízis folyamatának legfőbb lépései a következők:

1. a reagáló anyag molekulái (gáz halmazállapotú részecskék) diffúzióval a katalizátor felületére jutnak
2. a reaktánsok adszorbeálódnak a katalizátor felületére, így kémiai kötéseik fellazulnak, így csökken a reakcióhoz szükséges aktiválási energia
3. a kémiai reakció lezajlása a reagensek között, átmeneti köztitermék jön létre
4. a keletkezett termékek deszorpciója a katalizátor felületéről
5. a termékek a kipufogógázzal távoznak a katalizátorról, ezzel szabaddá válik az aktív centrum, így a folyamat az elejéről kezdődik. [11]

A gépjárművek katalizátoraiban lezajló legfontosabb kémiai reakciók:

HC és CO átalakítás (oxidáció):

1.  $H_nC_m + (m+n/4) O_2 \rightarrow m CO_2 + n/2 H_2O$
2.  $H_nC_m + 2 H_2O \rightarrow m CO_2 + (2+n/2) H_2$
3.  $CO + 1/2 O_2 \rightarrow CO_2$
4.  $CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$

NO<sub>x</sub> átalakítás (redukció):

5.  $CO + NO \rightarrow 1/2 N_2 + CO_2$
6.  $H_nC_m + 2(m+n/4) NO \rightarrow (m+n/4) N_2 + H_2O + m CO_2$
7.  $H_2 + NO \rightarrow 1/2 N_2 + H_2O$

Az oxidációs folyamatok (1-4) oxigén jelenlétében, légszerűlegben mennek végbe. A szén-monoxidból és a szénhidrogénből az egészségre ártalmatlan szén-dioxid és víz keletkezik.

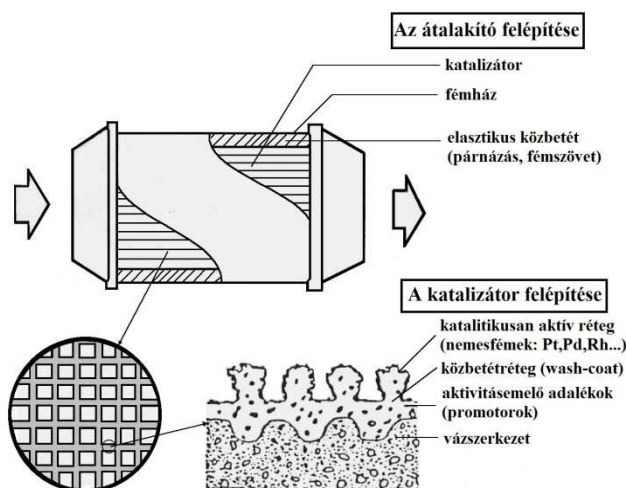
A 2 és 4 reakció a vízgázreakció. Oxigénhiány esetén a szén-monoxidot és a szénhidrogéneket a bőségesen jelenlévő vízgőz segítségével oxidálják.

A többfunkciós katalizátoroknál a nitrogén származékok redukciója az 5-7 egyenletek szerint játszódik. A 6. reakció oxigénfeleslegben (oxidáló közeg) is lejátszódik, szegény keverékű rendszereknél fontos. Egyéb nemkívánatosak, másodlagos szennyezők keletkezhetnek, ezek a megfelelő katalizátorokkal elnyomhatók. [12]

Katalizátorok szerkezeti felépítése

Katalizátoranyagként általában nemesfémeket (platina, ródium, palládium) alkalmaznak. Hatékonyságuk növelése érdekében nagy fajlagos felületű hordozóra viszik fel őket. Ilyen nagy felületű anyagok a különböző oxidok és szulfidok, melyek közül a leggyakoribb az alumínium-oxid. Ezt az alumínium-oxid bevonatot vékony rétegben rögzítik a kerámiából vagy fémből készített hordozóra (monolitra). A katalizátor tehát 3 fő részből áll (7. ábra):

1. Monolit (hordozó), ez szolgál a katalizátor vázaként. Általában a méhsejtszerű kialakítást alkalmazzák, a legnagyobb felületet kialakítása érdekében. 1400 °C-on is ellenálló.
2. A katalitikus anyagot rögzítő bevonat (wash-coat). A monolitok felülete önmagukban kicsi (3-5 m<sup>2</sup>), ezért alumínium-oxidot visznek fel rá. A bevonattal a fajlagos felület 20-30 000 m<sup>2</sup> is lehet katalizátoronként.
3. Katalitikus aktív réteg. A bevonatra bemártással viszik fel a katalizátoranyagokat. A bevonattal ellátott monolitot a nemesfémek sóoldatába mártják, a felvitt nemesfémek mennyiségét az oldatba mártás időtartamával szabályozzák. A nemesfémek mennyisége a katalizátor hatásfokának szempontjából meghatározó, de csak egy bizonyos felületi koncentrációig érdemes növelni. Az aktivitás növelése érdekében különböző stabilizáló anyagokkal egészítik ki az aktív felület mikrostruktúráját. Ezek az „öregedési” jelenségek és a nemkívánatos katalitikus reakciók visszaszorítására szolgálnak. [12]



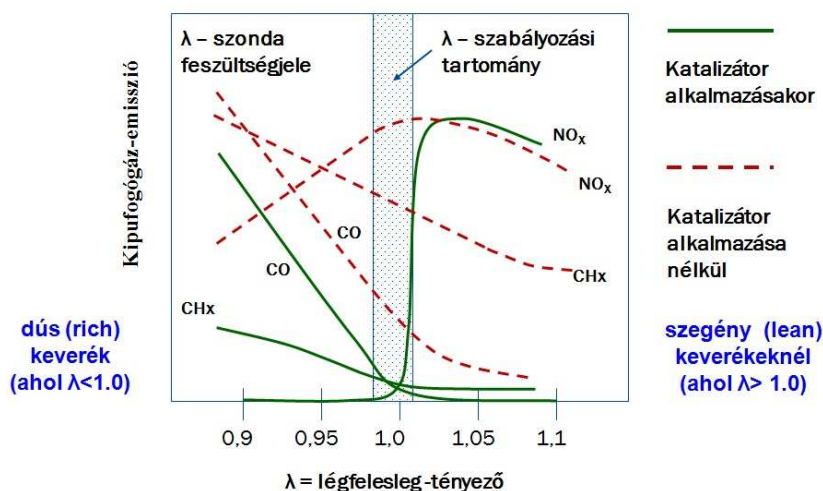
7. ábra: Katalizátor beépítési módja, kialakítása [13]

## 3.2 Az emisszió csökkentés fejlődése

### 3.2.1 Emisszió csökkentése katalizátor nélkül

1968-ban az USA-ban kiadott szabvány miatt indult meg a gépjárművek károsanyag emissziójának csökkentése. Elsőként szegény keverékkel próbálkoztak (sok levegő-kevés üzemanyag, nagy légfelesleg-tényező) a szénmonoxid és a szénhidrogének csökkentésére. A módszer erre alkalmas volt, azonban ennek következtében megnőtt a kibocsátott nitrogén-oxidok mennyisége. A 8. ábra szemlélteti a szegény keveréknél a kipufogógáz szén-monoxid, szénhidrogén és nitrogén-oxid tartalmának alakulását. Ez a megoldás egy idő után az üzemanyag-fogyasztás növekedésével és a motor

teljesítményének csökkenésével járt. Új megoldásként a kipufogógázok katalitikus konvertálását választották.

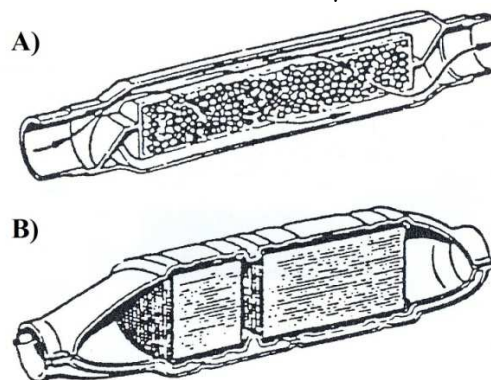


8. ábra: A kipufogógáz emisszió alakulása  $\lambda$  légfesleg-tényező függvényében [14]

### 3.2.2 Első generációs (oxidációs) katalizátorok

A kipufogógázok szén-monoxid- és szénhidrogén tartalmát a határértékek alá tudták szorítani az oxidációs katalizátorokkal. 200 m<sup>2</sup>/g fajlagos felületű  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hordozón néhány tized tömeg% Pt/Pd-t tartalmazott 5/2,5 arányban. A nemesfémek mennyisége a konverteren 1,4-3 g volt. Kezdetekben (1970-es évek) két típus terjedt el (9. ábra) :

- granulátum típusú: 2-4 mm átmérőjű gömb alakú  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> szemcsés töltet
- kerámiából készült méhsejt szerkezetű hordozó: monolit, melyben hosszirányú csatornák futnak és ezek falán található a  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> hordozó



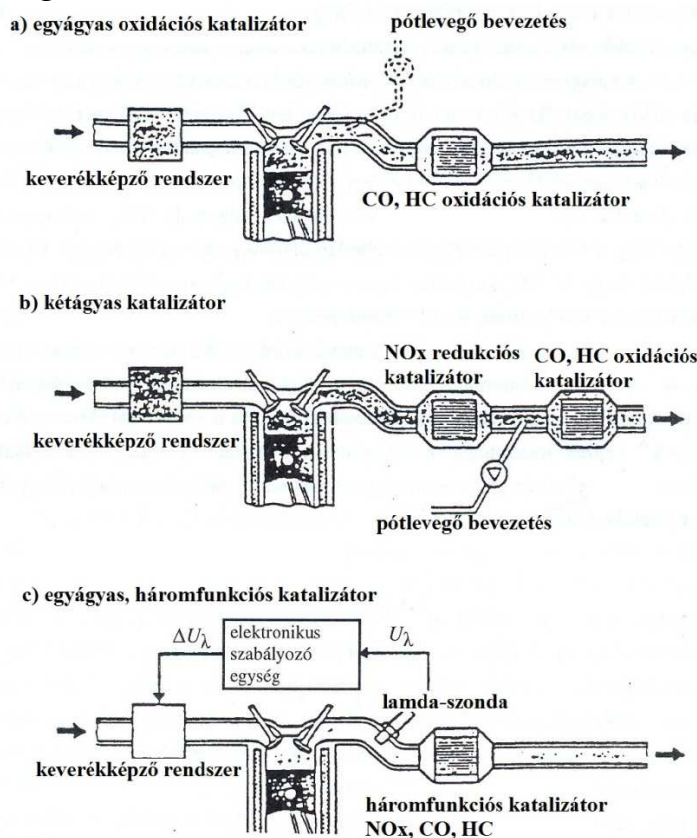
9. ábra: Első generációs katalizátorok A) granulátum típusú hordozó B) kerámiából készült méhsejt szerkezetű hordozó [15]

### 3.2.3 Második generációs (kétágyas: dual bed) katalizátorok

A későbbiekben a nitrogén-oxid kibocsátást is határérték (1,2 g/km) alá kellett vinni. A tisztítási folyamathoz két különálló katalizátorágyat építettek egymás után a rendszerbe. Az első katalizátorágyon megy végbe a nitrogén-oxidok redukciója. Méhsejt monolitra ródiumot visznek fel és dús keverék mellett minimális ammónia képződéssel nagyon jól redukálhatók a nitrogén-oxidok. A második katalizátorágyon történik a szén-monoxid és a szénhidrogének oxidációja (10. ábra). Az első katalizátorágyat elhagyó gázba levegőt adnak be. A katalizátor itt is méhsejt monolit, Pt/Pd-ot tartalmaz 5/1 tömeg% arányban. Az alkalmazása napjainkra szinte teljesen visszaszorult az újabb, jobb hatásfokú technológiák térhódítása miatt. [15]

### 3.2.4 Harmadik generációs (háromfunkciós: three way) katalizátorok

A háromfunkciós katalizátoroknál a kétféle oxidáció és a redukció egyidejűleg megy végbe. Napjainkban ezt a megoldást alkalmazzák a legtöbb helyen, az eddigi technológiák közül ez üzemeltethető a legjobb hatásfokkal. Ahhoz, hogy az összes reakcióhoz megfelelő körülményeket biztosítsunk a léghesleg-tényezőnek ( $\lambda$ ) 1-nek kell lennie. A levegő/üzemanyag robbanóelegy sztöchiometrikus összetételéről a Lambda-szonda ( $\lambda$ -szonda) gondoskodik (10. ábra). A  $\lambda$ -szonda a motorból kilépő kipufogógáz oxigéntartalmát méri úgy, hogy a külső levegő oxigéntartalmához viszonyítja. Ezzel a módszerrel a károsanyag-kibocsátás 85-90% is csökkenthető. A rendszert lehet  $\lambda$ -szonda beszerelése nélkül is üzemeltetni, azonban itt a hatásfok csak 50-55% körül mozog. [15]



10. ábra: Katalizátor rendszerek a gépjárművekben [15]

A Lambda-szonda ( $\lambda$ -szonda) a gépjárművek kipufogórendszerébe beépített levegőszabályzó eszköz. Kettős szerepe van, egyrészt a működéshez szükséges oxigénszint beállításához szolgáltat elektromos jelet, másrészt a megfelelő üzemanyag/levegő mennyiségi szabályozását végzi. A többfunkciós katalizátorok megfelelő működéséhez  $\lambda = 1$  értéken tartása rendkívül fontos. A szonda egy kerámiából, általában cirkónium-oxidból készült gyűszű alakú hengeres kialakítású. A kerámiatest a szilárd elektrolit funkcióját látja el. A kerámiatubus a katalizátor előtt a kipufogócsonkba nyúlik, így a külső fala a kipufogógázzal, míg a belső fala a környezeti levegővel érintkezik (11. ábra). A kerámialapnak a két oldalán az oxigén parciális nyomás alapján kialakult potenciálkülönbséget mérjük. Ha a két oldalon eltér az oxigén parciális nyomása, akkor a kerámia belső és külső oldalára erősített fémlamezok között –az alábbi egyenlet szerint– elektromos feszültség jön létre. Elektromos erő hatására az oxidionok elmozdulásával áram jön létre. A két oldal közötti feszültségkülönbséget a hőmérséklet emelkedésével gyorsabban követi. A  $\lambda$ -szonda

csak 300 °C felett kezd el dolgozni. Amíg nem éri ezt a hőmérsékletet, addig az elektromos vezérlőegysége a gépjárműnek egy előre beállított üzemanyag/levegő arányt biztosít. A megfelelő működéséhez 350-850 °C hőmérséklet szükséges.

