

การเกิด N₂O และ SO₃ บนตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้โมลิตินัมเป็นหลักในระหว่างการใช้ตัวเร่งแบบเลือก
เกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาของ NO ด้วย NH₃



นางสาวลภัสสรดา ชื่นกลิ่น

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

CHULALONGKORN UNIVERSITY

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต

สาขาวิชาวิศวกรรมเคมี ภาควิชาวิศวกรรมเคมี

คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ปีการศึกษา 2556

ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

บทคัดย่อและแฟ้มข้อมูลฉบับเต็มของวิทยานิพนธ์ตั้งแต่ปีการศึกษา 2554 ที่ให้บริการในคลังปัญญาจุฬาฯ (CUIR)

เป็นแฟ้มข้อมูลของนิสิตเจ้าของวิทยานิพนธ์ ที่ส่งผ่านทางบัณฑิตวิทยาลัย

The abstract and full text of theses from the academic year 2011 in Chulalongkorn University Intellectual Repository (CUIR) are the thesis authors' files submitted through the University Graduate School.

FORMATION OF N₂O AND SO₃ ON Mo BASED CATALYSTS DURING THE SELECTIVE
CATALYTIC REDUCTION OF NO BY NH₃

Miss Lapatrada Chuenklin



จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Engineering Program in Chemical Engineering

Department of Chemical Engineering

Faculty of Engineering

Chulalongkorn University

Academic Year 2013

Copyright of Chulalongkorn University

หัวข้อวิทยานิพนธ์

การเกิด N2O และ SO3 บนตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้โม
ลิบดีนัมเป็นหลักในระหว่างการรีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วย
ตัวเร่งปฏิกิริยาของ NO ด้วย NH3

โดย

นางสาวลภัสสรดา ชื่นกลิ่น

สาขาวิชา

วิศวกรรมเคมี

อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก

รองศาสตราจารย์ ดร.ธราธร มงคลศรี

คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย อนุมัติให้หัวข้อวิทยานิพนธ์ฉบับนี้เป็นส่วน
หนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรบัณฑิต

.....คณบดีคณะวิศวกรรมศาสตร์

(ศาสตราจารย์ ดร.บัณฑิต เอื้ออาภรณ์)

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

.....ประธานกรรมการ

(ศาสตราจารย์ ดร.ไพศาล กิตติศุภกร)

.....อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก

(รองศาสตราจารย์ ดร.ธราธร มงคลศรี)

.....กรรมการ

(รองศาสตราจารย์ ดร.บรรเจิด จงสมจิตร์)

.....กรรมการภายนอกมหาวิทยาลัย

(ดร.ภมรรัตน์ จันธรรม)

ลัทธิสรดา ขึ้นกลืน : การเกิด N₂O และ SO₃ บนตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้โมลิบดีนัมเป็นหลัก
 ในระหว่างการรีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาของ NO ด้วย NH₃.
 (FORMATION OF N₂O AND SO₃ ON Mo BASED CATALYSTS DURING THE
 SELECTIVE CATALYTIC REDUCTION OF NO BY NH₃) อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์
 หลัก: รศ. ดร.ธราธร มงคลศรี, 70 หน้า.

งานวิจัยชิ้นนี้ศึกษาการเกิดของ N₂O และ SO₃ บนตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂
 Fe₂O₃/TiO₂ CuO/TiO₂ NiO/TiO₂ และโลหะออกไซด์ผสมระหว่าง MoO₃-WO₃/TiO₂
 MoO₃-NiO/TiO₂ ในระหว่างกระบวนการรีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้
 แอมโมเนีย ตัวรองรับ TiO₂ เตรียมด้วยวิธีโซล-เจล (sol-gel method) ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยาเตรียม
 ด้วยวิธีเคลือบฝัง (impregnation method) โดยทำปฏิกิริยา SCR ที่อุณหภูมิตั้งแต่ 120°C ถึง
 450°C และปฏิกิริยา NH₃ oxidation ที่อุณหภูมิ 200°C ถึง 450°C พบว่าตัวเร่งปฏิกิริยา
 MoO₃/TiO₂ CuO/TiO₂ ทำให้เกิด N₂O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃-
 WO₃/TiO₂ และ MoO₃-NiO/TiO₂ ทำให้เกิด N₂O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยา
 NH₃ oxidation นอกจากนี้ไม่พบการเกิด SO₃ จากปฏิกิริยา SO₂ oxidation ผลการทดลองยัง
 ชี้ให้เห็นว่า N₂O เกิดจากปฏิกิริยาการออกซิไดซ์แอมโมเนียหรือปฏิกิริยาระหว่าง NH₃ กับ NO

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
 CHULALONGKORN UNIVERSITY

ภาควิชา วิศวกรรมเคมี

สาขาวิชา วิศวกรรมเคมี

ปีการศึกษา 2556

ลายมือชื่อนิสิต

ลายมือชื่อ อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก

5570352221 : MAJOR CHEMICAL ENGINEERING

KEYWORDS: SELECTIVE CATALYTIC REDUCTION (SCR) / MOLYBDENUM OXIDE /
AMMONIA / NITRIC OXIDE / NITRUS OXIDE

LAPATRADA CHUENKLIN: FORMATION OF N₂O AND SO₃ ON MO BASED
CATALYSTS DURING THE SELECTIVE CATALYTIC REDUCTION OF NO BY
NH₃. ADVISOR: ASSOC. PROF. THARATHON MONGKHONSI, Ph.D., 70 pp.

This thesis studies formation of N₂O and SO₃ on metal oxide catalysts containing MoO₃/TiO₂, Fe₂O₃/TiO₂, CuO/TiO₂, NiO/TiO₂ and bimetal oxide catalysts MoO₃-WO₃ and MoO₃-NiO supported on titania during the selective catalytic reduction of NO by NH₃. TiO₂ and catalysts are prepared by the sol-gel method and impregnation method. The operating temperature is 120–450 °C for SCR process and 200-450 °C for NH₃ oxidation. The SCR results show formation of N₂O on MoO₃/TiO₂ and CuO/TiO₂. Moreover, both MoO₃-WO₃/TiO₂ and MoO₃-NiO/TiO₂ promote the formation of N₂O on SCR process and NH₃ oxidation. In the part of SO₂ oxidation, it was found that SO₃ does not occur. The experimental results also indicate that N₂O forms from the ammonia oxidation reaction or the reaction between NO and NH₃.



Department: Chemical Engineering

Student's Signature

Field of Study: Chemical Engineering

Advisor's Signature

Academic Year: 2013

กิตติกรรมประกาศ

ข้าพเจ้าขอขอบพระคุณรองศาสตราจารย์ ดร. ธราธร มงคลศรี อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ ที่ได้กรุณาให้คำปรึกษารวมถึงให้คำแนะนำในการแก้ปัญหาระหว่างทำการวิจัย ตลอดจนแก้ไขวิทยานิพนธ์ฉบับนี้ให้สมบูรณ์

ขอขอบพระคุณกรรมการสอบวิทยานิพนธ์ ซึ่งประกอบด้วย ศาสตราจารย์ ดร.ไพศาล กิตติศุภกร รองศาสตราจารย์ ดร. ธราธร มงคลศรี รองศาสตราจารย์.ดร.บรรเจิด จงสมจิตร และ ดร.ภมรรัตน์ จันธรรม ที่ให้คำแนะนำในการแก้ไขวิทยานิพนธ์

ข้าพเจ้าขอขอบคุณเจ้าหน้าที่ภาควิชาวิศวกรรมเคมีทุกท่าน ที่ช่วยอำนวยความสะดวกในการทำเอกสาร และคอยให้คำปรึกษาเกี่ยวกับเอกสารในการสอบวิทยานิพนธ์

สุดท้ายข้าพเจ้าขอขอบคุณบริษัท ปตท. จำกัด (มหาชน) ที่สนับสนุนทุนวิจัยและช่วยให้งานวิจัยสำเร็จด้วยดี



จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

สารบัญ

หน้า

บทคัดย่อภาษาไทย.....	ง
บทคัดย่อภาษาอังกฤษ.....	จ
กิตติกรรมประกาศ.....	ฉ
สารบัญ.....	ช
สารบัญตาราง.....	ญ
สารบัญรูป.....	ฎ
บทที่ 1 บทนำ.....	1
1.1 ความเป็นมาและความสำคัญของปัญหา.....	1
1.2 วัตถุประสงค์ของงานวิจัย.....	4
1.3 ขอบเขตงานวิจัย.....	4
บทที่ 2 ทฤษฎีและงานวิจัยที่เกี่ยวข้อง.....	8
2.1 การรีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยา (Selective catalyst reduction).....	8
2.2 ตัวเร่งปฏิกิริยาสำหรับกระบวนการ SCR (Catalysts for the SCR process).....	9
บทที่ 3 ระเบียบวิธีวิจัย.....	15
3.1 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา.....	15
3.1.1 สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ TiO ₂ และตัวเร่งปฏิกิริยา..	15
3.1.2 การเตรียมตัวรองรับ TiO ₂ ด้วยวิธีโซลเจล (solgel).....	16
3.1.3 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา.....	16
3.2 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา.....	17
3.2.1 การวิเคราะห์หาปริมาณโลหะบนตัวเร่งปฏิกิริยาด้วย Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP- OES).....	17
3.2.2 การหาพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิคการดูดซับทางกายภาพด้วยแก๊สไนโตรเจน (N ₂ physisorption).....	18
3.2.3 การหาความเป็นกรด (acid sites) บนตัวเร่งปฏิกิริยา.....	18
3.2.4 การวิเคราะห์ด้วยเครื่องเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ X-ray diffraction (XRD).....	18
3.2.5 การวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด.....	19
3.3 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา.....	19