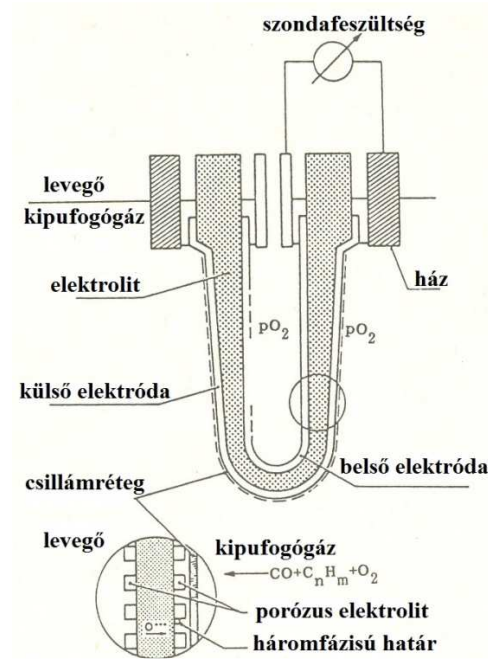
$$E = E_0 + \frac{RT}{nF} \ln \frac{\text{levegő oxigénkonc.}}{\text{kipufogógáz levegő konc.}}$$

Ahol:

R- egyetemes gázállandó

n=2

F- Faraday szám



11. ábra: Lambda-szonda felépítése [14]

## 4 Célkitűzések

Az irodalmi rész harmadik fejezetében bemutattam, hogy a belső égésű motorokban végbemenő égés során keletkező, környezetet szennyező, káros komponenseknek a kipufogó gázból történő eltávolításának egy lehetséges útja a –motortípustól függő– katalitikus átalakítás.

Dolgozatom célja, hogy tanulmányozzam az aktív anyagot tartalmazó hordozófázis előállításának alternatíváit, megvizsgáljam az előállított katalizátorok morfológiai és szerkezeti tulajdonságait nyers és aktivitásvizsgálatok utáni állapotokban, valamint oxidációs, redukációs folyamatokban a reakciókat gyorsító hatásfokukat.

A tématerületre vonatkozó szakirodalom feldolgozására és előkészítéleteinkre alapozva kutatómunkánkban behatároltuk az alkalmazható ún. háromfunkciós katalizátorok főbb jellemzőit, ennek megfelelően a katalitikus folyamatban fő szerepet játszó hordozó és aktív fázis kialakítására törekedtem, a katalizátor blokk vázszerkezetével nem foglalkoztam. Kereskedelmi  $\gamma$ -alumínium-oxid hordozóra és annak hőkezelt formájára impregnálással kialakított Pd-CeO<sub>2</sub> aktív anyagot tartalmazó katalizátor mintákat állítottunk elő (1x, 2x és 3x impregnált, illetve a hőkezelt 1x impregnált minták).

## II. Gyakorlati rész

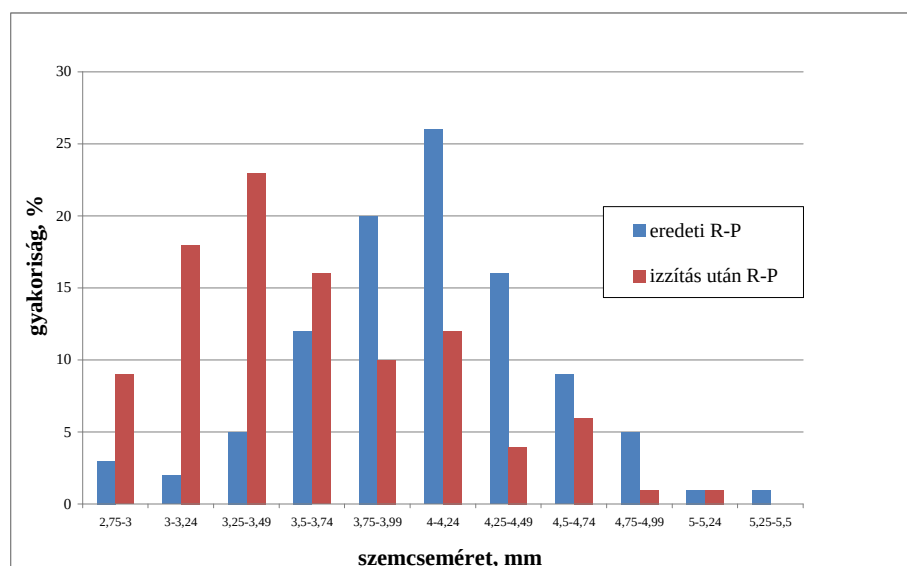
### 5 Katalizátor minták előállítása

A vizsgálatokhoz 4 mintát állítottam elő, 1x, 2x és 3x impregnált, illetve a hőkezelt (1 °C/min felfűtéssel 550 °C-ig, majd 8 órán keresztül állandó hőmérséklet) 1x impregnált minták (12. ábra). Első lépésként 100 cm<sup>3</sup> ismert tömegű kereskedelmi  $\gamma$ -alumínium-oxid hordozót vettünk ki. Három minta esetében következő lépésként meleg impregnálást végeztem. A pórusokba behatolható folyadék mennyiségét tiszta desztillált vizes impregnálás utáni tömegnövekedésből határoztam meg (az így meghatározott pórustérfogat közel megegyezik a későbbi pórustérfogat vizsgálattal meghatározott összes pórustérfogat értékkel, azaz a szemcsék tapadó nedvességtartalma elhanyagolható). A katalizátor minták előállításához használt impregnáló oldat alumínium-nitrát, cérium-nitrát és palládium nitrát salétromsavas oldata volt. Az impregnáló oldat pontosabb összetételét újdonságtartalma miatt nem részletezném, a felhasznált anyagok, oldatok analitikailag a legtisztább minőségűek voltak. Az impregnálás után 24°C-os szobahőmérsékleten szárítottam, majd 1 napig szárítószekrényben 105 °C-on szárítottam. A szárítás után hőmérsékletprogramozott kalcinálást végeztem csökekemencében, 1 °C/min felfűtéssel 550 °C-ig, majd 8 órán keresztül ezen a hőmérsékleten tartottam. A hőkezelt negyedik minta esetében elsőként végeztem a hőmérsékletprogramozott kalcinálást is, majd ezt követte az többi három mintán bemutatott folyamat.



12. ábra: A hordozók impregnálás előtt 1x, 2x impregnálás után és aktivitásmérés után

A kereskedelmi  $\gamma$ -alumínium-oxid és a hőkezelés utáni  $\gamma$ -alumínium-oxid hordozó golyók szemcseméret gyakoriságát is vizsgáltam. A vizsgálathoz 100-100 db golyó átmérőjét mértem meg. Azt vizsgáltam, hogy történik-e zsugorodás a hőkezelés hatására. A 13. ábrán is jól látható, hogy a hőkezelés hatására zsugorodás történt. A legtöbb golyó átmérője 2,75-3,74 mm között mozgott, míg előtte 3,5-4,49 között volt.



13. ábra: Szemcseméret gyakoriság

A későbbiekben a minták könnyebb azonosítása érdekében az 5. táblázatban foglaltam össze a minták rövidítéseit és a hozzájuk tartozó leírást.

5. táblázat: Magyarázat a mérési táblázatokhoz és ábrákhoz

| Minta jele    | A minta készítés jellemzői                                                                                 |
|---------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Al            | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Rhone-Pullenc (R-P)                                               |
| Al 550        | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , (R-P) 1 °C/min, 550 °C, 8h                                      |
| PdCe-I/Al     | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (R-P) 1x impregnált                                               |
| PdCe-I/Al*    | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (R-P) 1x impregnált, aktivitás mérés után                         |
| PdCe-II/Al    | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (R-P) 2x impregnált                                               |
| PdCe-II/Al*   | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (R-P) 2x impregnált, aktivitás mérés után                         |
| PdCe-III/Al   | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (R-P) 3x impregnált                                               |
| PdCe-III/Al*  | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (R-P) 3x impregnált, aktivitás mérés után                         |
| PdCe-I/Al550  | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , (R-P) 1 °C/min, 550 °C, 8h ,1x impregnált                       |
| PdCe-I/Al550* | $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , (R-P) 1 °C/min, 550 °C, 8h ,1x impregnált, aktivitás mérés után |

## 6 Katalizátor minták szerkezet vizsgálata

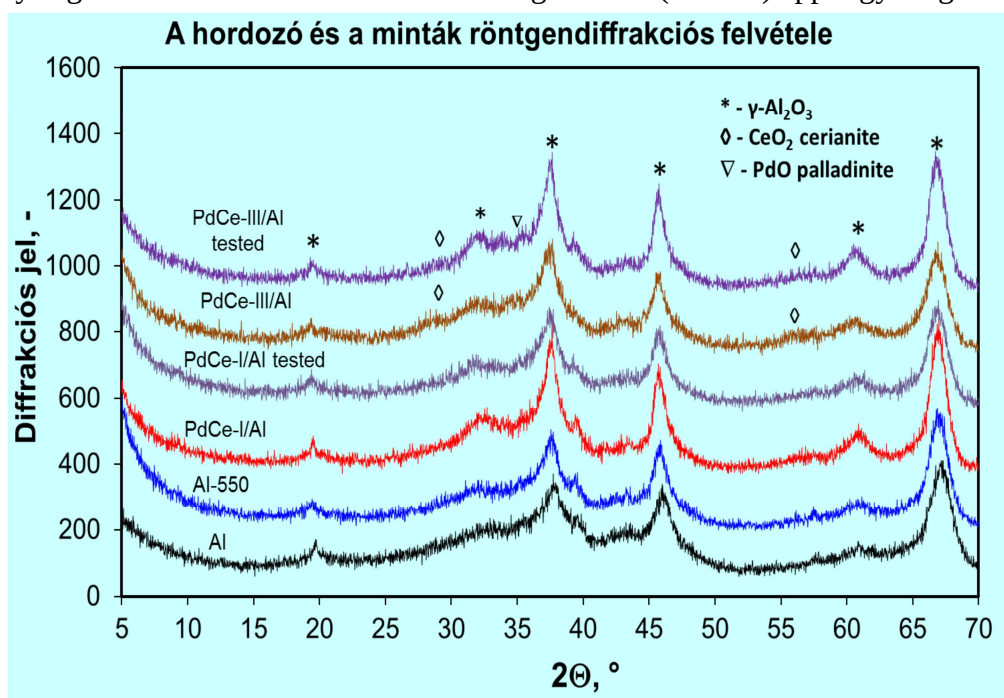
### 6.1 A minták fázisösszetételének meghatározása röntgendiffrakciós módszerrel

A katalizátor minták krisztallográfiai fázisösszetételének meghatározására a röntgendiffrakció (XRD) módszerét alkalmaztam. A röntgenfelvételek a Pannon Egyetem Anyagmérnöki Intézetében készültek Philips PW 204 típusú röntgendiffraktométerrel Cu-K $\alpha$  sugárforrást alkalmazva. Az eljárás alapelve az, hogy a vizsgált mintában található különböző összetételű és kristályszerkezetű anyagok a mintára bocsátott, adott hullámhosszú röntgensugarat különböző szöggel hajlítják el,

amely szögelhajlás a röntgen-diffraktogramon regisztrálható. A röntgendiffraktogramon a szögelhajlás függvényében, amely az anyagi minőségre jellemző, az intenzitás jelenik meg. Az egyes minták XRD felvételeit összesítve a 14. ábrán szemléltetem.

### 6.1.1 Az XRD vizsgálatok eredménye

Az  $\text{Al}_2\text{O}_3$  hordozó és a belőle készített minták szerkezete nagyon hasonló, jellemző rá a  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  szerkezet. A 14. ábrán látható, hogy háromszoros impregnálással előállított mintáknál a cérianit és a palladinit épphogy kimutatható. Használat hatására (250-700 °C közötti aktivitási vizsgálatok hatására) a kristályos szerkezet gyakorlatilag nem változik, kivéve a palladinit csúcsánál, mert ott a kristályszerkezet kicsit dominánsabb. A palladinit és cérianit csúcsai azért nem láthatóak, mert amorf szerkezetűek, illetve mennyiségük az XRD módszer kimutathatósági határát ( $\sim 1$  m%) épphogy meghaladja.