3.3.1 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของไนตริกออกไซด์ด้วยแอมโมเนีย	20
3.3.2 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชัน	21
3.3.3 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาซัลเฟอร์ไดออกไซด์ออกซิเดชัน	22
บทที่ 4 ผลการทดลองและวิเคราะห์ผลการทดลอง.....	24
4.1 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา	24
4.1.1 การวิเคราะห์หาปริมาณโลหะบนตัวเร่งปฏิกิริยาด้วย Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP- OES)	24
4.1.2 การหาพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิคการดูดซับทางกายภาพด้วยแก๊สไนโตรเจน (N ₂ physisorption).....	25
4.1.3 การหาความเป็นกรด (acid sites) บนตัวเร่งปฏิกิริยา	26
4.1.4 การวิเคราะห์ด้วยเครื่องเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ X-ray diffraction (XRD)	31
4.1.5 การวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด	33
4.2 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา	36
4.2.1 การทดสอบในระหว่างปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยา NH ₃ oxidation	36
4.2.2 การทดสอบในระหว่างปฏิกิริยาการออกซิไดซ์ซัลเฟอร์ไดออกไซด์ (SO ₂ oxidation) .	49
บทที่ 5 สรุปผลการวิจัยและข้อเสนอแนะ	50
5.1 สรุปผลการทดลองคุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา.....	50
5.2 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา	51
5.3 ข้อเสนอแนะ.....	52
รายการอ้างอิง	53
ภาคผนวก ก การคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา	57
ภาคผนวก ข ข้อมูลผลการทดลอง	60
ประวัติผู้เขียนวิทยานิพนธ์	70

สารบัญตาราง

ตารางที่ 1. 1 ความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของไนตริกออกไซด์ด้วยแอมโมเนีย.....	5
ตารางที่ 1. 2 ความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาออกซิไดซ์แอมโมเนีย.....	6
ตารางที่ 1. 3 ความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาออกซิไดซ์ซัลเฟอร์ไดออกไซด์.....	6
ตารางที่ 2. 1 งานวิจัยที่เกี่ยวข้องและสภาวะที่ใช้ในการทดลอง	11
ตารางที่ 3. 1 สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ (TiO ₂) และตัวเร่งปฏิกิริยา.....	15
ตารางที่ 3. 2 ความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยา.....	19
ตารางที่ 3. 3 สภาวะของเครื่อง Shimadzu GC-2014 ที่ใช้ในการวิเคราะห์	21
ตารางที่ 4. 1 เปอร์เซนต์ของโลหะออกไซด์บนตัวเร่งปฏิกิริยา	25
ตารางที่ 4. 2 พื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาและตัวรองรับ TiO ₂	25
ตารางที่ ข. 1 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ /TiO ₂	60
ตารางที่ ข. 2 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO ₂	61
ตารางที่ ข. 3 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา Fe ₂ O ₃ /TiO ₂	62
ตารางที่ ข. 4 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO ₂	63
ตารางที่ ข. 5 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -WO ₃ /TiO ₂	64
ตารางที่ ข. 6 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -NiO/TiO ₂	65
ตารางที่ ข. 7 ผล NO _x conversion (%) ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ /TiO ₂	66
ตารางที่ ข. 8 ผล NO _x conversion (%) ของตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO ₂	67
ตารางที่ ข. 9 ผล NO _x conversion (%) ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -WO ₃ /TiO ₂	68
ตารางที่ ข. 10 ผล NO _x conversion (%) ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -NiO/TiO ₂	69

สารบัญรูป

รูปที่ 3. 1 ระบบของการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา	23
รูปที่ 4. 1 NH ₃ -TPD pattern ของตัวรองรับ TiO ₂	27
รูปที่ 4. 2 NH ₃ -TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ /TiO ₂	27
รูปที่ 4. 3 NH ₃ -TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา Fe ₂ O ₃ /TiO ₂	28
รูปที่ 4. 4 NH ₃ -TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO ₂	28
รูปที่ 4. 5 NH ₃ -TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO ₂	29
รูปที่ 4. 6 NH ₃ -TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -WO ₃ /TiO ₂	29
รูปที่ 4. 7 NH ₃ -TPD ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -NiO/TiO ₂	30
รูปที่ 4. 8 การหักเหรังสีเอกซ์ของตัวรองรับ TiO ₂ และตัวเร่งปฏิกิริยา	32
รูปที่ 4. 9 FT-IR สเปกตรัมของตัวรองรับ TiO ₂	34
รูปที่ 4. 10 FT-IR สเปกตรัมของตัวรองรับ TiO ₂ และตัวเร่งปฏิกิริยา	35
รูปที่ 4. 11 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ /TiO ₂	38
รูปที่ 4. 12 ปฏิกิริยาของ NH ₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ /TiO ₂	38
รูปที่ 4. 13 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO ₂	39
รูปที่ 4. 14 ปฏิกิริยาของ NH ₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO ₂	39
รูปที่ 4. 15 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา Fe ₂ O ₃ /TiO ₂	41
รูปที่ 4. 16 ปฏิกิริยาของ NH ₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา Fe ₂ O ₃ /TiO ₂	41
รูปที่ 4. 17 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO ₂	42
รูปที่ 4. 18 ปฏิกิริยาของ NH ₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO ₂	42
รูปที่ 4. 19 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา WO ₃ /TiO ₂	44
รูปที่ 4. 20 ปฏิกิริยาของ NH ₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา WO ₃ /TiO ₂	44
รูปที่ 4. 21 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -WO ₃ /TiO ₂	45
รูปที่ 4. 22 ปฏิกิริยาของ NH ₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -WO ₃ /TiO ₂	45
รูปที่ 4. 23 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -NiO/TiO ₂	47
รูปที่ 4. 24 ปฏิกิริยาของ NH ₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา MoO ₃ -NiO/TiO ₂	47

บทที่ 1

บทนำ

1.1 ความเป็นมาและความสำคัญของปัญหา

ไนโตรเจนออกไซด์ (NO_x) เป็นคำที่ใช้กล่าวถึงสารประกอบของไนโตรเจนและออกซิเจน ไนโตรเจนออกไซด์เกิดจากกระบวนการเผาไหม้ของเครื่องยนต์และในอุตสาหกรรม ซึ่งไนโตรเจนออกไซด์ตัวที่สำคัญและเป็นที่ยอมรับว่าทำให้เกิดมลพิษทางอากาศ ได้แก่ ไนตริกออกไซด์ (NO) ไนโตรเจนไดออกไซด์ (NO_2) และไนตรัสออกไซด์ ซึ่งทำให้เกิดควันพิษ ฝนกรด และปรากฏการณ์เรือนกระจก (greenhouse effect) [1]

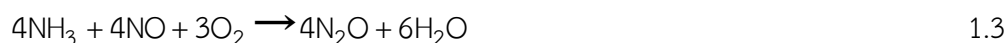
ผลกระทบจากมลพิษทางอากาศที่ได้กล่าวมาทำให้เกิดเทคโนโลยีในการกำจัดไนโตรเจนออกไซด์จากแหล่งกำเนิดที่อยู่กับที่ (stationary sources) ซึ่งเทคโนโลยีที่นิยมมากที่สุดคือ การรีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้แอมโมเนีย (the selective catalyst reduction (SCR) by ammonia) [2] ซึ่งเทคโนโลยีนี้จะนำแก๊สเสียจากแหล่งกำเนิดที่คงที่มากำจัดด้วยแอมโมเนียโดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาที่อุณหภูมิระหว่าง 250 ถึง 450°C [1] ซึ่งสมการแสดงปฏิกิริยาการกำจัดไนโตรเจนออกไซด์ด้วยแอมโมเนียแสดงดังสมการ [3]



โดยทั่วไปจะใช้ออกซิเจนในการทำปฏิกิริยาร่วม



จากสมการที่ 1.2 แอมโมเนียและไนตริกออกไซด์สามารถเกิดผลิตภัณฑ์ที่ไม่ต้องการ คือ ไนตรัสออกไซด์ ดังสมการที่ 1.3



นอกจากนี้ที่อุณหภูมิสูงแอมโมเนียสามารถทำปฏิกิริยากับออกซิเจนเกิดเป็นไนตริกออกไซด์ ซึ่งเรียกปฏิกิริยานี้ว่า ปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชัน (ammonia oxidation) ดังสมการที่ 1.4



ไนตรัสออกไซด์เกิดจากปฏิกิริยาของการกำจัดไนโตรเจนออกไซด์ด้วยแอมโมเนีย (ปฏิกิริยาที่ 1.3) และเกิดจากปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชัน (ปฏิกิริยาที่ 1.5) ซึ่งไนตรัสออกไซด์จะทำลายชั้นโอโซนและมีส่วนทำให้เกิดปรากฏการณ์เรือนกระจก [4]

กระบวนการกำจัดไนโตรเจนออกไซด์ด้วยแอมโมเนียใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแวนเดียมออกไซด์บนตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ร่วมกับทั้งสแตนหรือโมลิบดีนัมออกไซด์ แวนเดียมทำหน้าที่เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาที่เปลี่ยนไนตริกออกไซด์เป็นแก๊สไนโตรเจน แต่แวนเดียมออกไซด์ส่งเสริมทำให้เกิดปฏิกิริยาซัลเฟอร์ออกซิเดชัน ซึ่งเปลี่ยนซัลเฟอร์ไดออกไซด์ (SO_2) เป็นซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ (SO_3) ซึ่งซัลเฟอร์ไตรออกไซด์สามารถทำปฏิกิริยากับแอมโมเนียเกิดเป็นเกลือของแอมโมเนียและนำไปสู่การกัดกร่อนในระบบท่อได้ [5]

ทั้งสแตนออกไซด์และโมลิบดีนัมออกไซด์ใช้เป็นตัวส่งเสริม (promoter) เพื่อเพิ่มพื้นที่ความเป็นกรด เพิ่มการเร่งปฏิกิริยา เพิ่มเสถียรภาพทางอุณหภูมิของตัวเร่งปฏิกิริยา (thermal stability) และช่วยลดการเกิดของซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ [1, 6, 7] นอกจากนี้โมลิบดีนัมออกไซด์ยังกำจัดไนตริกออกไซด์ได้ดีกว่าวานาเดียมออกไซด์ที่อุณหภูมิต่ำ [8] นอกจากนี้โลหะออกไซด์ที่หลักทั้งสามตัวที่ได้กล่าวมาแล้วยังมีโลหะออกไซด์อื่นๆที่ใช้เป็นตัวเร่งปฏิกิริยา เช่น ออกไซด์ของเหล็ก ทองแดง นิกเกิล โคบอล โครเมียม และซีเรียม [5]