14. ábra: A hordozó és a minták röntgendiffrakciós felvétele

## 6.2 Morfológiai vizsgálat

A morfológiai vizsgálatok kiterjedtek a nitrogén adszorpció (fajlagos felület, mikro- és mezopórus-térfogat és -eloszlás), valamint a higanypenetráció (mezo- és makropórus-térfogat és -eloszlás) meghatározására is.

### 6.2.1 Nitrogén adszorpció vizsgálat

A katalizátorok fajlagos felületének nagyságát nitrogén adszorpció módszerrel vizsgáltam. A gáztalanított felületű mintákon a cseppfolyós nitrogén atmoszférikus nyomású forráspontján ( $-196$  °C) felvett nitrogén gáz adszorpció-deszorpció izotermájából, az adszorpció izoterma kezdeti szakaszából a BET-féle fajlagos felületét és a deszorpció izoterma szakaszából a BJH-elmélet alapján a pórustérfogatát (1,7-300 nm pórusátmérő intervallumban) és pórustérfogat eloszlását Micromeritics gyártmányú, ASAP-2000 típusú készülékkel határoztuk meg. A méréshez a felhasznált nitrogén gáz 99,995 %-os tisztaságú volt, ami a Messer Hungarogáz Kft. terméke.

#### 6.2.1.1 Számítás során használt egyenletek

A mérés során kapott adatokból (nitrogén relatív parciális nyomása a hozzá tartozó adszorpciós térfogattal) számolható a fajlagos felület (BET-egyenlet) és a mikro- és mezopórusok térfogata (BJH-elmélet) [16].

BET egyenlet:

$$\frac{p}{V_a \cdot (p_0 - p)} = \frac{1}{V_m \cdot C} + \frac{C-1}{V_m \cdot C} \cdot \frac{p}{p_0}$$

Ahol:

p: a nitrogén nyomása (Hgmm)

p<sub>0</sub>: az adszorptívum egyensúlyi gőznyomása a mérés hőmérsékletén (Hgmm)

V<sub>m</sub>: a monomolekuláris borítottsághoz szükséges gáz térfogata (cm<sup>3</sup>/g)

V<sub>a</sub>: az adott p nyomás eléréséig adszorbeált gáz térfogata (cm<sup>3</sup>/g)

Fajlagos felület kiszámítása:

$$F_{BET} = \frac{f \cdot V_m \cdot N}{V_0 \cdot n}$$

Ahol:

f: egy adszorbeált molekula felület-szükséglete (cm<sup>2</sup>)

N: az Avogadro-szám, 6,023·10<sup>23</sup>/mol

V<sub>0</sub>: a folyékony adszorptívum móltérfogata a mérés hőmérsékletén (cm<sup>3</sup>)

n: az átszámítási tényező m<sup>2</sup>-re

Kelvin egyenlet:

A Kelvin-elmélet alapján (kisméretű kapillárisokban bekövetkező egyensúlyi gőznyomás csökkenés) kiszámolhatjuk a mérés során elért nitrogén parciális nyomáshoz tartozó pórusok átmérőjét.

$$D_k = - \frac{4 \cdot V_0 \cdot \sigma \cdot \cos \phi}{R \cdot T \cdot \ln \frac{p}{p_0}}$$

Ahol:

σ: a felületi feszültség (dyn/cm)

R: az egyetemes gázállandó, 8,314·10<sup>7</sup> (erg/mol K)

D<sub>k</sub>: a Kelvin-átmérő (cm)

φ: a cseppfolyós nitrogén nedvesedési szöge

A pórus átmérőjét csökkenti az adszorbeált réteg vastagsága (t, nm), melyet az adott nitrogén parciális nyomás értékhez a Harkin-Jura elmélettel vettem figyelembe.

Harkins-Jura egyenlet:

$$t = 0,1 \cdot \left( \frac{13,990}{0,034 - \lg \frac{p}{p_0}} \right)^{0,5}$$

A rendszerből kivett nitrogén térfogatát folyadék halmazállapotra átszámolva meghatározható a két egymás után beállított nitrogén parciális nyomás értékhez tartozó

pórusátmérő intervallum és azokból eltávozott cseppfolyós nitrogén térfogata (rész pórustérfogat, cm<sup>3</sup>/g).

### 6.2.2 Higanypenetrációs vizsgálat

A porozitás és pórusméret-eloszlás meghatározásának egyik módszere a higanypenetrációs módszer, amely a nem nedvesedő folyadékok kapillárisokban való viselkedésén alapul. A 10-15 000 nm átmérőjű pórusok térfogatát Carlo\_Erba gyártmányú Model '70 típusú poroziméterrel végeztem.

A bemért vizsgálandó anyagot dilatometerbe helyezve 0,05-0,02 torr nyomásig kell evakuálni, majd higannyal feltölteni, és ezután a készülék autoklájába helyezni. Elindítva a mérést, a készülék automatikusan regisztrálja kördiagramon a nyomás függvényében a dilatometer kapillárisában bekövetkező higany szint-csökkenést, amelyet egy szintkövető motor elmozdulása adja.

#### 6.2.2.1 Kapott eredmények értékelése

A diagramról leolvasható a különböző nyomásokhoz tartozó higany szint csökkenés, amelyből a kalibrációs görbe alapján még le kell vonni a higany összenyomhatóságából adódó higany szintcsökkenést. A nyomás értékeiből számolható a higannyal feltöltött pórusok átmérője, míg a higany szint csökkenéséből a megtöltött pórusok térfogata.

Pórus átmérője:

$$D_i = - \frac{4 \cdot \sigma \cdot \cos \varphi}{p_{t,i} + 1}$$

Ahol:

$D_i$  a higannyal megtöltött pórus átmérője, nm

$p_{t,i}$  az i-edik leolvasott túlnyomás értéke, bar

$\sigma$  a higany felületi feszültsége, 0,480 N/m, kg/s<sup>2</sup>

$\varphi$  a nedvesedési szög, 141,3°

Pórustérfogat százalékos eloszlása:  $R = (\text{aktuális Hg csökkenés} / \text{összes Hg csökkenés}) \cdot 100 (\%)$

A higannyal megtöltött pórustérfogat számítása:

$$V_{pi} = \frac{h_i \cdot 0,1 \cdot d^2 \pi}{4 \cdot G}$$

Ahol:

$d$ : a dilatometer kapillárisának átmérője, 0,3 cm

$R$ : pórustérfogat százalékos eloszlása, %

$V_{pi}$ : a higannyal megtöltött pórustérfogat, cm<sup>3</sup>/g

$p_{t,i}$ : nyomás, bar

$h_i$ : Hg szint csökkenés, mm

$G$ : bemért minta tömege, g

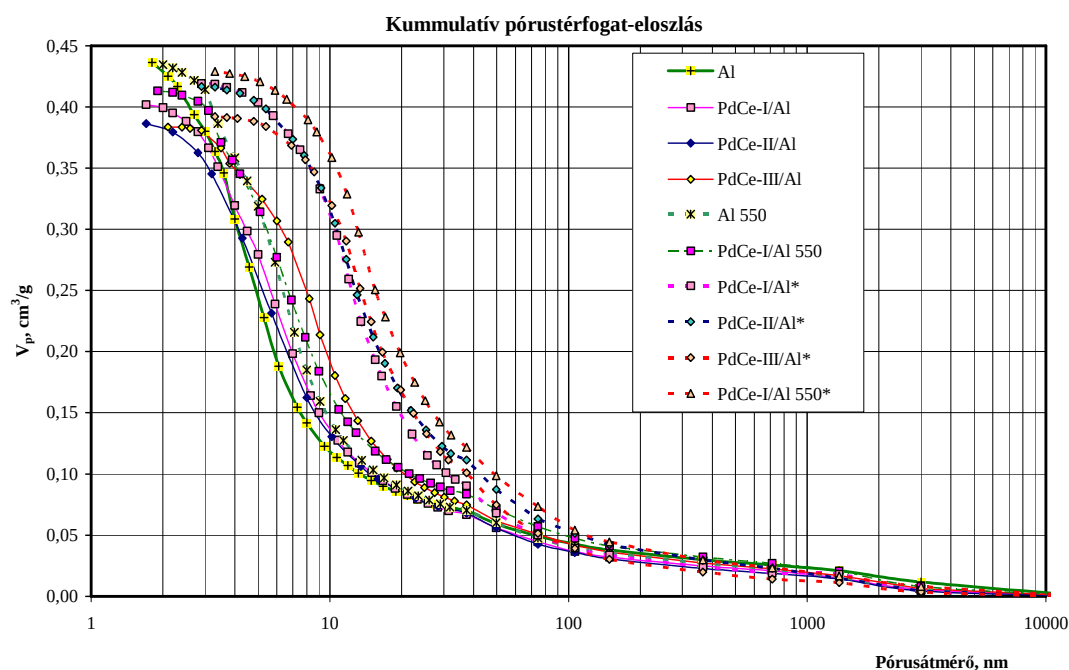
### 6.3 Morfológiai szerkezetvizsgálat eredményei

A mérési eredményeket a következő 6. táblázatban foglaltam össze.

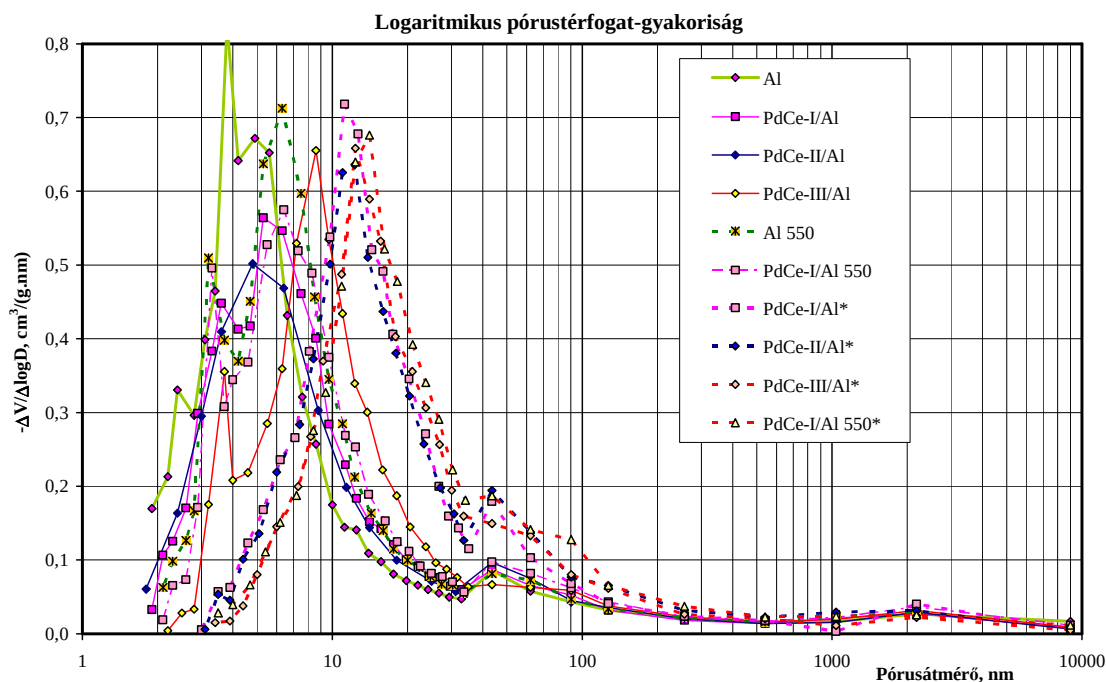
6. táblázat: A katalizátorminták morfológiai szerkezetére jellemző mérési adatok

| Minta          | $F_{\text{BET}}$<br>$\text{m}^2/\text{g}$ | $F_{\text{BJH}}$<br>$\text{m}^2/\text{g}$ | $F_{\text{Hg}}$<br>$\text{m}^2/\text{g}$ | $V_{1,7-300 \text{ nm}}$<br>$\text{cm}^3/\text{g}$ | $V_{>10 \text{ nm}}$<br>$\text{cm}^3/\text{g}$ | $V_{<2 \text{ nm}}$<br>$\text{cm}^3/\text{g}$ | Átlagos<br>pórusátmérő<br>(BJH) D, nm |
|----------------|-------------------------------------------|-------------------------------------------|------------------------------------------|----------------------------------------------------|------------------------------------------------|-----------------------------------------------|---------------------------------------|
| Al             | 292,3                                     | 328,1                                     | 9,73                                     | 0,381                                              | 0,142                                          | -                                             | 4,9                                   |
| Al 550         | 207,3                                     | 261,9                                     | 13,6                                     | 0,366                                              | 0,1715                                         | -                                             | 7,07                                  |
| PdCe-I/Al      | 205,3                                     | 252,6                                     | 11,6                                     | 0,351                                              | 0,152                                          | -                                             | 6,6                                   |
| PdCe-I/Al*     | 98,6                                      | 125,4                                     | 27,8                                     | 0,354                                              | 0,301                                          | 0,0016                                        | 13,8                                  |
| PdCe-II/Al     | 200,6                                     | 251,6                                     | 11,54                                    | 0,334                                              | 0,152                                          | -                                             | 6,3                                   |
| PdCe-II/Al*    | 93,2                                      | 116,9                                     | 32                                       | 0,334                                              | 0,343                                          | 0,00206                                       | 13,7                                  |
| PdCe-III/Al    | 134,7                                     | 168,7                                     | 15,9                                     | 0,328                                              | 0,189                                          | -                                             | 9,29                                  |
| PdCe-III/Al*   | 78                                        | 97,9                                      | 30,9                                     | 0,322                                              | 0,338                                          | 0,00181                                       | 15,5                                  |
| PdCe-I/Al 550  | 177,7                                     | 220,8                                     | 14,3                                     | 0,332                                              | 0,1865                                         | -                                             | 7,47                                  |
| PdCe-I/Al 550* | 79,9                                      | 102,2                                     | 33,7                                     | 0,344                                              | 0,377                                          | 0,00228                                       | 16,1                                  |

A korábban leírt mérések eredményeiből felrajzoltam a pórustérfogot függvényében a kummulatív pórustérfogatot 15. ábra, valamint a 15. ábra ábrázolási módjának megfelelő, un. logaritmikus pórustérfogot gyakoriságot (16. ábra) szemléltető ábrákat. Jól látható, hogy a pórustérfogat az aktivitásmérés hatására alig változik. A kisméretű és átlagos pórusok helyett az átlagos és nagyobb méretű pórusok lesznek a dominánsak az aktivitás vizsgálatok hatására. A pórusszerkezet változása a 10-100 nm közötti tartományban jelentős.