ในงานวิจัยที่ผ่านมาเน้นศึกษาการกำจัดไนตริกออกไซด์เป็นส่วนใหญ่ ดังนั้นในงานวิจัยนี้จึงศึกษาการเกิดของไนตรัสออกไซด์และซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ ในระหว่างกระบวนการกำจัดไนโตรเจนออกไซด์ด้วยแอมโมเนียและในปฏิกิริยาแอมโมเนียออกไซด์เซน โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาเป็นออกไซด์ของโมลิบดีนัม เหล็ก ทองแดง นิกเกิล ทั้งสแตน และจำลององค์ประกอบของแก๊สจากโรงไฟฟ้ากังหันแก๊ส (gas turbine power plant)

1.2 วัตถุประสงค์ของงานวิจัย

ศึกษาการเกิดของไนตรัสออกไซด์และซัลเฟอร์ไดรอกไซด์บนตัวเร่งปฏิกิริยาโมลิบดีนัมออกไซด์ เหล็กออกไซด์ ทองแดงออกไซด์ นิกเกิลออกไซด์ บนตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ (TiO_2) และโมลิบดีนัมออกไซด์ร่วมกับเหล็กออกไซด์และทองแดงออกไซด์บนตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ (TiO_2) ในระหว่างกระบวนการรีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้แอมโมเนีย

1.3 ขอบเขตงานวิจัย

1.3.1 การเตรียมตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ (TiO_2) ด้วยวิธีโซลเจล (sol-gel)

1.3.2 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยวิธีการเคลือบฝัง (impregnation method)

1.3.3 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา

1.3.3.1 การวิเคราะห์หาปริมาณโลหะบนตัวเร่งปฏิกิริยาด้วย Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP- OES)

1.3.3.2 การหาพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิคการดูดซับทางกายภาพด้วยแก๊สไนโตรเจน (N_2 physisorption)

1.3.3.3 การหาความเป็นกรด (acid sites) บนตัวเร่งปฏิกิริยา

1.3.3.4 การวิเคราะห์ด้วยเครื่องเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ X-ray diffraction (XRD)

1.3.3.5 การวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด

1.3.4 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

1.3.4.1 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของไนตรัสออกไซด์ด้วยแอมโมเนีย

ทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างอุณหภูมิ 120 ถึง 450 °C อัตราการไหลรวมของแก๊ส 200 ml/min องค์ประกอบของแก๊สที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาดังตารางที่ 1.1

ตารางที่ 1. 1 ความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของไนตริกออกไซด์ด้วยแอมโมเนีย

แก๊สตั้งต้น	ความเข้มข้น
NO	120 ppm
O ₂	15 %vol
NH ₃	120 ppm
SO ₂	30 ppm
H ₂ O	15 %vol
N ₂	balanced

1.3.4.2 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาออกไซด์แอมโมเนีย (NH₃ oxidation)

ทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างอุณหภูมิ 200 ถึง 450°C อัตราการไหลรวมของแก๊ส 200 ml/min องค์ประกอบของแก๊สที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาดังตารางที่ 1.2

ตารางที่ 1. 2 ความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาออกซิไดซ์แอมโมเนีย
(NH₃ oxidation)

แก๊สตั้งต้น	ความเข้มข้น
O ₂	15 %vol
NH ₃	120 ppm
SO ₂	30 ppm
H ₂ O	15 %vol
N ₂	balanced

1.3.4.3 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาออกซิไดซ์ซัลเฟอร์ไดออกไซด์
(SO₂ oxidation)

ทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างอุณหภูมิ 200 ถึง 450°C อัตราการไหลรวมของแก๊ส 200 ml/min องค์ประกอบของแก๊สที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาดังตารางที่ 1.3

ตารางที่ 1. 3 ความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาออกซิไดซ์ซัลเฟอร์ไดออกไซด์

แก๊สตั้งต้น	ความเข้มข้น
NO	120 ppm
O ₂	15 %vol
NH ₃	120 ppm
SO ₂	30 ppm
N ₂	balanced

วิทยานิพนธ์เล่มนี้แบ่งเนื้อหาออกเป็นบทซึ่งแต่ละบทมีเนื้อหา ดังนี้

บทที่ 1 ความเป็นมาและความสำคัญของปัญหา รวมถึงวัตถุประสงค์และขอบเขตงานวิจัย

บทที่ 2 ทฤษฎีและงานวิจัยที่เกี่ยวข้อง

บทที่ 3 ระเบียบวิธีวิจัย ซึ่งประกอบด้วย การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา การวิเคราะห์คุณลักษณะ
ของตัวเร่งปฏิกิริยาและการทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

บทที่ 4 ผลการทดลองและวิเคราะห์ผลการทดลอง

บทที่ 5 สรุปผลการทดลอง

บทที่ 2 ทฤษฎีและงานวิจัยที่เกี่ยวข้อง

2.1 การรีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยา (Selective catalyst reduction)

การรีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยา (Selective catalyst reduction (SCR)) คือ เทคโนโลยีที่ใช้กำจัดไนโตรเจนออกไซด์ (โดยในงานวิจัยชิ้นนี้สนใจไนตริกออกไซด์และไนตริสออกไซด์) โดยใช้ตัวรีดิวซ์ (reducing agent) โดยตัวรีดิวซ์แบ่งออกเป็นสองประเภทคือ สารอินทรีย์ (ไฮโดรคาร์บอนอิ่มตัวหรือไฮโดรคาร์บอนไม่อิ่มตัว สารประกอบไฮโดรคาร์บอนที่มีออกซิเจน (oxygenated hydrocarbons)) และสารอนินทรีย์ (แอมโมเนีย) ซึ่งงานวิจัยชิ้นนี้จะเน้นที่การกำจัดไนโตรเจนออกไซด์โดยใช้ตัวรีดิวซ์เป็นแอมโมเนีย ซึ่งเทคโนโลยีนี้ใช้ประโยชน์ในอุตสาหกรรมการผลิตกรดไนตริก การเผาขยะ (waste incineration) โรงไฟฟ้า (power plants) [6] เทคโนโลยี SCR-NH₃ จะใช้แอมโมเนียและออกซิเจนในการเปลี่ยนไนโตรเจนออกไซด์เป็นไนโตรเจนและน้ำโดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแสดงดังสมการที่ 2.1 [1]



เนื่องจากอุณหภูมิที่ใช้ในกระบวนการอยู่ระหว่าง 250 ถึง 450°C ดังนั้นที่อุณหภูมิสูงแอมโมเนียอาจทำปฏิกิริยากับออกซิเจนแทนไนตริกออกไซด์ (ปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชัน (NH₃ oxidation)) เกิดเป็นไนตริกออกไซด์ในระบบดังสมการที่ 2.2 ถึง 2.4



นอกจากปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชันแล้วแอมโมเนียและไนตริกออกไซด์ยังเกิดผลิตภัณฑ์ที่ไม่ต้องการ คือ ไนตรัสออกไซด์ ดังสมการที่ 2.5



การเกิดไนตรัสออกไซด์ในระหว่างปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชันและกระบวนการ SCR พบว่า ในปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชันปริมาณวาเนเดียมออกไซด์เพิ่มขึ้นมีผลต่อการเกิดไนตรัสออกไซด์เพิ่มขึ้น ส่วนกระบวนการ SCR พบว่า ไนตรัสออกไซด์เพิ่มขึ้นอย่างมีนัยสำคัญเมื่อ V_2O_5 เท่ากับ 8 wt% และอุณหภูมิสูงกว่า 300°C [4]

นอกจากนี้ยังมีการศึกษาการเกิดไนตรัสออกไซด์ที่อุณหภูมิต่ำในระหว่างกระบวนการ SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยาวาเนเดียมออกไซด์บนตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ ($\text{V}_2\text{O}_5/\text{TiO}_2$) ซึ่งพบว่ากระบวนการ SCR ที่อุณหภูมิต่ำการเกิดไนตรัสออกไซด์ขึ้นอยู่กับปริมาณของวาเนเดียมบนตัวเร่งปฏิกิริยา นอกจากนี้ที่อุณหภูมิต่ำยังไม่พบไนตรัสออกไซด์ในระหว่างปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชัน [9]

2.2 ตัวเร่งปฏิกิริยาสำหรับกระบวนการ SCR (Catalysts for the SCR process)

ตัวเร่งปฏิกิริยาในกระบวนการ SCR ได้แก่ $\text{V}_2\text{O}_5 - \text{WO}_3$ หรือ $\text{V}_2\text{O}_5 - \text{MoO}_3$ บนตัวรองรับ TiO_2 โดยในปัจจุบันได้มีตัวเลือกสำหรับตัวรองรับมากขึ้นซึ่งเป็นพวก อะลูมินา (alumina) ซิลิกา (silica) และเซอร์โคเนีย (zirconia) เป็นต้น [3] แต่ TiO_2 ก็ยังนิยมใช้เป็นตัวรองรับสำหรับ V_2O_5 เนื่องจาก V_2O_5 กระจายตัวได้ดีบนพื้นผิว TiO_2 และยังสามารถเกิดอันตรกิริยา (strong interaction) ที่สูงกับ TiO_2 [6, 10] นอกจากนี้ไทเทเนียมไดออกไซด์ยังเป็นตัวรองรับที่มีความเสถียรและมีความต้านทานซัลเฟตสูงในกรณีที่มีซัลเฟอร์ไดออกไซด์ [1, 6] ถึงแม้ว่า V_2O_5 จะเป็นตัวเร่งปฏิกิริยาที่สามารถกำจัดไนตริกออกไซด์ได้ดีแต่ในทางกลับกันกลับทำให้เกิดซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ได้ถ้าในระบบมีความเข้มข้นของซัลเฟอร์ไดออกไซด์ที่สูง [1] ซึ่งซัลเฟอร์ไตรออกไซด์สามารถทำปฏิกิริยากับแอมโมเนียเกิดเป็นเกลือแอมโมเนียที่สามารถสะสมอยู่บนตัวเร่งปฏิกิริยาหรือในเครื่องปฏิกรณ์ได้ ดังสมการที่ 2.6 ถึง 2.8