15. ábra: A vizsgált katalizátor minták kummulatív pórustérfogat eloszlása

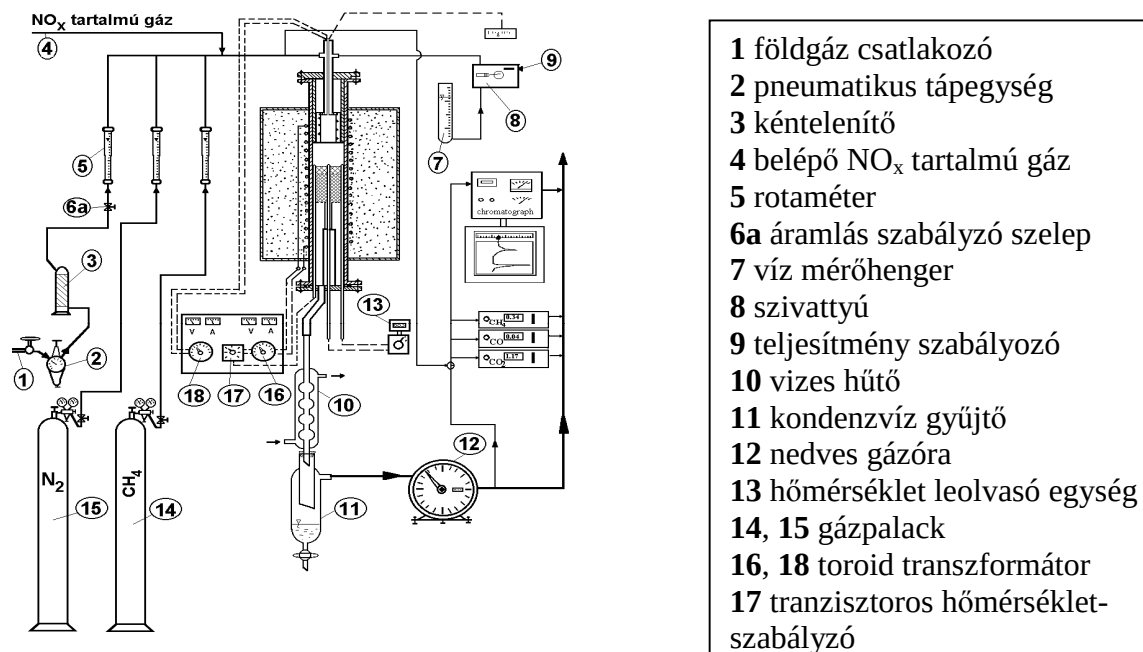


16. ábra: A vizsgált katalizátor minták logaritmusos pórustérfogat-gyakoriság

## 7 Aktivitás vizsgálat

### 7.1 A mérőrendszer vázlatja

A katalizátorminták aktivitás-vizsgálatához áramlásos csőreaktort tartalmazó mérőrendszert állítottunk össze (17. ábra).



17. ábra: A katalizátorok aktivitásának meghatározásához összeállított mérőrendszer

A vizsgálat elvégzéséhez használt katalizátor mintákból 100 cm<sup>3</sup>-t helyeztünk a henger alakú reaktortestbe. A katalizátorágyban a hőmérséklet-eloszlás mérésére szolgáló mozgatható termoelemeket tartalmazó termoelem tokokat (fal mellé és középre) helyeztünk el. A katalizátort tartalmazó vizsgáló reaktor ellenőrzött körülmények közötti üzembe helyezését (felfűtési sebesség, gázáram és összetétele) követően az Otto-típusú gépjárművek kipufogógázaira jellemző összetevőjű keveréssel előállított modellgáz elegyet vezettem át. Az átvezetett gáztérfogat-áram összevethető az Otto-típusú gépjárművek kilépő gáztérfogat-áramával. A használt gáztérfogat-áram: 455 – 505 Ndm<sup>3</sup>/h, ebből:

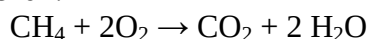
- Nitrogén 400 Ndm<sup>3</sup>/h;
- Levegő 50 Ndm<sup>3</sup>/h
  - $x_{\text{O}_2, \text{be}}: \sim 0,022$  (2.1-2.3 térfogat %);
- Metán: 4-16 (változtatott) Ndm<sup>3</sup>/h
  - $x_{\text{CH}_4, \text{be}}: 0,009 - 0,035$ ;
- Nitrogén-oxidok,  $c_{\text{NO}_x, \text{be}}: \sim 2200\text{-}2600$  ppm
- Vízgőz

A különböző földgáz betáplálási térfogatáramok mellett meghatároztam a reaktorból kilépő gáz összetételét (ezen méréseket elvégeztem csak metán, metán és állandó térfogatáramú vízgőz, valamint metán, állandó térfogatáramú vízgőz és nitrogén-oxid tartalmú gázelegy bevezetésével is). A felhasznált gázok 99,5%-os tisztaságúak, és a Messer Hungarogáz Kft.-től származnak.

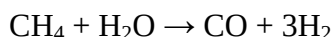
A katalitikus vizsgálóreaktorból kilépő gázelegy szén-monoxid, szén-dioxid és metán koncentrációjának meghatározásához nem-diszperz infravörös fény abszorpció (NDIR) elvén működő, on-line analizátorokat (Servomex 1490 típusú) alkalmaztam, míg az oxigén, az esetlegesen keletkező hidrogén és a fent említett analizátorok méréstartományát meghaladó metán és szén-monoxid koncentrációját Chromatron gyártmányú, GCHF-18-3 típusú gázkromatográf, 5 A típusú molekulaszita tölteten történt elválasztás után hővezetőképességi detektort alkalmazva határoztam meg. A nitrogén-oxidok koncentrációjának meghatározásához kemilumineszcens elven működő NO-NO<sub>x</sub> analizátort (Thermo Environmental Inc. gyártmányú Model 42-H típusú) alkalmaztam.

A vizsgálatokhoz a modellgázt a kívánt összetételnek megfelelően az alkotó komponensek mólkoncentrációinak megfelelően állítottam be. (A nitrogén-oxid tartalmú gázt ammónia ellenőrzött körülmények melletti katalitikus oxidációjával állítottam elő.) A reaktorba bevezetett gázelegy összetételéből számoltam az elméletileg szükséges és a gyakorlatban alkalmazott redukáló médium sztöchiometriai viszonyait (melyet légfesleg tényezővel [ $\lambda$ ] jelöltem).

A lejátszódó reakciók a következők:



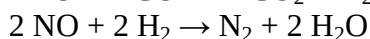
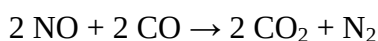
Vízgőz jelenlétében



Nitrogén-oxidok jelenlétében:



Mellékreakciók:



## 7.2 Mérés folyamata

A katalizátorok szénhidrogén égető aktivitásának vizsgálataihoz elvégzéséhez metánt ( $\text{CH}_4$ ) választottam. Ez a színtelen, szagtalan gáz a telített szénhidrogének homológ sorának első tagja, a központi C atom körül négy ligandum, hidrogén helyezkedik el.

A metán megfelel a mérések elvégzésére, ugyanis nem túl reakcióképes vegyület, mert nem tartalmaz kettős kötések, nehezen vihető szubsztitúciós reakcióba, így a többi szénhidrogén égése –feltételezhető, hogy – a metánénál nagyobb hatásokkal megy végbe ugyanazon körülmények mellett.

A mérések során állandó térfogatáramú nitrogén, levegő (vízgőz és nitrogén-oxidok) mellett a metán térfogatáramát változtatva vizsgáltam, hogy milyen mértékben képes a katalizátor a metánt átalakítani. A metán térfogatáramát metánra kalibrált, levegős rotaméteren ellenőriztem.

### 7.2.1 Első mérési sorozat: Metán katalitikus égési reakciója

A katalitikus aktivitást vizsgáló reaktorba először meghatározott térfogatáramú nitrogént ( $400 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ), levegőt ( $50 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ), valamint változó térfogatáramú metánt ( $16,2 - 13,5 - 10,8 - 8,1 - 5,4 - 4,05 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ) vezettem be. A mérés során azt vizsgáltam, hogy a katalizátorok milyen hatásokkal alakítják át a metánt.

### 7.2.2 Második mérési sorozat: Metán katalitikus égési reakciója vízgőz jelenlétében

A második mérési sorozatnál a katalitikus aktivitást vizsgáló rendszerbe szintén meghatározott térfogatáramú nitrogént ( $400 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ), levegőt ( $50 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ), változó térfogatáramú metánt ( $16,2 - 13,5 - 10,8 - 8,1 - 5,4 - 4,05 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ), valamint vízgőzt ( $17 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ) vezettem be. A mérés során a metánátalakulást vizsgáltam.

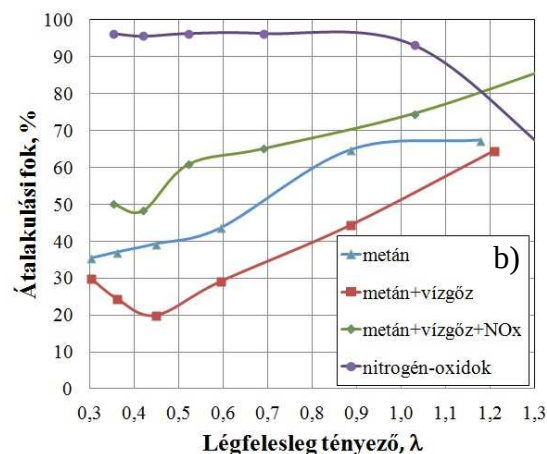
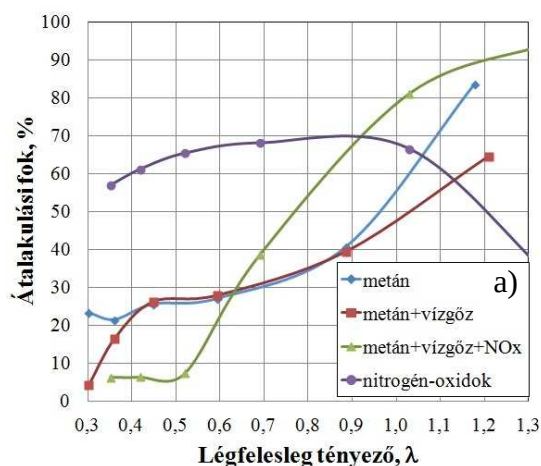
### 7.2.3 Harmadik mérési sorozat: Metán katalitikus égési reakciója vízgőz és nitrogén-oxid tartalmú gáz bevezetésével, nitrogén-oxidok redukciós hatásfoka

A harmadik mérési sorozat során a katalitikus mérésekhez a szabályozott hőmérsékletű reaktorba meghatározott térfogatáramú nitrogént ( $400 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ), levegőt ( $50 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ), változó térfogatáramú metánt ( $16,2 - 13,5 - 10,8 - 8,1 - 5,4 - 4,05 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ), valamint vízgőzt ( $17 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ ) vezettem be a mérőrendszerbe. Az ammóniaégető működésével hozzávetőlegesen  $50 \text{ Ndm}^3/\text{h}$ -val nőtt a belépő gáz térfogatárama, amely nitrogén-oxidokat tartalmaz. A mérés során a metánátalakulást és nitrogén-oxid redukciót vizsgáltam.

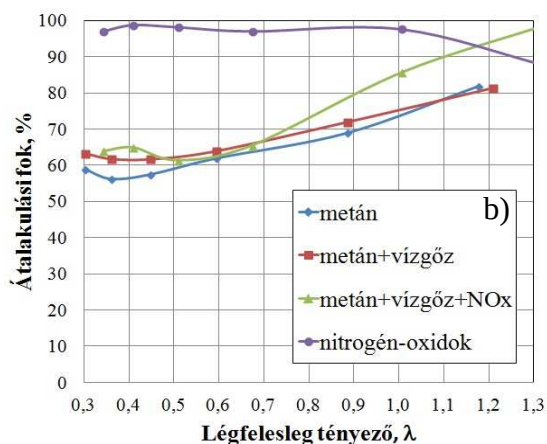
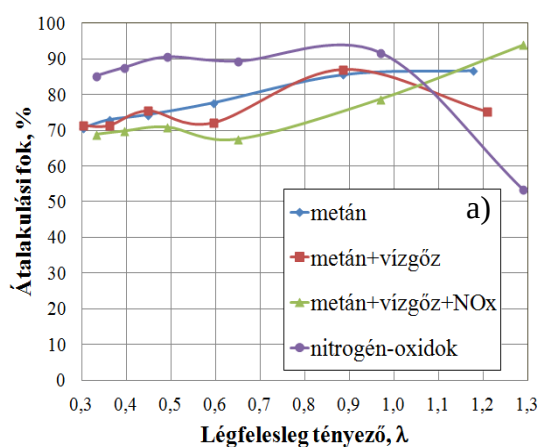
Az összes mérési sorozatot a hőmérsékletszabályozó az 17. ábra (17) jelének  $600$  és  $700$  °C értékre állításával, szabályozott hőmérsékletű reaktorral is elvégeztem, hogy megvizsgáljam a hőmérséklet hatását a lejátszódó reakciókra.

## 7.3 Az aktivitás vizsgálat eredményei

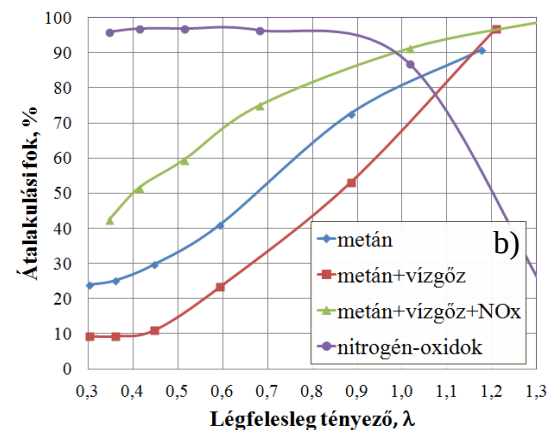
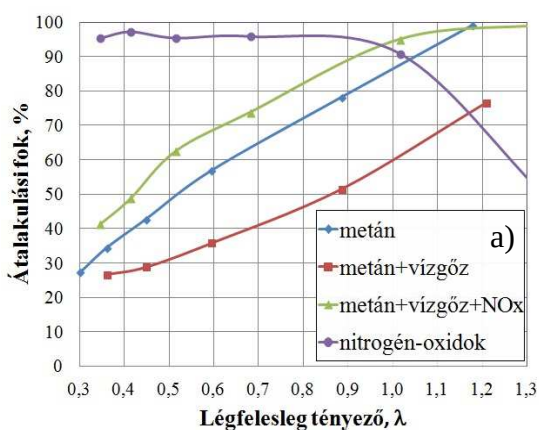
A 18 - 21 ábrák mutatják az oxidációs és redukciós hatásfokok változását a légfesleg tényező ( $\lambda$ ) függvényében, a 22. ábra pedig a hőmérséklet függvényében.



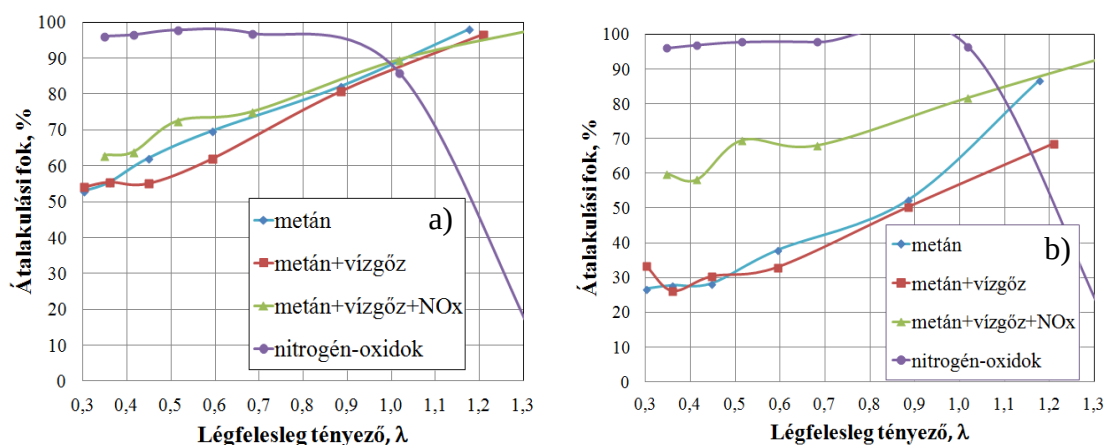
18. ábra: PdCe-I/Al-on  $\text{CH}_4$  és  $\text{NO}_x$  átalakulás, 600 °C-ra (a) 700 °C-ra (b) szabályozva



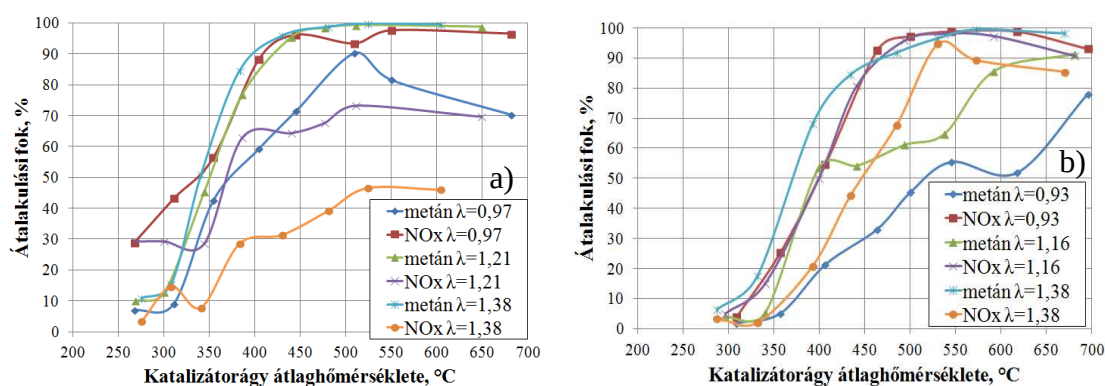
19. ábra: PdCe-II/Al-on  $\text{CH}_4$  és  $\text{NO}_x$  átalakulás, 600 °C-ra (a) 700 °C-ra (b) szabályozva



20. ábra: PdCe-III/Al-on  $\text{CH}_4$  és  $\text{NO}_x$  átalakulás 600 °C-ra (a) 700 °C-ra (b) szabályozva



21. ábra: PdCe-I/Al550-on CH<sub>4</sub> és NO<sub>x</sub> átalakulás 600 °C-ra (a) 700 °C-ra (b) szabályozva



22. ábra: PdCe-III/Al-on (a) és PdCe-I/Al550-on (b) CH<sub>4</sub> és NO<sub>x</sub> átalakulás a hőmérséklet függvényében

Az összes katalizátormintánál a fentebb leírt mérési módszert alkalmaztam, ezért az adatokat azonos formátumú táblázatokban tüntetem fel a mellékletben. A mérési adatokból felrajzolt, két hőmérsékletszinthez tartozó ábrák segítségével meghatároztam a metán átalakulás hatásfokait a sztöchiometrikus belépő összetételnél. Az adatokat a 7. táblázat oszlopaiban foglaltam össze. A metán, vízgőz és nitrogén-oxid tartalmú gázelegynél a metán átalakulási foka mellett a nitrogén-oxidok redukció-mértéke is meghatározható, ezeket a táblázat utolsó sorában tüntettem fel. Ezen sorban az első érték metán oxidációs hatásfoka, a második érték pedig a nitrogén-oxidok redukciós hatásfokát mutatja.

7. táblázat: Katalizátorok aktivitásának (átalakulási fok, %) összehasonlítása λ=1-nél

| Gáz elegy                                             | PdCe-I/Al |       | PdCe-II/Al |       | PdCe-III/Al |       | PdCe-I/Al550 |       |
|-------------------------------------------------------|-----------|-------|------------|-------|-------------|-------|--------------|-------|
|                                                       | 600°C     | 700°C | 600°C      | 700°C | 600°C       | 700°C | 600°C        | 700°C |
| CH <sub>4</sub>                                       | 52        | 69    | 84         | 74    | 86          | 83    | 87           | 66    |
| CH <sub>4</sub> +H <sub>2</sub> O                     | 43        | 52    | 83         | 75    | 84          | 69    | 89           | 89    |
| CH <sub>4</sub> +H <sub>2</sub> O<br>+NO <sub>x</sub> | 79/67     | 74/94 | 81/91      | 85/98 | 94/91       | 91/93 | 89/88        | 81/97 |

#### 7.4 Az aktivitási vizsgálat eredményeinek értékelése

A 18 - 21. ábrák alapján jól látható, hogy a vízgőz hozzávezetés hatására a metán oxidációs hatásfoka csökkent, aminek az oka valószínűleg a megnövekedett terhelés hatására csökkent tartózkodási (reakció-) idő, illetve az eltérő kialakult hőmérséklet-szint a katalizátor ágyakban. A gázelemzési adatok igazolják, hogy a metán vízgőzös konverziója (erősen endoterm folyamat) is végbemegy és a szén-monoxid koncentráció növekszik.

Jól látszik, hogy a nitrogén-oxidok jelenlétében jelentősen nőtt a metán átalakítás hatásfoka, minek oka az lehet, hogy elsősorban a metán redukálja a hozzávezetett nitrogén-oxidot a korábban említett reakciók mellett. Ha a metán nagyobb koncentrációban van jelen, akkor a katalizátorok nitrogén-oxid átalakító hatásfoka is nagyobb.

A 7. táblázatból (amely a  $\lambda = 1$ -hez tartozó visszaolvasott értékeket tartalmazza) és az 18 - 21. ábrákból jól látható, hogy a PdCe-III/Al és PdCe-I/Al550 katalizátoroknak a legnagyobb metán és nitrogén-oxidok átalakulási hatásfoka. Jól látható, hogy a nagyobb nemesfém-tartalommal rendelkező PdCe-III/Al jól működik, azonban kiemelendő, hogy a sokkal kisebb nemesfém-tartalmú PdCe-I/Al550 is nagyon jó hatásfokkal működik. Valószínűsíthető, hogy a hőkezelt PdCe-I/Al550 katalizátor pórusszerkezete kedvezőbb a transzportfolyamatok számára a nem hőkezeltékhez képest.

A vizsgált katalizátor mintákon a tesztelt reakciók 200 - 250 °C-on indulnak meg, majd a hőmérséklet-szint növelésével mind a szénhidrogén, mind pedig a nitrogén-oxidok átalakulási foka növekedik és 550 – 750 °C tartományban közel állandó értéken maradnak. Azonban a 22. ábrán megfigyelhető az is, hogy a szénhidrogén átalakító hatás a légfelesleg tényező értékétől jelentősen függ.

## Összefoglaló

A kutatómunkám során feldolgozott irodalmi adatokból megállapítottam, hogy az egyre korszerűbb járművek alkalmazása ellenére hazánkban a környezeti levegőbe jutó nitrogén-oxid mennyisége kis mértékben növekvő tendenciát mutat. Ennek oka lehet a járművek egyre nagyobb egyedszáma és átlagéletkoruk növekedése. A szakirodalomban található károsanyag kibocsátási csökkentési lehetőségek közül a katalitikus átalakítás alternatíváját kutattam.

A dolgozat annak megismerésére irányult, hogy a különböző nemesfém tartalmú katalizátorok milyen hatásfokkal képesek a szénhidrogéneket oxidálni és a nitrogén-oxidokat redukálni. Az impregnálásos módszerrel előállított katalizátorminták közül a háromszor impregnált,  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  hordozós minta szénhidrogén és nitrogén-oxid átalakító aktivitása közel megegyezett az előzetesen hőkezelt  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  hordozóra egyszeri impregnálással felvitt aktív réteget tartalmazó minta aktivitásával, de ennek nemesfém tartalma kisebb. A legjobb minták gyulladási hőmérséklete 200 – 250 °C közötti, ennek csökkentése más, kis mennyiségű aktív komponens hozzáadásával csökkentendő.

A katalizátormintákkal tartamkísérleteket nem végeztem, csak az aktivitás állandóságát ellenőriztem a kezdeti paraméterekre történő visszaméréssel, de a morfológiai szerkezetváltozás (amely nem párosult mérhető kristályszerkezeti változással) ennek szükségességét, azaz a minták stabilitásának későbbi meghatározását indokolja.

A jövőben a két legjobban működő katalizátor ( $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  (R-P) 3x impregnált, és a  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ , (R-P) 1 °C/min, 550 °C, 8h, 1x impregnált) aktivitás vizsgálatait tervezem már nem modellgázzal, hanem különböző üzemanyaggal hajtott Otto-motor kipufogógázával.

## Köszönetnyilvánítás

Szeretnék köszönetet mondani Dr. Kovács Józsefnek, témavezetőmnek a témámban nyújtott szakmai segítségéért mind elméleti mind gyakorlati részben. Továbbá szeretném megköszönni, hogy elfoglaltságai ellenére mindig rendelkezésemre állt, segített a felmerülő kérdéseim megoldásában.

Köszönettel tartozom a Pannon Egyetem Környezetmérnöki Intézetnek, hogy vizsgálataim elvégzéséhez biztosították a megfelelő eszközöket és körülményeket. Köszönettel tartozom még Dr. Kovács József mellett Yuzhakova Tatianának is a mérések megvalósításában nyújtott segítségért.

Köszönet a Pannon Egyetem Anyagmérnöki Intézetének és Makó Évának röntgendiffrakciós vizsgálatokért.