จากที่ได้กล่าวมาจึงมีการเติม WO_3 และ MoO_3 ใน V_2O_5 เพื่อเพิ่มความเป็นกรดของพื้นผิว เพิ่มการเร่งปฏิกิริยา ความเสถียรต่ออุณหภูมิและลดการเกิดซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ [6] นอกจากนี้ MoO_3 ยังสามารถกำจัดไนตริกออกไซด์ได้ดีที่อุณหภูมิต่ำ [8]

ในงานวิจัยที่ผ่านมาได้มีการศึกษาการกำจัดไนตริกออกไซด์ด้วย MoO_3 และ V_2O_5 ที่ถูกปรับปรุงด้วยโลหะออกไซด์ตัวอื่น แต่ยังไม่มีการศึกษาการเกิดขึ้นของซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ ที่สภาวะออกซิเจนสูง และมีไอน้ำในระบบ ดังตารางที่ 2.1

ตารางที่ 2. 1 งานวิจัยที่เกี่ยวข้องและสภาวะที่ใช้ในการทดลอง

ปี	ผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของแก๊ส						การตรวจวัด
				NO (ppm)	NH ₃ (ppm)	O ₂ (%vol)	SO ₂ (%vol)	H ₂ O (%vol)	balance	
1995	Matralis H et al. [11]	MoO ₃ /TiO ₂	250	0.65 vol.%	0.515 vol.%	5	5	-	He	NO
1995	Ramis G et al. [12]	CuO/TiO ₂ , MgO- Fe ₂ O ₃	200-350	650	650	3	-	-	Ar	NO, N ₂ O
1998	Nova I et al. [13]	MoO ₃ /TiO ₂	202-502	800	800	1	-	-	He	NO
1999	Casagrande L et al. [14]	V ₂ O ₅ -MoO ₃ /TiO ₂	202 - 452	800	800	9000 ppm	-	-	He	NO, N ₂ O
1999	Lietti L et al. [15]	V ₂ O ₅ -MoO ₃ /TiO ₂	202 - 452	800	800	9000 ppm	-	-	He	NO, N ₂ O
2002	Fountzoula Ch et al [16]	MoO ₃ /TiO ₂	250-450	800	800	4	-	-	N ₂	NO, N ₂ O

ตารางที่ 2. 1 งานวิจัยที่เกี่ยวข้องและสภาวะที่ใช้ในการทดลอง (ต่อ)

ปี	ผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของแก๊ส							การตรวจวัด
				NO (ppm)	NH ₃ (ppm)	O ₂ (%vol)	SO ₂ (%vol)	H ₂ O (%vol)	balance		
2002	Suares S et al. [17]	V ₂ O ₅ /TiO ₂ , V ₂ O ₅ /Al ₂ O ₃ CuO/TiO ₂ , CuO/Al ₂ O ₃	180-500	1000	1000	3	-	-	He	NO, N ₂ O	
2003	Qi and Yang [18]	Fe-Mn/TiO ₂ , Mn/TiO ₂	80-180	1000	1000	2	100 ppm	2.5	He	NO	
2004	Pena D et al. [19]	Mn/TiO ₂ , Cu/TiO ₂ V/TiO ₂ , Fe/TiO ₂ Ni/TiO ₂ , Cr/TiO ₂ Co/TiO ₂	100-300	400	400	2	-	-	He	NO	

ตารางที่ 2.1 งานวิจัยที่เกี่ยวข้องและสภาวะที่ใช้ในการทดลอง (ต่อ)

ปี	ผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของแก๊ส						การตรวจวัด
				NO (ppm)	NH ₃ (ppm)	O ₂ (%vol)	SO ₂ (%vol)	H ₂ O (%vol)	balance	
2005	Suares S et al. [20]	CuO/TiO ₂	200	540	770	4	-	-	N ₂	NO _x , N ₂ O
2008	Krocher and Elsener [21]	V ₂ O ₅ /WO ₃ /TiO ₂	200-450	1000	0-2000	10	-	5	N ₂	NO, N ₂ O
2008	Roy S et al. [22] [22]	Cr/TiO ₂ , Mn/TiO ₂ Fe/TiO ₂ , Co/TiO ₂ Cu/TiO ₂	100-500	10000	10000	50000 ppm	-	-	N ₂	NO
2010	Lui F et al. [23]	Fe ₂ O ₃ /TiO ₂	100-400	500	500	5	-	-	N ₂	NO

ตารางที่ 2.1 งานวิจัยที่เกี่ยวข้องและสภาวะที่ใช้ในการทดลอง (ต่อ)

ปี	ผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของแก๊ส							การตรวจวัด
				NO (ppm)	NH ₃ (ppm)	O ₂ (%vol)	SO ₂ (%vol)	H ₂ O (%vol)	balance		
2010	Zhu J et al. [24]	Ni/Mo/CeO ₂ Cu/Mo/ CeO ₂ Fe/Mo/CeO ₂	200- 350	700	700	4	-	-	N ₂	NO	
2012	Thirupathi and Smirniotis [25]	Mn-Ni/TiO ₂	100-250	400	400	2	-	-	He	NO	
2012	Zhang et al [26]	V ₂ O ₅ /WO ₃ /TiO ₂	120-240	500	500	5	-	-	N ₂	NO	
2014	Lui Z et al [27]	Mo-Ce/TiO ₂	200-450	500	500	5	-	-	He	NO	

บทที่ 3 ระเบียบวิธีวิจัย

ระเบียบวิธีวิจัยแบ่งออกเป็น 3 ส่วน ดังนี้ การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยาและการทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

3.1 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

3.1.1 สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ TiO_2 และตัวเร่งปฏิกิริยา แสดงในตารางที่ 3.1

ตารางที่ 3. 1 สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ (TiO_2) และตัวเร่งปฏิกิริยา

สารเคมี	บริษัทผู้ผลิต
Titanium (IV) isopropoxide, 97%	Aldrich
Ammonium molybdenate tetrahydrate, $\geq 99.0\%$	Aldrich
Iron (III) nitrate ($9\text{H}_2\text{O}$), 99.99%	Fluka
Nickel (II) nitrate hexahydrat	Sigma
Copper (II) nitrate ($2.5 \text{H}_2\text{O}$)	Ajax
Nitric acid 65%	Aldrich

3.1.2 การเตรียมตัวรองรับ TiO₂ ด้วยวิธีโซลเจล (solgel)

ขั้นตอนแรกใช้ Ti(OCH₂CH₂CH₃)₄ HNO₃ เป็นสารตั้งต้นผสมกับน้ำกลั่นปราศจากไอออน (deionized water) จากนั้นเติมกรดไนตริกลงไปช้าๆ แล้วกวนทิ้งไว้ 3 วัน หรือจนได้สารละลายใส นำสารละลายใสที่ได้มาปรับ pH ด้วยวิธีแยกสารผ่านเยื่อ (dialysis method) จนสารละลายมีค่า pH เท่ากับ 3.5 จากนั้นนำไปอบให้แห้งที่อุณหภูมิ 110°C นำผลึกที่ได้มาบดให้ละเอียดและนำไปเผาด้วยอากาศที่อุณหภูมิ 350°C เป็นเวลา 4 ชั่วโมง

3.1.3 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมมีดังนี้ MoO₃/TiO₂, Fe₂O₃/TiO₂, NiO/TiO₂, CuO/TiO₂, MoO₃-WO₃/TiO₂, MoO₃-NiO/TiO₂ ปริมาณโลหะออกไซด์ทุกตัวคิดจากจำนวนโมลของไอออนบวกของโลหะเท่ากับจำนวนโมลของไอออนบวกของโลหะวาเนเดียมที่คิดเป็น V₂O₅ 3 wt% โดยคิดเป็น MoO₃ 4.75 wt% Fe₂O₃ 2.63 wt% CuO 2.62 wt% NiO 2.46 wt% และ WO₃ 7.65 wt% โดยมีวิธีการเตรียมดังต่อไปนี้

3.1.3.1 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂, Fe₂O₃/TiO₂, NiO/TiO₂, CuO/TiO₂

เตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ ด้วยวิธีการเคลือบฝัง (impregnation method) โดยนำ แอมโมเนียมโมลิบดินเตตระไฮเดรต (Ammonium molybdenate tetrahydrate) ละลายในน้ำกลั่นปราศจากไอออนประมาณ 4.75 wt% จากนั้นค่อยๆ หยดสารละลายให้พอดีกับปริมาตรรูพรุนของตัวรองรับ TiO₂ จากนั้นนำไปอบไล่ที่อุณหภูมิ 110°C เป็นเวลา 24 ชั่วโมง แล้วนำไปเผาด้วยอากาศที่อุณหภูมิ 500°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยาเฟอร์ริกออกไซด์ (Fe₂O₃/TiO₂) นิกเกิลออกไซด์ (NiO) คอปเปอร์ออกไซด์ (CuO) ทำตามขั้นตอนดังกล่าว โดยใช้ไอรอนไนเตรต (Iron (III) nitrate), นิกเกิลไนเตรตเฮกซะไฮเดรต (Nickel (II) nitrate hexahydrate) คอปเปอร์ไนเตรต

(Copper (II) nitrate) เป็นสารตั้งต้นแทน $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ตามลำดับ โดยมีเปอร์เซ็นต์ของโลหะออกไซด์ดังนี้ Fe_2O_3 2.63 wt% NiO 2.46 wt% CuO 2.62 wt%

3.1.3.1 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$, $\text{MoO}_3\text{-NiO}/\text{TiO}_2$

เตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3/\text{TiO}_2$ ด้วยวิธีการเคลือบฝัง (impregnation method) โดยนำแอมโมเนียมโมลิบดีเนตเตตระไฮเดรต (Ammonium molybdenate tetrahydrate) ละลายในน้ำกลั่นบริสุทธิ์ประมาณ 4.75 wt% จากนั้นค่อยๆหยดสารละลายให้พอดีกับปริมาตรรูพรุนของตัวรองรับ TiO_2 จากนั้นนำไปอบไล่ไอน้ำที่อุณหภูมิ 110°C เป็นเวลา 6 ชั่วโมง จากนั้นนำแอมโมเนียมเมตาซังเตตไฮเดรต (Ammonium metatungstate hydrate) ละลายในน้ำกลั่นบริสุทธิ์ประมาณ 7.65 wt% จากนั้นค่อยๆหยดสารละลายให้พอดีกับปริมาตรรูพรุนของตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3/\text{TiO}_2$ จากนั้นนำไปอบไล่ไอน้ำที่อุณหภูมิ 110°C เป็นเวลา 24 ชั่วโมง แล้วนำไปเผาด้วยอากาศที่อุณหภูมิ 500°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-NiO}/\text{TiO}_2$ ทำตามขั้นตอนดังกล่าวโดยใช้นิกเกิลไนเตรตเฮกซะไฮเดรต (Nickel (II) nitrate hexahydrate) แทนแอมโมเนียมเมตาซังเตตไฮเดรต โดยมี NiO 2.46 wt%

3.2 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา

3.2.1 การวิเคราะห์หาปริมาณโลหะบนตัวเร่งปฏิกิริยาด้วย Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP- OES)

นำตัวเร่งปฏิกิริยา 0.1 g ละลายในกรดไฮโดรฟลูออริกเข้มข้น โดยปั่นกวนจนได้สารละลายใส จากนั้นปรับปริมาตรเป็น 100 ml แล้วนำไปวิเคราะห์ปริมาณโลหะด้วยเครื่อง ICP-OES (Perkin Elmer model PLASMA-1000)

3.2.2 การหาพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิคการดูดซับทางกายภาพด้วยแก๊สไนโตรเจน (N_2 physisorption)

นำตัวเร่งปฏิกิริยา 0.1 g บรรจุในเซลล์ใส่ตัวอย่าง และนำไปวิเคราะห์ด้วยเครื่อง Micromeritics chemisorb 2750 โดยไล่น้ำออกจากตัวเร่งปฏิกิริยาเป็นเวลา 4 ชั่วโมง ด้วยอุณหภูมิ $200^\circ C$ จากนั้นดูดซับด้วยแก๊สไนโตรเจนที่สภาวะลบ $196^\circ C$ จากนั้นตัวอย่างจะคายการดูดซับที่อุณหภูมิห้อง นำค่าที่ได้ไปคำนวณหาพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา

3.2.3 การหาความเป็นกรด (acid sites) บนตัวเร่งปฏิกิริยา

วิเคราะห์หาความเป็นกรดบนตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิค NH_3 Temperature Programmed Desorption (NH_3 -TPD) ด้วยเครื่อง Micromeritics chemisorb 2750 ที่ใช้ตัวตรวจวัดชนิด Thermal conductivity detector (TCD) โดยมีขั้นตอนดังนี้ นำตัวเร่งปฏิกิริยา 0.1 g บรรจุในเซลล์ใส่ตัวอย่างและไล่น้ำออกจากตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยอุณหภูมิ $500^\circ C$ เป็นเวลา 1 ชั่วโมง จากนั้นลดอุณหภูมิลงเป็น $100^\circ C$ จากนั้นฉีดแก๊สแอมโมเนียเพื่อให้ตัวอย่างดูดซับและไล่น้ำแก๊สแอมโมเนียที่ไม่ดูดซับด้วยแก๊สฮีเลียมเป็นเวลา 3 ชั่วโมง จากนั้นอุณหภูมิจะเพิ่มขึ้นด้วยอัตรา $10^\circ C/min$ จนได้อุณหภูมิ $500^\circ C$ โดยสัญญาณจากขั้นตอนดังกล่าวจะนำมาหาตำแหน่งกรดของตัวเร่งปฏิกิริยา

3.2.4 การวิเคราะห์ด้วยเครื่องเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ X-ray diffraction (XRD)

การวิเคราะห์ด้วยเครื่องเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ เป็นการวิเคราะห์เพื่อหารูปแบบการเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ (XRD pattern) ของโลหะออกไซด์ และหารูปแบบการจัดเรียงโครงสร้างผลึกของตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์ด้วยเครื่อง D8 ADVANCE ของ Bruker ใช้ $CuK\alpha$ เป็นแหล่งกำเนิดรังสีเอ็กซ์ ความยาวคลื่นเท่ากับ 1.54056 อังสตรอม การวิเคราะห์ทำที่มุม 2 เธต้า (theta) ระหว่าง 20 ถึง 80 องศา ชั้นการสแกนเท่ากับ 0.02 องศา ช่องว่าง (slit width) เท่ากับ 0.6 นาโนเมตร

3.2.5 การวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด

การตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วย Nicolet model Impact 6700 ใช้ช่วงของรังสีอินฟราเรดตั้งแต่ 400 ถึง 4000 cm^{-1}

3.3 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาแบ่งออกเป็น 3 ปฏิกิริยา คือ การทดสอบในระหว่างปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของไนตริกออกไซด์ด้วยแอมโมเนีย (The selective catalytic reduction of NO by NH_3) การทดสอบในระหว่างปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชัน (Ammonia oxidation) และการทดสอบในระหว่างปฏิกิริยาซัลเฟอร์ไดออกไซด์ออกซิเดชัน (SO_2 oxidation) โดยในการทดสอบมีความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นดังตารางที่ 3.2 และแสดงแผนผังของระบบการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาดังรูปที่ 3.1

ตารางที่ 3. 2 ความเข้มข้นของแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยา

แก๊สตั้งต้น	ความเข้มข้น
NO	120 ppm
O_2	15 %vol
NH_3	120 ppm
SO_2	30 ppm
H_2O	15 %vol
N_2	balanced

3.3.1 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของไนตริกออกไซด์ด้วยแอมโมเนีย

การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของไนตริกออกไซด์ด้วยแอมโมเนียทำในเครื่องปฏิกรณ์แบบเบตนิ่ง (fixed bed reactor) เส้นผ่าศูนย์กลาง 3/8 นิ้ว ทำจากวัสดุเหล็กกล้าไร้สนิม (stainless) บรรจุตัวเร่งปฏิกิริยา 0.1 g ในเครื่องปฏิกรณ์และให้แก๊สตั้งต้นไหลผ่านตัวเร่งปฏิกิริยาเท่ากับ 200 ml/min ประกอบด้วยแก๊สไนตริกออกไซด์ (NO) แอมโมเนีย (NH₃) ออกซิเจน (O₂) ซัลเฟอร์ไดออกไซด์ (SO₂) ไอน้ำ (H₂O) และไนโตรเจน (N₂) ให้ความร้อนกับระบบด้วยเตาไฟฟ้า โดยอุณหภูมิที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาตั้งแต่ 120 ถึง 450°C และวัดความเข้มข้นของไนตริกออกไซด์ (NO) และไนโตรเจนไดออกไซด์ (N₂O) ที่ออกจากเครื่องปฏิกรณ์ด้วยเครื่องแก๊สโครมาโตกราฟ (Gas chromatograph) Shimadzu GC-2014 โดยใช้ Electron Capture Detector (ECD) เป็นตัวตรวจวัด โดยรายละเอียดของเครื่อง Shimadzu GC-2014 แสดงในตารางที่ 3.3

ตารางที่ 3. 3 สภาวะของเครื่อง Shimadzu GC-2014 ที่ใช้ในการวิเคราะห์

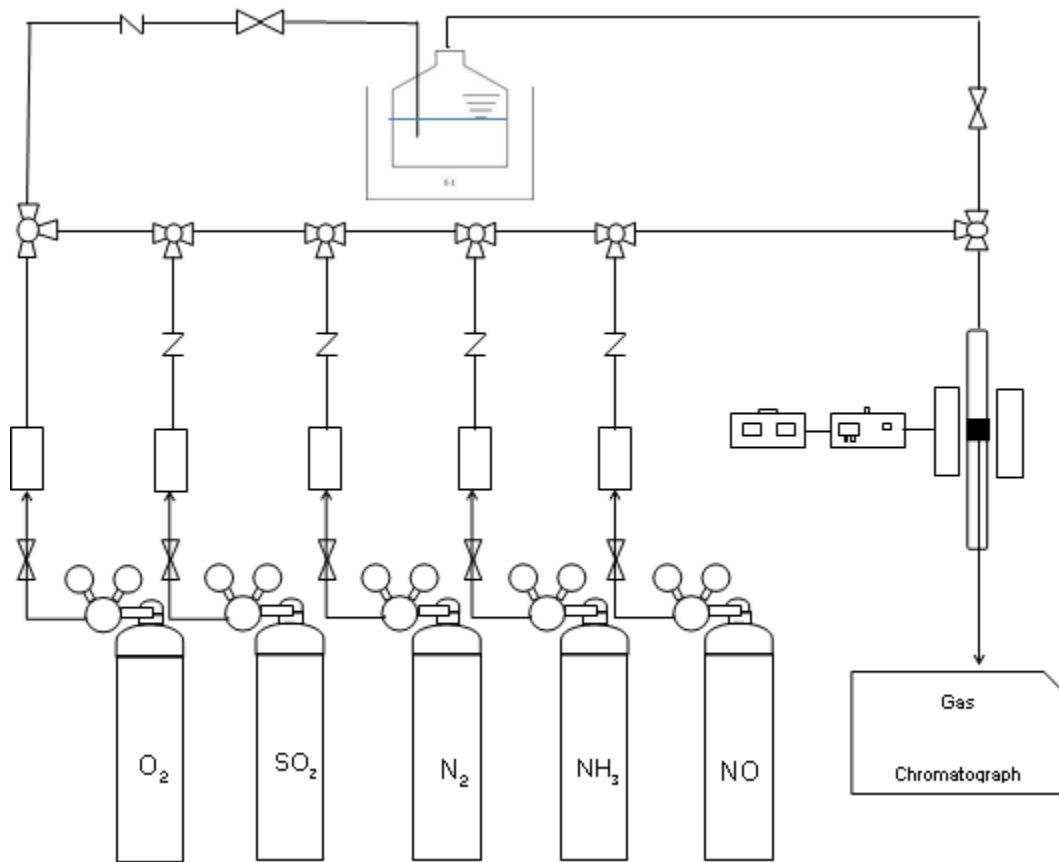
	แก๊สที่ตรวจวัด		
	NO	N ₂ O	SO ₂
ตัวตรวจวัด (Detector)	ECD	ECD	FPD
อุณหภูมิตัวตรวจวัด	200°C	200°C	185°C
คอลัมน์ (Column)	Hyasep-DB	Hyasep-DB	Rt-XL sulfur
อุณหภูมิคอลัมน์	40°C	150°C	180°C
เส้นผ่าศูนย์กลางวงในคอลัมน์	0.1	0.1	1
เส้นผ่าศูนย์กลางวงนอกคอลัมน์	2	2	2
แก๊สตัวพา (Carrier gas)	ไนโตรเจน	ไนโตรเจน	ฮีเลียม
อัตราการไหลของแก๊สตัวพา	240 kPa	240 kPa	15 ml/min