*„Jelen dolgozat a TÁMOP-4.2.1/B-09/1/KONV-2010-0003 és a TÁMOP-4.2.2/B-10/1-2010-0025 projektek keretében készült. A projektek a Magyar Állam és az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósulnak meg.”*

## Irodalomjegyzék

- [1] B. FERRIS, P. WIDERKEHR: Technical options for reducing motor vehicle emissions, *Chemistry and Industry*, No. 15. (1995) pp. 597-600
- [2] <http://statinfo.ksh.hu/Stainfo/haViewer.jsp> (2011. augusztus 23.)
- [3] M. KOUSOULIDOU, L. NTZIACHRISTOS, G. MELLIOS, Z. SAMARAS: Road-transport emission projections to 2020 in European urban environments, *Atmospheric Environment*, 42 (2008) pp. 7465–7
- [4] <http://hu.wikipedia.org/wiki/Otto-motor> (2010. november 12.)
- [5] [http://hu.wikipedia.org/w/index.php?title=F%C3%A1jl:Diesel\\_Engine\\_%284\\_cycle\\_running%29.gif&filetimestamp=20090330085751](http://hu.wikipedia.org/w/index.php?title=F%C3%A1jl:Diesel_Engine_%284_cycle_running%29.gif&filetimestamp=20090330085751) (2010. november 12.)
- [6] Automobile Emissions: An Overview. U.S. Environmental Protection Agency. EPA. 400-F-92-007
- [7] MAGYAR SZ., HANCSÓK J.: Benzinüzemű gépjárművek korszerű utóátalakító katalizátorai, *Magyar Kémikusok Lapja*, 62(10), (2007), pp. 339–347.
- [8] H. GROHE: Otto- und Dieselmotoren, Spiegel, Verlag Bucheverlag (1992)
- [9] <https://kereses.magyarorszag.hu/jogszabalykereso> (2011. augusztus 23.)
- [10] NAGY G. HANCSÓK J.: Diesel-üzemű gépjárművek korszerű utóátalakító katalizátorai I., *Magyar Kémikusok Lapja*, 62 (11), (2007), pp. 373-378.
- [11] SZABÓ Z.: Kontakt katalízis, Akadémiai Kiadó, Budapest (1966)
- [12] MERÉTEI I. T.: Gépjárművek levegőszennyezésének csökkentése katalizátorokkal, OMIKK, Budapest (1992)
- [13] Technik in der Zwangsjacke, *Motortechnik* 18 (1984), pp. 34-41.
- [14] BOSCHÁN É., MEGGYES A.: Az NO<sub>x</sub>-emisszió és csökkentése, OMIKK, Budapest (1989)
- [15] KALLÓ D.: Katalitikus eljárások a környezetvédelemben, Veszprémi Egyetemi Kiadó, Veszprém (1999)
- [16] P. BARRETT, L.G. JOYNER, P.P. HALENDA: The determination of pore volume and area distributions in porous substances. I. Computations from nitrogen isotherms, *J. Am. Chem. Soc.* 73 (1951), pp. 373-380.

## Mellékletek

|                              | Sorszám | Belépő gáz térfogatáram Ndm3/h |      |                 | Belépő gáz összetétel |                 |                |                 | Kilépő gáz térfogat% |                 |       |                 |                 |      |
|------------------------------|---------|--------------------------------|------|-----------------|-----------------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------------|-----------------|-------|-----------------|-----------------|------|
|                              |         |                                |      |                 | ppm                   |                 | térfogat %     |                 |                      |                 |       |                 |                 |      |
|                              |         | N <sub>2</sub>                 | Lev. | CH <sub>4</sub> | NO                    | NO <sub>x</sub> | O <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | O <sub>2</sub>       | CO <sub>2</sub> | CO    | CH <sub>4</sub> | NO <sub>x</sub> | NO   |
| Metán                        | 1       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,61            | 0,14  |                 | -               | -    |
|                              | 2       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,59            | 0,141 |                 | -               | -    |
|                              | 3       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,58            | 0,115 |                 | -               | -    |
|                              | 4       | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,58            | 0,079 |                 | -               | -    |
|                              | 5       | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,57            | 0,046 |                 | -               | -    |
|                              | 6       | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,55            | 0,013 | 0,18            | -               | -    |
| Metán+Vízgőz                 | 7       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,6             | 0,021 |                 | -               | -    |
|                              | 8       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,61            | 0,024 |                 | -               | -    |
|                              | 9       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,61            | 0,017 |                 | -               | -    |
|                              | 10      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,61            | 0,014 |                 | -               | -    |
|                              | 11      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,6             | 0,008 |                 | -               | -    |
|                              | 12      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,59            | 0,005 |                 | -               | -    |
| Metán+Vízgőz+NO <sub>x</sub> | 13      | 400                            | 50   | 16,2            | 2600                  | 2610            | 2,3            | 3,475           | 0                    | 0,87            | 0,006 |                 | 1120            | 1100 |
|                              | 14      | 400                            | 50   | 13,5            | 2600                  | 2610            | 2,3            | 2,913           | 0                    | 0,88            | 0,008 |                 | 1010            | 1060 |
|                              | 15      | 400                            | 50   | 10,8            | 2600                  | 2610            | 2,3            | 2,344           | 0                    | 0,89            | 0,011 |                 | 900             | 910  |
|                              | 16      | 400                            | 50   | 8,1             | 2600                  | 2610            | 2,3            | 1,768           | 0                    | 0,91            | 0,007 |                 | 830             | 840  |
|                              | 17      | 400                            | 50   | 5,4             | 2600                  | 2610            | 2,3            | 1,186           | 0                    | 0,86            | 0,003 |                 | 870             | 910  |
|                              | 18      | 400                            | 50   | 4,05            | 2600                  | 2610            | 2,3            | 0,892           | 0                    | 0,79            | 0     | 0,044           | 1810            | 1790 |

1.melléklet: PdCe-I/Al katalizátor 600 °C-ra szabályozott aktivitási vizsgálatához alkalmazott belépő gáztérfogatáramok és kilépő gázösszetétel

|                              | Sorszám | Belépő gáz térfogatáram Ndm3/h |      |                 | Belépő gáz összetétel |                 |                |                 | Kilépő gáz térfogat% |                 |       |                 |                 |      |
|------------------------------|---------|--------------------------------|------|-----------------|-----------------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------------|-----------------|-------|-----------------|-----------------|------|
|                              |         |                                |      |                 | ppm                   |                 | térfogat %     |                 |                      |                 |       |                 |                 |      |
|                              |         | N <sub>2</sub>                 | Lev. | CH <sub>4</sub> | NO                    | NO <sub>x</sub> | O <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | O <sub>2</sub>       | CO <sub>2</sub> | CO    | CH <sub>4</sub> | NO <sub>x</sub> | NO   |
| Metán+Vízgőz+NO <sub>x</sub> | 1       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,3            | 3,475           | 0                    | 0,88            | 0,043 |                 | 100             | 90   |
|                              | 2       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,3            | 2,913           | 0                    | 0,79            | 0,03  |                 | 120             | 100  |
|                              | 3       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,3            | 2,344           | 0                    | 0,7             | 0,02  |                 | 100             | 90   |
|                              | 4       | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,3            | 1,768           | 0                    | 0,66            | 0,006 |                 | 100             | 90   |
|                              | 5       | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,3            | 1,186           | 0                    | 0,64            | 0,012 | 0,301           | 190             | 180  |
|                              | 6       | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,3            | 0,892           | 0                    | 0,64            | 0,003 | 0,105           | 1110            | 1100 |
| Metán+Vízgőz                 | 7       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,39            | 0,031 |                 | -               | -    |
|                              | 8       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,37            | 0,02  |                 | -               | -    |
|                              | 9       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,35            | 0,012 |                 | -               | -    |
|                              | 10      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,34            | 0,005 |                 | -               | -    |
|                              | 11      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,34            | 0,013 |                 | -               | -    |
|                              | 12      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,33            | 0,007 |                 | -               | -    |
| Metán                        | 13      | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,54            | 0,151 |                 | -               | -    |
|                              | 14      | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,57            | 0,109 |                 | -               | -    |
|                              | 15      | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,56            | 0,084 |                 | -               | -    |
|                              | 16      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,57            | 0,057 |                 | -               | -    |
|                              | 17      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,58            | 0,021 |                 | -               | -    |
|                              | 18      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,59            | 0,001 | 0,291           | -               | -    |

2. melléklet: PdCe-I/Al katalizátor 700 °C-ra szabályozott aktivitási vizsgálatához alkalmazott belépő gáztérfogatáramok és kilépő gázösszetétel

| Mérés száma | T <sub>átl.</sub> °C | Légfelesleg-tényező, λ | CH <sub>4</sub> átalakulás, % | NO <sub>x</sub> átalakulás, % |
|-------------|----------------------|------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1           | 577,4                | 0,30                   | 23,2                          |                               |
| 2           | 575,0                | 0,36                   | 21,4                          |                               |
| 3           | 570,8                | 0,45                   | 25,5                          |                               |
| 4           | 568,7                | 0,59                   | 27,0                          |                               |
| 5           | 567,6                | 0,89                   | 40,6                          |                               |
| 6           | 566,3                | 1,18                   | 83,6                          |                               |
| 7           | 513,0                | 0,30                   | 4,2                           |                               |
| 8           | 525,3                | 0,36                   | 16,4                          |                               |
| 9           | 539,5                | 0,45                   | 26,2                          |                               |
| 10          | 541,0                | 0,59                   | 27,8                          |                               |
| 11          | 541,8                | 0,89                   | 39,4                          |                               |
| 12          | 538,7                | 1,21                   | 64,5                          |                               |
| 13          | 554,5                | 0,35                   | 6,3                           | 56,9                          |
| 14          | 526,5                | 0,42                   | 6,3                           | 61,2                          |
| 15          | 511,7                | 0,52                   | 7,4                           | 65,4                          |
| 16          | 514,5                | 0,69                   | 38,6                          | 68,1                          |
| 17          | 508,4                | 1,03                   | 81,1                          | 66,5                          |
| 18          | 508,7                | 1,37                   | 95,1                          | 30,4                          |

(a)

| Mérés száma | T <sub>átl.</sub> °C | Légfelesleg-tényező, λ | CH <sub>4</sub> átalakulás, % | NO <sub>x</sub> átalakulás, % |
|-------------|----------------------|------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1           | 635,8                | 0,35                   | 50,2                          | 96,4                          |
| 2           | 628,6                | 0,42                   | 48,4                          | 95,7                          |
| 3           | 629,0                | 0,52                   | 60,9                          | 96,4                          |
| 4           | 628,9                | 0,69                   | 65,2                          | 96,4                          |
| 5           | 633,3                | 1,03                   | 74,6                          | 93,2                          |
| 6           | 629,3                | 1,37                   | 88,2                          | 60,4                          |
| 7           | 629,3                | 0,30                   | 29,9                          |                               |
| 8           | 624,8                | 0,36                   | 24,5                          |                               |
| 9           | 626,5                | 0,45                   | 19,9                          |                               |
| 10          | 628,0                | 0,59                   | 29,1                          |                               |
| 11          | 628,9                | 0,89                   | 44,3                          |                               |
| 12          | 629,4                | 1,21                   | 64,5                          |                               |
| 13          | 653,7                | 0,30                   | 35,4                          |                               |
| 14          | 674,1                | 0,36                   | 37,1                          |                               |
| 15          | 676,3                | 0,45                   | 39,3                          |                               |
| 16          | 675,1                | 0,59                   | 43,6                          |                               |
| 17          | 675,4                | 0,89                   | 64,7                          |                               |
| 18          | 674,4                | 1,18                   | 67,4                          |                               |

(b)

3.melléklet: PdCe-I/Al katalizátor 600 (a) és 700 °C-ra (b) szabályozott aktivitási vizsgálata során történő CH<sub>4</sub> és NO<sub>x</sub> átalakulás, % és a λ változása

|                              | Sorszám | Belépő gáz térfogatáram Ndm3/h |      |                 | Belépő gáz összetétel |                 |                |                 | Kilépő gáz térfogat% |                 |       |                 |                 |     |
|------------------------------|---------|--------------------------------|------|-----------------|-----------------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------------|-----------------|-------|-----------------|-----------------|-----|
|                              |         |                                |      |                 | ppm                   |                 | térfogat %     |                 |                      |                 |       |                 |                 |     |
|                              |         | N <sub>2</sub>                 | Lev. | CH <sub>4</sub> | NO                    | NO <sub>x</sub> | O <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | O <sub>2</sub>       | CO <sub>2</sub> | CO    | CH <sub>4</sub> | NO <sub>x</sub> | NO  |
| Metán                        | 1       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,62            | 0,061 |                 | -               | -   |
|                              | 2       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,61            | 0,05  |                 | -               | -   |
|                              | 3       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,61            | 0,053 |                 | -               | -   |
|                              | 4       | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,61            | 0,041 |                 | -               | -   |
|                              | 5       | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,6             | 0,022 |                 | -               | -   |
|                              | 6       | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,58            | 0,006 | 0,118           | -               | -   |
| Metán+Vízgőz                 | 7       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,67            | 0,019 |                 | -               | -   |
|                              | 8       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,64            | 0,015 |                 | -               | -   |
|                              | 9       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,64            | 0,011 |                 | -               | -   |
|                              | 10      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,63            | 0,01  |                 | -               | -   |
|                              | 11      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,62            | 0,005 | 0,517           | -               | -   |
|                              | 12      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,59            | 0,002 | 0,08            | -               | -   |
| Metán+Vízgőz+NO <sub>x</sub> | 13      | 400                            | 50   | 16,2            | 1700                  | 1690            | 2,3            | 3,475           | 0                    | 1,02            | 0,02  |                 | 250             | 190 |
|                              | 14      | 400                            | 50   | 13,5            | 1700                  | 1690            | 2,3            | 2,913           | 0                    | 0,95            | 0,021 |                 | 210             | 180 |
|                              | 15      | 400                            | 50   | 10,8            | 1700                  | 1690            | 2,3            | 2,344           | 0                    | 1               | 0,015 |                 | 160             | 120 |
|                              | 16      | 400                            | 50   | 8,1             | 1700                  | 1690            | 2,3            | 1,768           | 0                    | 0,94            | 0,009 |                 | 180             | 140 |
|                              | 17      | 400                            | 50   | 5,4             | 1700                  | 1690            | 2,3            | 1,186           | 0                    | 1,04            | 0,005 | 0,253           | 140             | 120 |
|                              | 18      | 400                            | 50   | 4,05            | 1700                  | 1690            | 2,3            | 0,892           | 0                    | 1,02            | 0,003 | 0,054           | 790             | 780 |