3.3.2 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชัน

การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชันเป็นการศึกษาการเกิดขึ้นของไนตริกออกไซด์และไนตรัสออกไซด์จากปฏิกิริยาของแอมโมเนียและออกซิเจน การทดสอบทำดังนี้ บรรจุตัวเร่งปฏิกิริยา 0.1 g ในเครื่องปฏิกรณ์แบบเบดนิ่ง(fixed bed reactor) เส้นผ่าศูนย์กลาง 3/8 นิ้ว ทำจากวัสดุเหล็กกล้าไร้สนิม (stainless) ให้แก๊สตั้งต้นไหลผ่านตัวเร่งปฏิกิริยาเท่ากับ 200 ml/min ประกอบด้วยแก๊สแอมโมเนีย (NH₃) ออกซิเจน (O₂) ซัลเฟอร์ไดออกไซด์ (SO₂) ไอน้ำ (H₂O) และไนโตรเจน (N₂) ให้ความร้อนกับระบบด้วยเตาไฟฟ้า โดยอุณหภูมิที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาตั้งแต่ 200 ถึง 450°C และวัดความเข้มข้นของไนตริกออกไซด์ (NO) และไนตรัสออกไซด์ (N₂O) ที่ออกจากเครื่องปฏิกรณ์ด้วยเครื่องแก๊สโครมาโตกราฟ (Gas chromatograph) Shimadzu GC-2014

3.3.3 การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาซัลเฟอร์ไดออกไซด์ออกซิเดชัน

การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาซัลเฟอร์ไดออกไซด์ออกซิเดชันเป็นการศึกษาการเกิดขึ้นซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ การทดสอบทำดังนี้ บรรจุตัวเร่งปฏิกิริยา 0.1 g ในเครื่องปฏิกรณ์แบบเบดนิ่ง (fixed bed reactor) เส้นผ่าศูนย์กลาง 3/8 นิ้ว ทำจากวัสดุเหล็กกล้าไร้สนิม (stainless) ให้แก๊สตั้งต้นไหลผ่านตัวเร่งปฏิกิริยาเท่ากับ 200 ml/min ประกอบด้วยแก๊สไนตริกออกไซด์ (NO) แก๊สแอมโมเนีย (NH₃) ออกซิเจน (O₂) ซัลเฟอร์ไดออกไซด์ (SO₂) และไนโตรเจน (N₂) ให้ความร้อนกับระบบด้วยเตาไฟฟ้า โดยอุณหภูมิที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาตั้งแต่ 200 ถึง 450°C วัดความเข้มข้นของซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ที่ออกจากเครื่องปฏิกรณ์ด้วยเครื่องแก๊สโครมาโตกราฟ (Gas chromatograph) Shimadzu GC-2014



รูปที่ 3. 1 ระบบของการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา

บทที่ 4

ผลการทดลองและวิเคราะห์ผลการทดลอง

ในบทนี้จะกล่าวถึงผลการทดลองและวิเคราะห์ผลการทดลองคุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา และการทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

4.1 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา

การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยาประกอบด้วย การหาปริมาณโลหะที่ใช้เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเครื่อง Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP-OES) หาพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิคการดูดซับทางกายภาพด้วยแก๊สไนโตรเจน (N_2 physisorption) หาความเป็นกรด (acid sites) บนตัวเร่งปฏิกิริยาด้วย NH_3 Temperature Programmed Desorption (NH_3 -TPD) หารูปแบบการเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ (XRD pattern) ของโลหะออกไซด์ และหารูปแบบการจัดเรียงโครงสร้างผลึกของตัวรองรับ TiO_2 ด้วยเครื่องเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ X-ray diffraction (XRD) ตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด ซึ่งผลการทดลองเป็นดังนี้

4.1.1 การวิเคราะห์หาปริมาณโลหะบนตัวเร่งปฏิกิริยาด้วย Inductively Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP- OES)

ปริมาณโลหะออกไซด์ทุกตัวคิดจากจำนวนโมลของไอออนบวกของโลหะเท่ากับจำนวนโมลของไอออนบวกของโลหะวาเนเดียมที่คิดเป็น V_2O_5 3 wt% โดยคิดเป็น MoO_3 4.75 wt% Fe_2O_3 2.63 wt% CuO 2.62 wt% NiO 2.46 wt% และ WO_3 6.59 wt% ซึ่งผลการวิเคราะห์หาปริมาณโลหะบนตัวเร่งปฏิกิริยาด้วย ICP- OES สามารถคำนวณหาปริมาณโลหะออกไซด์ได้ดังตารางที่ 4.1

ตารางที่ 4. 1 เปอร์เซ็นต์ของโลหะออกไซด์บนตัวเร่งปฏิกิริยา

ตัวเร่งปฏิกิริยา	MoO ₃ (%)	Fe ₂ O ₃ (%)	CuO (%)	NiO (%)	WO ₃ (%)
MoO ₃ /TiO ₂	5.17	-	-	-	-
Fe ₂ O ₃ /TiO ₂	-	2.50	-	-	-
CuO/TiO ₂	-	-	4.33	-	-
NiO/TiO ₂	-	-	-	2.43	-
Mo-W/TiO ₂	5.68	-	-	-	6.88
Mo-Ni/TiO ₂	5.78	-	-	2.79	-

4.1.2 การหาพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิคการดูดซับทางกายภาพด้วยแก๊สไนโตรเจน (N₂ physisorption)

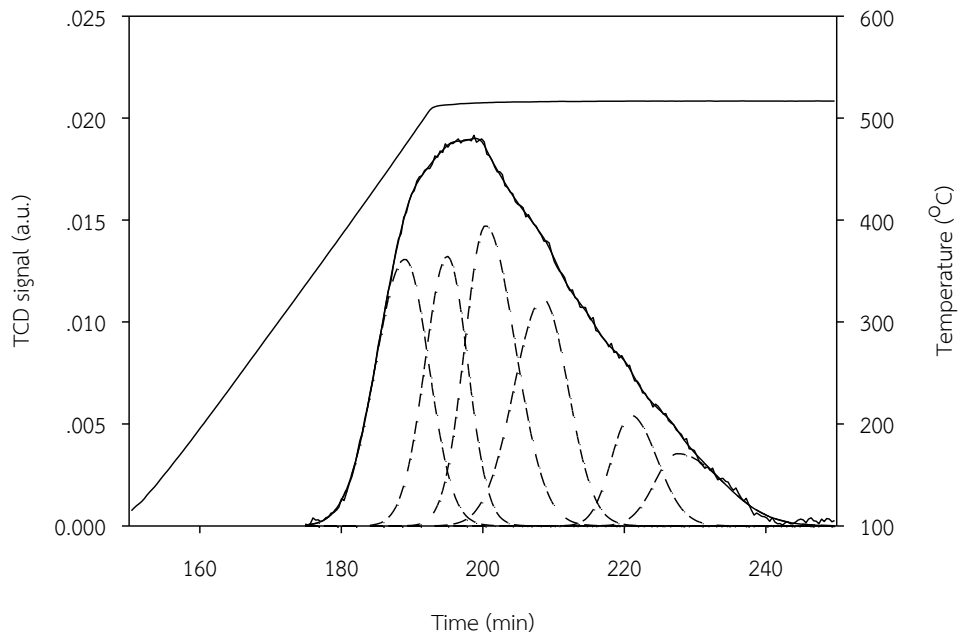
พื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาและตัวรองรับไทเทเนียมไดออกไซด์แสดงในตารางที่ 4.2 จากตารางพบว่า TiO₂ มีพื้นที่ผิว 82.44 m²/g และเมื่อเติมโลหะออกไซด์ลงบนตัวรองรับทำให้พื้นที่ผิวลดลงอยู่ระหว่าง 50 ถึง 70 m²/g

ตารางที่ 4. 2 พื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาและตัวรองรับ TiO₂

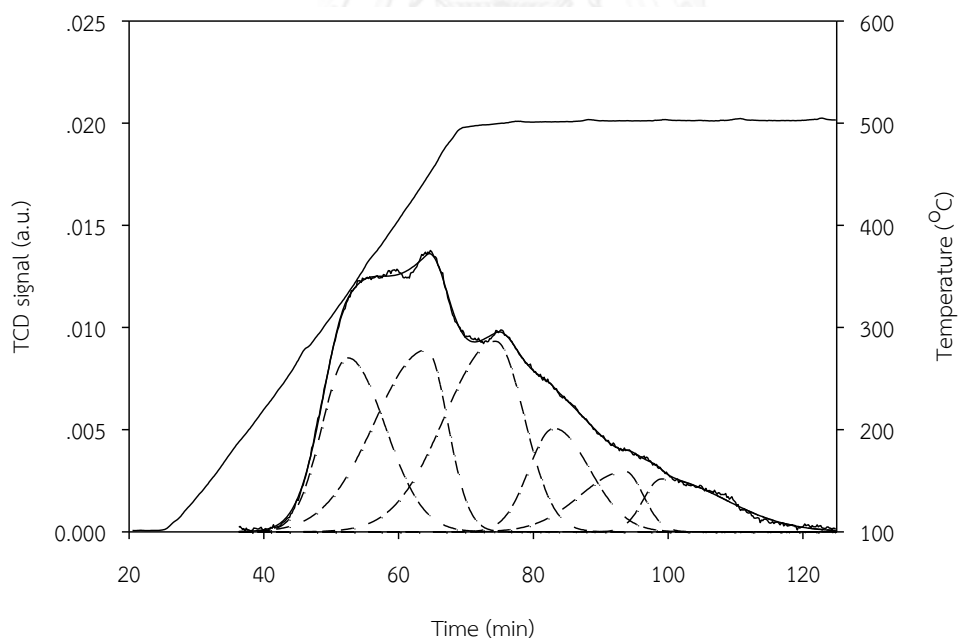
ตัวเร่งปฏิกิริยา	พื้นที่ผิว
TiO ₂	82.44
MoO ₃	66.0
CuO	66.0
Fe ₂ O ₃	60.1
NiO	58.6
MoO ₃ -NiO	65.6
MoO ₃ -WO ₃	61.5

4.1.3 การหาความเป็นกรด (acid sites) บนตัวเร่งปฏิกิริยา

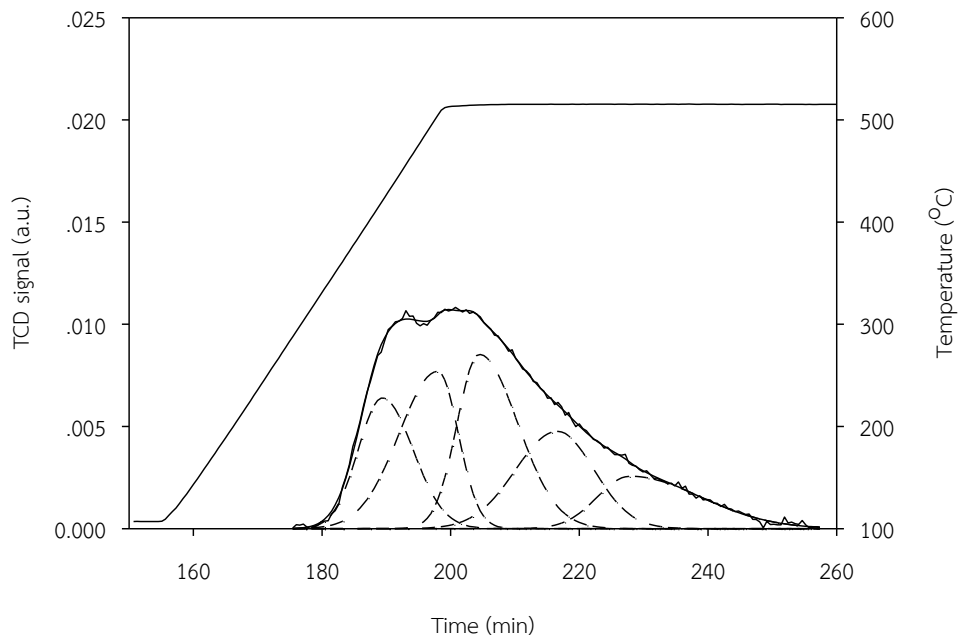
การหาความเป็นกรดของตัวรองรับ TiO_2 และตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3/\text{TiO}_2$ $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ CuO/TiO_2 NiO/TiO_2 $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$ $\text{MoO}_3\text{-NiO}/\text{TiO}_2$ ด้วยเทคนิค NH_3 Temperature Programmed Desorption ($\text{NH}_3\text{-TPD}$) แสดงในรูปที่ 4.1 ถึง 4.7 ตามลำดับ ซึ่งเทคนิค $\text{NH}_3\text{-TPD}$ สามารถวิเคราะห์ความแรงของตำแหน่งที่เป็นกรดของตัวเร่งปฏิกิริยาได้ ในกรณีของตัวรองรับ TiO_2 เริ่มปรากฏสัญญาณการคายตัวของแอมโมเนียที่อุณหภูมิประมาณ 340°C ดังนั้น TiO_2 จึงมีความเป็นกรดแก่สูง ในส่วนของตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3/\text{TiO}_2$ เริ่มปรากฏการคายแอมโมเนียที่อุณหภูมิ 220°C และ 442°C ตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ เริ่มมีการคายแอมโมเนียที่อุณหภูมิ 310°C และ 490°C ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO_2 พบว่ามีพีคเกิดขึ้น 2 พีค อย่างชัดเจน พีคลูกแรกเริ่มคายแอมโมเนียที่อุณหภูมิ 245°C และพีคลูกที่สองเริ่มคายแอมโมเนียที่อุณหภูมิประมาณ 360°C เช่นเดียวกับตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$ ปรากฏการคายแอมโมเนียที่อุณหภูมิ 300°C และ 500°C จากที่กล่าวมาแสดงว่าเมื่อเติมโลหะออกไซด์ของ Mo Cu Fe W ทำให้ตัวเร่งปฏิกิริยามีทั้งความเป็นกรดอ่อนและกรดแก่ ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO_2 และ $\text{MoO}_3\text{-NiO}/\text{TiO}_2$ ทำให้ตัวเร่งปฏิกิริยามีความเป็นกรดอ่อนเพียงอย่างเดียว โดยเริ่มมีการคายแอมโมเนียที่อุณหภูมิประมาณ 280°C และ 260°C ตามลำดับ



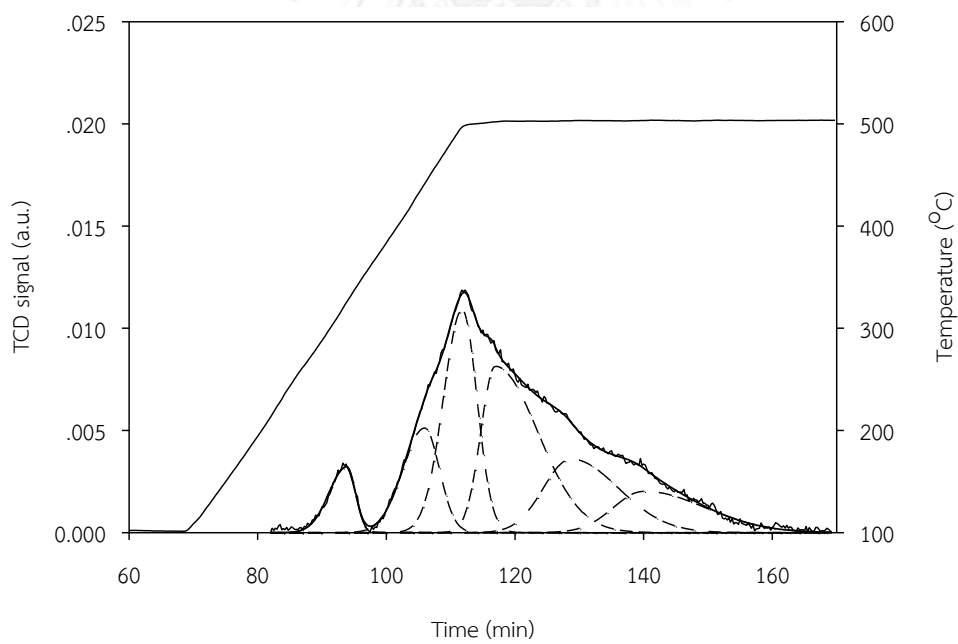
รูปที่ 4. 1 NH₃-TPD pattern ของตัวรองรับ TiO₂ (พื้นที่ผิว 82.44 m²/g)



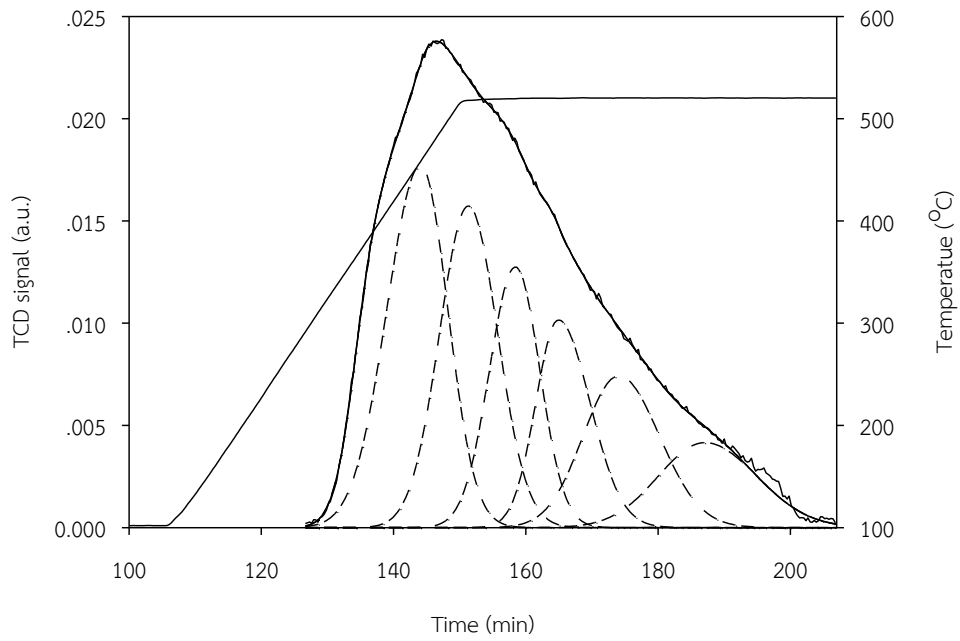
รูปที่ 4. 2 NH₃-TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ (พื้นที่ผิว 66.0 m²/g)