4. melléklet: PdCe-II/Al katalizátor 600 °C-ra szabályozott aktivitási vizsgálatához alkalmazott belépő gáztérfogatáramok és kilépő gázösszetétel

|                              | Sorszám | Belépő gáz térfogatáram Ndm3/h |      |                 | Belépő gáz összetétel |                 |                |                 | Kilépő gáz térfogat% |                 |       |                 |                 |     |
|------------------------------|---------|--------------------------------|------|-----------------|-----------------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------------|-----------------|-------|-----------------|-----------------|-----|
|                              |         |                                |      |                 | ppm                   |                 | térfogat %     |                 |                      |                 |       |                 |                 |     |
|                              |         | N <sub>2</sub>                 | Lev. | CH <sub>4</sub> | NO                    | NO <sub>x</sub> | O <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | O <sub>2</sub>       | CO <sub>2</sub> | CO    | CH <sub>4</sub> | NO <sub>x</sub> | NO  |
| Metán+Vízgőz+NO <sub>x</sub> | 1       | 400                            | 50   | 16,2            | 1700                  | 1690            | 2,3            | 3,475           | 0                    | 1,12            | 0,054 |                 | 50              | 40  |
|                              | 2       | 400                            | 50   | 13,5            | 1700                  | 1690            | 2,3            | 2,913           | 0                    | 1,07            | 0,062 |                 | 20              | 20  |
|                              | 3       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,3            | 2,344           | 0                    | 1,06            | 0,057 |                 | 80              | 60  |
|                              | 4       | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,3            | 1,768           | 0                    | 1,05            | 0,041 |                 | 50              | 40  |
|                              | 5       | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,3            | 1,186           | 0                    | 1,02            | 0,02  |                 | 40              | 30  |
|                              | 6       | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,3            | 0,892           | 0                    | 0,94            | 0,001 | 0,007           | 220             | 230 |
| Metán+Vízgőz                 | 7       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 1,25            | 0,218 |                 | -               | -   |
|                              | 8       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 1,11            | 0,148 |                 | -               | -   |
|                              | 9       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,98            | 0,09  |                 | -               | -   |
|                              | 10      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,91            | 0,06  |                 | -               | -   |
|                              | 11      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,79            | 0,026 |                 | -               | -   |
|                              | 12      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,7             | 0,009 |                 | -               | -   |
| Metán                        | 13      | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,81            | 0,288 |                 | -               | -   |
|                              | 14      | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,48            | 0,537 |                 | -               | -   |
|                              | 15      | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,48            | 0,382 |                 | -               | -   |
|                              | 16      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,5             | 0,257 |                 | -               | -   |
|                              | 17      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,51            | 0,142 |                 | -               | -   |
|                              | 18      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,58            | 0,058 | 0,414           | -               | -   |

5. melléklet: PdCe-II/Al katalizátor 700 °C-ra szabályozott aktivitási vizsgálatához alkalmazott belépő gáztérfogatáramok és kilépő gázösszetétel

| Mérés száma | T <sub>átl.</sub> , °C | Légfelesleg-tényező, λ | CH <sub>4</sub> átalakulás, % | NO <sub>x</sub> átalakulás, % |
|-------------|------------------------|------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1           | 599,8                  | 0,30                   | 70,5                          |                               |
| 2           | 590,4                  | 0,36                   | 72,9                          |                               |
| 3           | 582,7                  | 0,45                   | 74,3                          |                               |
| 4           | 575,3                  | 0,59                   | 77,7                          |                               |
| 5           | 571,3                  | 0,89                   | 85,6                          |                               |
| 6           | 570,0                  | 1,18                   | 86,8                          |                               |
| 7           | 560,8                  | 0,30                   | 71,3                          |                               |
| 8           | 552,4                  | 0,36                   | 71,3                          |                               |
| 9           | 539,5                  | 0,45                   | 75,5                          |                               |
| 10          | 532,8                  | 0,59                   | 72,1                          |                               |
| 11          | 526,9                  | 0,89                   | 87,1                          |                               |
| 12          | 528,3                  | 1,21                   | 75,3                          |                               |
| 13          | 526,8                  | 0,33                   | 68,9                          | 85,3                          |
| 14          | 528,7                  | 0,39                   | 69,8                          | 87,6                          |
| 15          | 526,0                  | 0,49                   | 70,9                          | 90,6                          |
| 16          | 524,3                  | 0,65                   | 67,5                          | 89,4                          |
| 17          | 546,6                  | 0,97                   | 78,8                          | 91,8                          |
| 18          | 523,1                  | 1,29                   | 93,9                          | 53,5                          |

(a)

| Mérés száma | T <sub>átl.</sub> , °C | Légfelesleg-tényező, λ | CH <sub>4</sub> átalakulás, % | NO <sub>x</sub> átalakulás, % |
|-------------|------------------------|------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1           | 607,3                  | 0,34                   | 63,8                          | 97,1                          |
| 2           | 625,8                  | 0,41                   | 64,9                          | 98,8                          |
| 3           | 634,6                  | 0,51                   | 61,3                          | 98,2                          |
| 4           | 632,0                  | 0,67                   | 65,5                          | 97,1                          |
| 5           | 630,3                  | 1,01                   | 85,6                          | 97,6                          |
| 6           | 626,5                  | 1,34                   | 99,2                          | 87,1                          |
| 7           | 619,2                  | 0,30                   | 63,3                          |                               |
| 8           | 626,6                  | 0,36                   | 61,8                          |                               |
| 9           | 628,7                  | 0,45                   | 61,7                          |                               |
| 10          | 630,3                  | 0,59                   | 63,9                          |                               |
| 11          | 633,1                  | 0,89                   | 72,0                          |                               |
| 12          | 631,7                  | 1,21                   | 81,4                          |                               |
| 13          | 625,7                  | 0,30                   | 58,9                          |                               |
| 14          | 653,6                  | 0,36                   | 56,2                          |                               |
| 15          | 669,9                  | 0,45                   | 57,5                          |                               |
| 16          | 674,3                  | 0,59                   | 61,9                          |                               |
| 17          | 677,0                  | 0,89                   | 69,0                          |                               |
| 18          | 678,1                  | 1,18                   | 81,9                          |                               |

(b)

6. melléklet: PdCe-II/Al katalizátor 600 (a) és 700 °C-ra (b) szabályozott aktivitási vizsgálata során történő CH<sub>4</sub> és NO<sub>x</sub> átalakulás, % és a λ változása

|                                | Sorszám | Belépő gáz térfogatáram Ndm3/h |      |                 | Belépő gáz összetétel |                 |                |                 | Kilépő gáz térfogat% |                 |       |                 |                 |      |
|--------------------------------|---------|--------------------------------|------|-----------------|-----------------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------------|-----------------|-------|-----------------|-----------------|------|
|                                |         |                                |      |                 | ppm                   |                 | térfogat %     |                 |                      |                 |       |                 |                 |      |
|                                |         | N <sub>2</sub>                 | Lev. | CH <sub>4</sub> | NO                    | NO <sub>x</sub> | O <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | O <sub>2</sub>       | CO <sub>2</sub> | CO    | CH <sub>4</sub> | NO <sub>x</sub> | NO   |
| Metán                          | 1       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,79            | 0,123 |                 | -               | -    |
|                                | 2       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,79            | 0,099 |                 | -               | -    |
|                                | 3       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,78            | 0,074 |                 | -               | -    |
|                                | 4       | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,78            | 0,044 |                 | -               | -    |
|                                | 5       | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,76            | 0,018 | 0,259           | -               | -    |
|                                | 6       | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,66            | 0,011 | 0,009           | -               | -    |
| Metán+ Vízgőz                  | 7       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,79            | 0,028 |                 | -               | -    |
|                                | 8       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,8             | 0,022 |                 | -               | -    |
|                                | 9       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,8             | 0,018 |                 | -               | -    |
|                                | 10      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,8             | 0,018 |                 | -               | -    |
|                                | 11      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,77            | 0,012 | 0,277           | -               | -    |
|                                | 12      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,68            | 0,01  | 0,018           | -               | -    |
| Metán+ Vízgőz+ NO <sub>x</sub> | 13      | 400                            | 50   | 16,2            | 2180                  | 2200            | 2,3            | 3,475           | 0                    | 1,18            | 0,023 |                 | 100             | 100  |
|                                | 14      | 400                            | 50   | 13,5            | 2180                  | 2200            | 2,3            | 2,913           | 0                    | 1,14            | 0,022 |                 | 60              | 80   |
|                                | 15      | 400                            | 50   | 10,8            | 2180                  | 2200            | 2,3            | 2,344           | 0                    | 1,12            | 0,018 |                 | 100             | 90   |
|                                | 16      | 400                            | 50   | 8,1             | 2180                  | 2200            | 2,3            | 1,768           | 0                    | 1,1             | 0,015 |                 | 90              | 80   |
|                                | 17      | 400                            | 50   | 5,4             | 2180                  | 2200            | 2,3            | 1,186           | 0                    | 1,04            | 0,01  | 0,059           | 200             | 210  |
|                                | 18      | 400                            | 50   | 4,05            | 2180                  | 2200            | 2,3            | 0,892           | 0                    | 0,67            | 0,01  | 0,007           | 1150            | 1170 |

7. melléklet: PdCe-III/Al katalizátor 600 °C-ra szabályozott aktivitási vizsgálatához alkalmazott belépő gáztérfogatáramok és kilépő gázösszetétel

|                               | Sorszám | Belépő gáz térfogatáram Ndm3/h |      |                 | Belépő gáz összetétel |                 |                |                 | Kilépő gáz térfogat% |                 |       |                 |                 |      |
|-------------------------------|---------|--------------------------------|------|-----------------|-----------------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------------|-----------------|-------|-----------------|-----------------|------|
|                               |         |                                |      |                 | ppm                   |                 | térfogat %     |                 |                      |                 |       |                 |                 |      |
|                               |         | N <sub>2</sub>                 | Lev. | CH <sub>4</sub> | NO                    | NO <sub>x</sub> | O <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | O <sub>2</sub>       | CO <sub>2</sub> | CO    | CH <sub>4</sub> | NO <sub>x</sub> | NO   |
| Metán+ Vízgőz+NO <sub>x</sub> | 1       | 400                            | 50   | 16,2            | 2180                  | 2200            | 2,3            | 3,475           | 0                    | 1,24            | 0,067 |                 | 90              | 80   |
|                               | 2       | 400                            | 50   | 13,5            | 2180                  | 2200            | 2,3            | 2,913           | 0                    | 1,23            | 0,057 |                 | 70              | 80   |
|                               | 3       | 400                            | 50   | 10,8            | 2180                  | 2200            | 2,3            | 2,344           | 0                    | 1,23            | 0,047 |                 | 70              | 50   |
|                               | 4       | 400                            | 50   | 8,1             | 2180                  | 2200            | 2,3            | 1,768           | 0                    | 1,23            | 0,03  | 0,444           | 80              | 70   |
|                               | 5       | 400                            | 50   | 5,4             | 2180                  | 2200            | 2,3            | 1,186           | 0                    | 1,08            | 0,01  | 0,104           | 290             | 320  |
|                               | 6       | 400                            | 50   | 4,05            | 2180                  | 2200            | 2,3            | 0,892           | 0,9                  | 0,61            | 0,009 | 0,001           | 1880            | 1910 |
| Metán+ Vízgőz                 | 7       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 1,09            | 0,111 |                 | -               | -    |
|                               | 8       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 1,07            | 0,113 |                 | -               | -    |
|                               | 9       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 1,02            | 0,083 |                 | -               | -    |
|                               | 10      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,97            | 0,051 |                 | -               | -    |
|                               | 11      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,91            | 0,027 |                 | -               | -    |
|                               | 12      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,83            | 0,01  | 0,028           | -               | -    |
| Metán                         | 13      | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 1,17            | 0,274 |                 | -               | -    |
|                               | 14      | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,93            | 0,563 |                 | -               | -    |
|                               | 15      | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,79            | 0,448 |                 | -               | -    |
|                               | 16      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,81            | 0,296 |                 | -               | -    |
|                               | 17      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,84            | 0,122 | 0,373           | -               | -    |
|                               | 18      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,8             | 0,015 | 0,004           | -               | -    |

8. melléklet: PdCe-III/Al katalizátor 700 °C-ra szabályozott aktivitási vizsgálatához alkalmazott belépő gáztérfogatáramok és kilépő gázösszetétel

| Mérés száma | T <sub>átl.</sub> °C | Légfeleslegtényező, λ | CH <sub>4</sub> átalakulás, % | NO <sub>x</sub> átalakulás, % |
|-------------|----------------------|-----------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1           | 589,7                | 0,30                  | 27,4                          |                               |
| 2           | 581,3                | 0,36                  | 34,4                          |                               |
| 3           | 574,4                | 0,45                  | 42,7                          |                               |
| 4           | 572,6                | 0,59                  | 56,8                          |                               |
| 5           | 570,6                | 0,89                  | 78,2                          |                               |
| 6           | 570,3                | 1,18                  | 99,0                          |                               |
| 7           | 565,1                | 0,30                  | 26,7                          |                               |
| 8           | 545,3                | 0,36                  | 28,8                          |                               |
| 9           | 513,9                | 0,45                  | 35,8                          |                               |
| 10          | 493,2                | 0,59                  | 51,5                          |                               |
| 11          | 492,6                | 0,89                  | 76,6                          |                               |
| 12          | 500,7                | 1,21                  | 97,9                          |                               |
| 13          | 501,1                | 0,35                  | 41,4                          | 95,5                          |
| 14          | 509,5                | 0,41                  | 48,7                          | 97,3                          |
| 15          | 513,2                | 0,51                  | 62,5                          | 95,5                          |
| 16          | 515,6                | 0,68                  | 73,8                          | 95,9                          |
| 17          | 515,7                | 1,02                  | 95,0                          | 90,9                          |
| 18          | 515,5                | 1,35                  | 99,2                          | 47,7                          |

(a)

| Mérés száma | T <sub>átl.</sub> °C | Légfeleslegtényező, λ | CH <sub>4</sub> átalakulás, % | NO <sub>x</sub> átalakulás, % |
|-------------|----------------------|-----------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1           | 615,7                | 0,35                  | 42,4                          | 95,9                          |
| 2           | 621,8                | 0,41                  | 51,5                          | 96,8                          |
| 3           | 631,9                | 0,51                  | 59,5                          | 96,8                          |
| 4           | 632,8                | 0,68                  | 74,9                          | 96,4                          |
| 5           | 630,1                | 1,02                  | 91,1                          | 86,8                          |
| 6           | 621,8                | 1,35                  | 99,7                          | 14,5                          |
| 7           | 616,9                | 0,30                  | 9,4                           |                               |
| 8           | 619,7                | 0,36                  | 9,4                           |                               |
| 9           | 618,5                | 0,45                  | 11,1                          |                               |
| 10          | 617,1                | 0,59                  | 23,4                          |                               |
| 11          | 619,3                | 0,89                  | 53,1                          |                               |
| 12          | 618,9                | 1,21                  | 96,8                          |                               |
| 13          | 621,3                | 0,30                  | 24,0                          |                               |
| 14          | 638,0                | 0,36                  | 25,3                          |                               |
| 15          | 654,8                | 0,45                  | 29,8                          |                               |
| 16          | 663,7                | 0,59                  | 41,1                          |                               |
| 17          | 670,1                | 0,89                  | 72,7                          |                               |
| 18          | 689,7                | 1,18                  | 90,7                          |                               |

(b)

9. melléklet: PdCe-III/Al katalizátor 600 (a) és 700 °C-ra (b) szabályozott aktivitási vizsgálata során történő CH<sub>4</sub> és NO<sub>x</sub> átalakulás, % és a λ változása

|                                | Sorszám | Belépő gáz térfogatáram Ndm3/h |      |                 | Belépő gáz összetétel |                 |                |                 | Kilépő gáz térfogat% |                 |       |                 |                 |      |
|--------------------------------|---------|--------------------------------|------|-----------------|-----------------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------------|-----------------|-------|-----------------|-----------------|------|
|                                |         |                                |      |                 | ppm                   |                 | térfogat %     |                 |                      |                 |       |                 |                 |      |
|                                |         | N <sub>2</sub>                 | Lev. | CH <sub>4</sub> | NO                    | NO <sub>x</sub> | O <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | O <sub>2</sub>       | CO <sub>2</sub> | CO    | CH <sub>4</sub> | NO <sub>x</sub> | NO   |
| Metán                          | 1       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,76            | 0,095 |                 | -               | -    |
|                                | 2       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,76            | 0,087 |                 | -               | -    |
|                                | 3       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,77            | 0,065 |                 | -               | -    |
|                                | 4       | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,77            | 0,044 |                 | -               | -    |
|                                | 5       | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,77            | 0,025 | 0,225           | -               | -    |
|                                | 6       | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,72            | 0,011 | 0,016           | -               | -    |
| Metán+ Vízgőz                  | 7       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,79            | 0,026 |                 | -               | -    |
|                                | 8       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,78            | 0,022 |                 | -               | -    |
|                                | 9       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,79            | 0,02  |                 | -               | -    |
|                                | 10      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,76            | 0,016 |                 | -               | -    |
|                                | 11      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,75            | 0,011 | 0,228           | -               | -    |
|                                | 12      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,7             | 0,009 | 0,029           | -               | -    |
| Metán+ Vízgőz+ NO <sub>x</sub> | 13      | 400                            | 50   | 16,2            | 2290                  | 2280            | 2,3            | 3,475           | 0                    | 1,08            | 0,023 |                 | 90              | 80   |
|                                | 14      | 400                            | 50   | 13,5            | 2290                  | 2280            | 2,3            | 2,913           | 0                    | 1,06            | 0,023 |                 | 80              | 70   |
|                                | 15      | 400                            | 50   | 10,8            | 2290                  | 2280            | 2,3            | 2,344           | 0                    | 1,07            | 0,018 |                 | 50              | 40   |
|                                | 16      | 400                            | 50   | 8,1             | 2290                  | 2280            | 2,3            | 1,768           | 0                    | 1,07            | 0,015 | 0,442           | 70              | 60   |
|                                | 17      | 400                            | 50   | 5,4             | 2290                  | 2280            | 2,3            | 1,186           | 0                    | 1,03            | 0,008 | 0,036           | 320             | 310  |
|                                | 18      | 400                            | 50   | 4,05            | 2290                  | 2280            | 2,3            | 0,892           | 0                    | 0,6             | 0,009 | 0,011           | 2180            | 2160 |

10. melléklet: PdCe-I/Al550 katalizátor 600 °C-ra szabályozott aktivitási vizsgálatához alkalmazott belépő gáztérfogatáramok és kilépő gázösszetétel

|                               | Sorszám | Belépő gáz térfogatáram Ndm3/h |      |                 | Belépő gáz összetétel |                 |                |                 | Kilépő gáz térfogat% |                 |       |                 |                 |      |
|-------------------------------|---------|--------------------------------|------|-----------------|-----------------------|-----------------|----------------|-----------------|----------------------|-----------------|-------|-----------------|-----------------|------|
|                               |         |                                |      |                 | ppm                   |                 | térfogat %     |                 |                      |                 |       |                 |                 |      |
|                               |         | N <sub>2</sub>                 | Lev. | CH <sub>4</sub> | NO                    | NO <sub>x</sub> | O <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | O <sub>2</sub>       | CO <sub>2</sub> | CO    | CH <sub>4</sub> | NO <sub>x</sub> | NO   |
| Metán+ Vízgőz+NO <sub>x</sub> | 1       | 400                            | 50   | 16,2            | 2280                  | 2290            | 2,3            | 3,475           | 0                    | 1,13            | 0,042 |                 | 90              | 80   |
|                               | 2       | 400                            | 50   | 13,5            | 2280                  | 2290            | 2,3            | 2,913           | 0                    | 1,14            | 0,056 |                 | 70              | 60   |
|                               | 3       | 400                            | 50   | 10,8            | 2280                  | 2290            | 2,3            | 2,344           | 0                    | 1,1             | 0,04  |                 | 50              | 40   |
|                               | 4       | 400                            | 50   | 8,1             | 2280                  | 2290            | 2,3            | 1,768           | 0                    | 1,12            | 0,037 |                 | 50              | 40   |
|                               | 5       | 400                            | 50   | 5,4             | 2280                  | 2290            | 2,3            | 1,186           | 0                    | 1,18            | 0,021 | 0,217           | 80              | 70   |
|                               | 6       | 400                            | 50   | 4,05            | 2280                  | 2290            | 2,3            | 0,892           | 0                    | 0,72            | 0,008 | 0,005           | 2080            | 2050 |
| Metán+ Vízgőz                 | 7       | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,92            | 0,068 |                 | -               | -    |
|                               | 8       | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,89            | 0,063 |                 | -               | -    |
|                               | 9       | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,84            | 0,051 |                 | -               | -    |
|                               | 10      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,77            | 0,038 |                 | -               | -    |
|                               | 11      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,71            | 0,023 |                 | -               | -    |
|                               | 12      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,67            | 0,015 | 0,273           | -               | -    |
| Metán                         | 13      | 400                            | 50   | 16,2            | -                     | -               | 2,1            | 3,475           | 0                    | 0,7             | 0,336 |                 | -               | -    |
|                               | 14      | 400                            | 50   | 13,5            | -                     | -               | 2,1            | 2,913           | 0                    | 0,71            | 0,309 |                 | -               | -    |
|                               | 15      | 400                            | 50   | 10,8            | -                     | -               | 2,1            | 2,344           | 0                    | 0,71            | 0,215 |                 | -               | -    |
|                               | 16      | 400                            | 50   | 8,1             | -                     | -               | 2,1            | 1,768           | 0                    | 0,73            | 0,135 |                 | -               | -    |
|                               | 17      | 400                            | 50   | 5,4             | -                     | -               | 2,1            | 1,186           | 0                    | 0,74            | 0,071 |                 | -               | -    |
|                               | 18      | 400                            | 50   | 4,05            | -                     | -               | 2,1            | 0,892           | 0                    | 0,75            | 0,021 | 0,118           | -               | -    |

11. melléklet: PdCe-I/Al550 katalizátor 700 °C-ra szabályozott aktivitási vizsgálatához alkalmazott belépő gáztérfogatáramok és kilépő gázösszetétel

| Mérés száma | T <sub>átl.</sub> , °C | Légfelesleg-tényező, λ | CH <sub>4</sub> átalakulás, % | NO <sub>x</sub> átalakulás, % |
|-------------|------------------------|------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1           | 562,9                  | 0,30                   | 53,0                          |                               |
| 2           | 558,6                  | 0,36                   | 55,5                          |                               |
| 3           | 560,1                  | 0,45                   | 62,1                          |                               |
| 4           | 557,3                  | 0,59                   | 69,8                          |                               |
| 5           | 553,1                  | 0,89                   | 82,2                          |                               |
| 6           | 557,1                  | 1,18                   | 98,1                          |                               |
| 7           | 530,8                  | 0,30                   | 54,1                          |                               |
| 8           | 513,9                  | 0,36                   | 55,5                          |                               |
| 9           | 512,8                  | 0,45                   | 55,1                          |                               |
| 10          | 513,2                  | 0,59                   | 62,0                          |                               |
| 11          | 514,0                  | 0,89                   | 80,8                          |                               |
| 12          | 509,8                  | 1,21                   | 96,7                          |                               |
| 13          | 522,4                  | 0,35                   | 62,9                          | 96,1                          |
| 14          | 523,3                  | 0,41                   | 63,9                          | 96,5                          |
| 15          | 520,0                  | 0,52                   | 72,5                          | 97,8                          |
| 16          | 517,4                  | 0,68                   | 75,0                          | 96,9                          |
| 17          | 514,3                  | 1,02                   | 89,5                          | 86,0                          |
| 18          | 512,0                  | 1,35                   | 98,5                          | 4,40                          |

(a)

| Mérés száma | T <sub>átl.</sub> , °C | Légfelesleg-tényező, λ | CH <sub>4</sub> átalakulás, % | NO <sub>x</sub> átalakulás, % |
|-------------|------------------------|------------------------|-------------------------------|-------------------------------|
| 1           | 571,7                  | 0,35                   | 59,8                          | 96,1                          |
| 2           | 608,6                  | 0,41                   | 58,2                          | 96,9                          |
| 3           | 614,8                  | 0,52                   | 69,5                          | 97,8                          |
| 4           | 616,3                  | 0,68                   | 68,0                          | 97,8                          |
| 5           | 617,3                  | 1,02                   | 81,7                          | 96,5                          |
| 6           | 612,7                  | 1,35                   | 94,4                          | 9,2                           |
| 7           | 609,6                  | 0,30                   | 33,3                          |                               |
| 8           | 608,6                  | 0,36                   | 26,1                          |                               |
| 9           | 616,3                  | 0,45                   | 30,3                          |                               |
| 10          | 611,0                  | 0,59                   | 32,9                          |                               |
| 11          | 609,7                  | 0,89                   | 50,3                          |                               |
| 12          | 566,2                  | 1,21                   | 68,6                          |                               |
| 13          | 625,5                  | 0,30                   | 26,7                          |                               |
| 14          | 647,5                  | 0,36                   | 27,7                          |                               |
| 15          | 668,3                  | 0,45                   | 28,3                          |                               |
| 16          | 675,6                  | 0,59                   | 37,8                          |                               |
| 17          | 673,8                  | 0,89                   | 52,3                          |                               |
| 18          | 673,2                  | 1,18                   | 86,8                          |                               |

(b)

12. melléklet: PdCe-I/Al550 katalizátor 600 (a) és 700 °C-ra (b) szabályozott aktivitási vizsgálata során történő CH<sub>4</sub> és NO<sub>x</sub> átalakulás, % és a λ változása