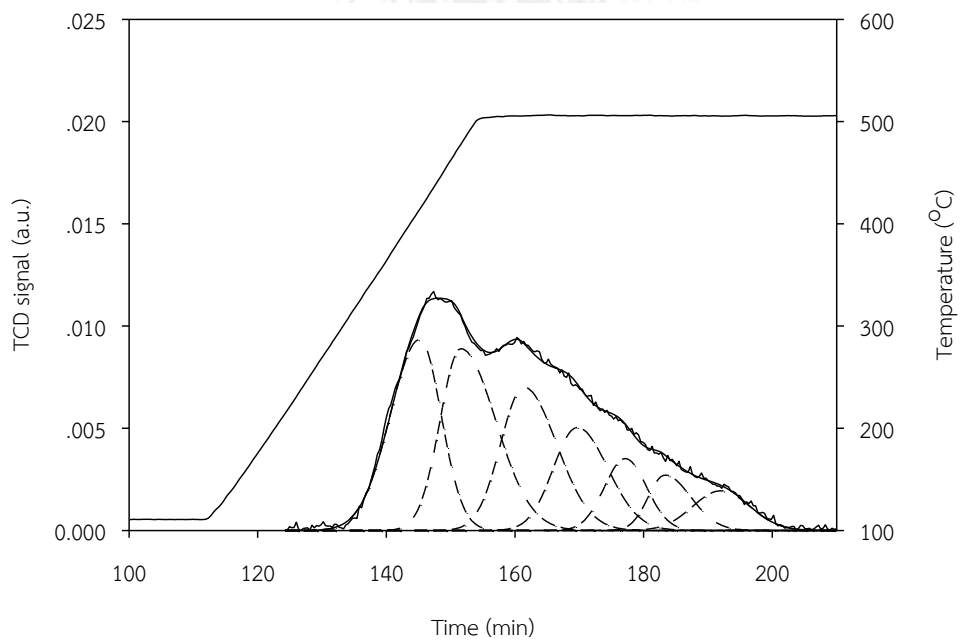
รูปที่ 4. 3 NH₃-TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา Fe₂O₃/TiO₂ (พื้นที่ผิว 60.1 m²/g)



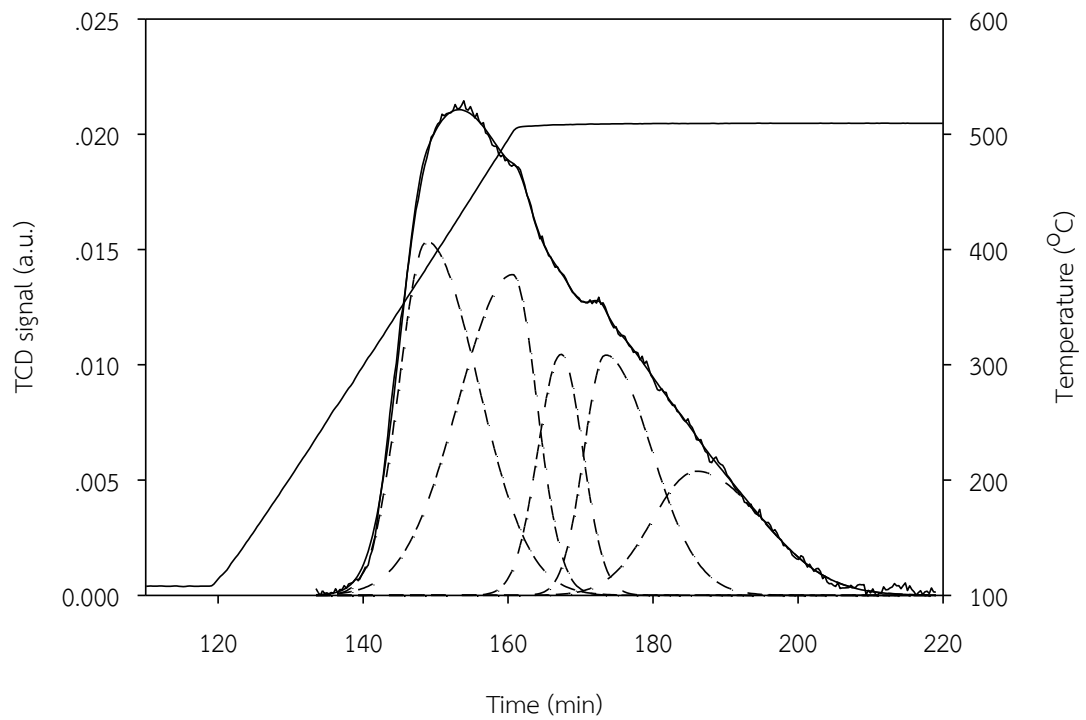
รูปที่ 4. 4 NH₃-TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO₂ (พื้นที่ผิว 66.0 m²/g)



รูปที่ 4.5 NH₃-TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO₂ (พื้นที่ผิว 58.6 m²/g)



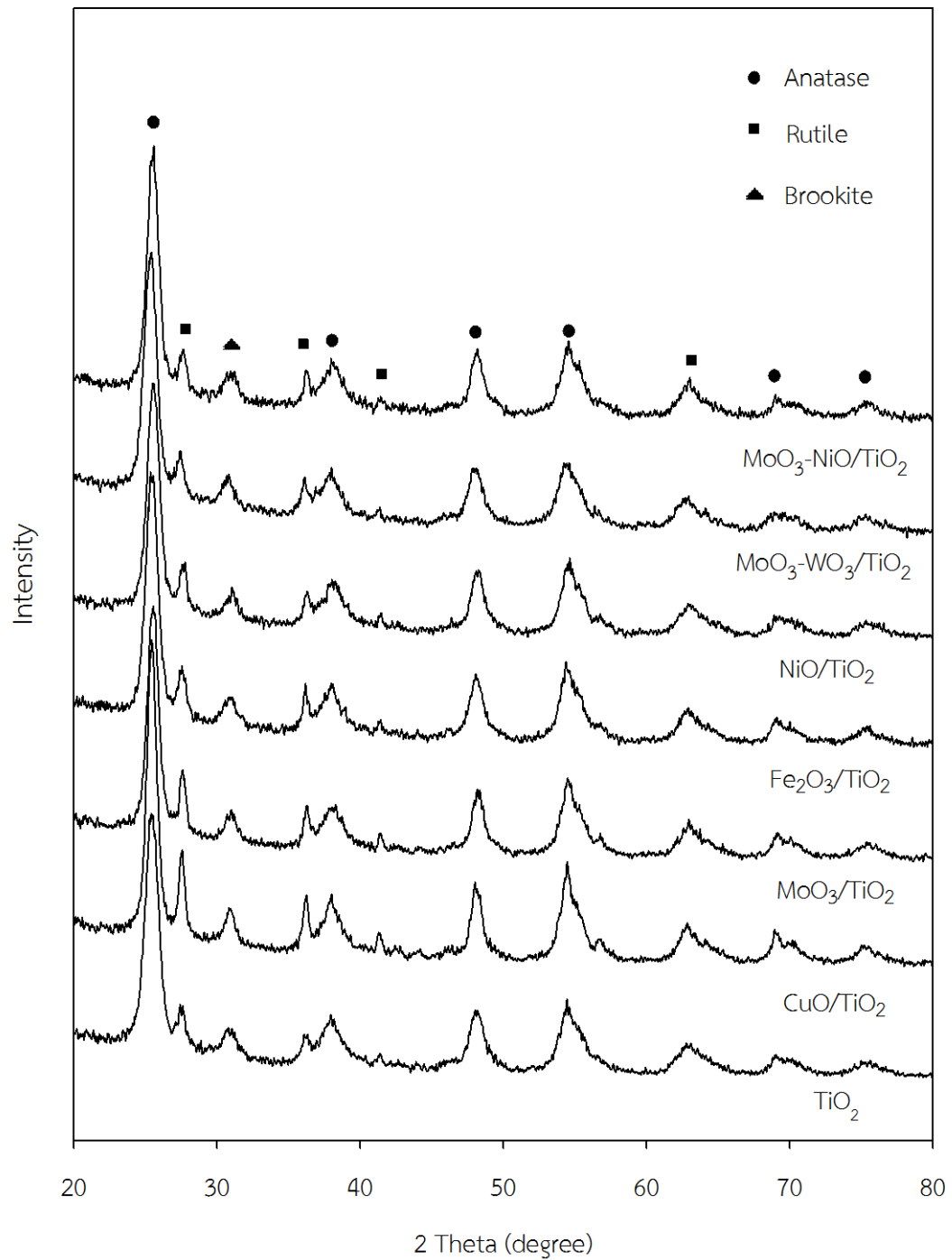
รูปที่ 4.6 NH₃-TPD pattern ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃-WO₃/TiO₂ (พื้นที่ผิว 61.5 m²/g)



รูปที่ 4. 7 NH_3 -TPD ของตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-NiO/TiO}_2$ (พื้นที่ผิว $65.6 \text{ m}^2/\text{g}$)

4.1.4 การวิเคราะห์ด้วยเครื่องเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ X-ray diffraction (XRD)

รูปแบบการจัดเรียงโครงร่างผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยาแสดงในรูปที่ 4.8 โดยตัวเร่งปฏิกิริยาทุกตัวแสดงรูปแบบการจัดเรียงตัวของ TiO_2 โดยแสดงเฟสอนาเทสและพบรูไทล์กับรูโคดีเล็กน้อย โดยในส่วนของตัวรองรับ TiO_2 ตำแหน่งของรูไทล์ที่ 27° และ 36° จะต่ำกว่าตัวเร่งปฏิกิริยาตัวอื่น เนื่องจากตัวเร่งปฏิกิริยาตัวอื่นถูกเผาที่อุณหภูมิ 500°C ทำให้ปรากฏตำแหน่งของรูไทล์เด่นชัด และการที่ไม่พบตำแหน่งของโลหะออกไซด์เป็นเพราะเปอร์เซ็นต์ของโลหะออกไซด์บนตัวรองรับน้อยเกินไปที่ XRD จะตรวจพบ และจากการวิจัยก่อนหน้านี้พบว่า MoO_3 น้อยกว่า 15 wt% จะไม่พบตำแหน่งของโมลิบดีนัมออกไซด์ [11]



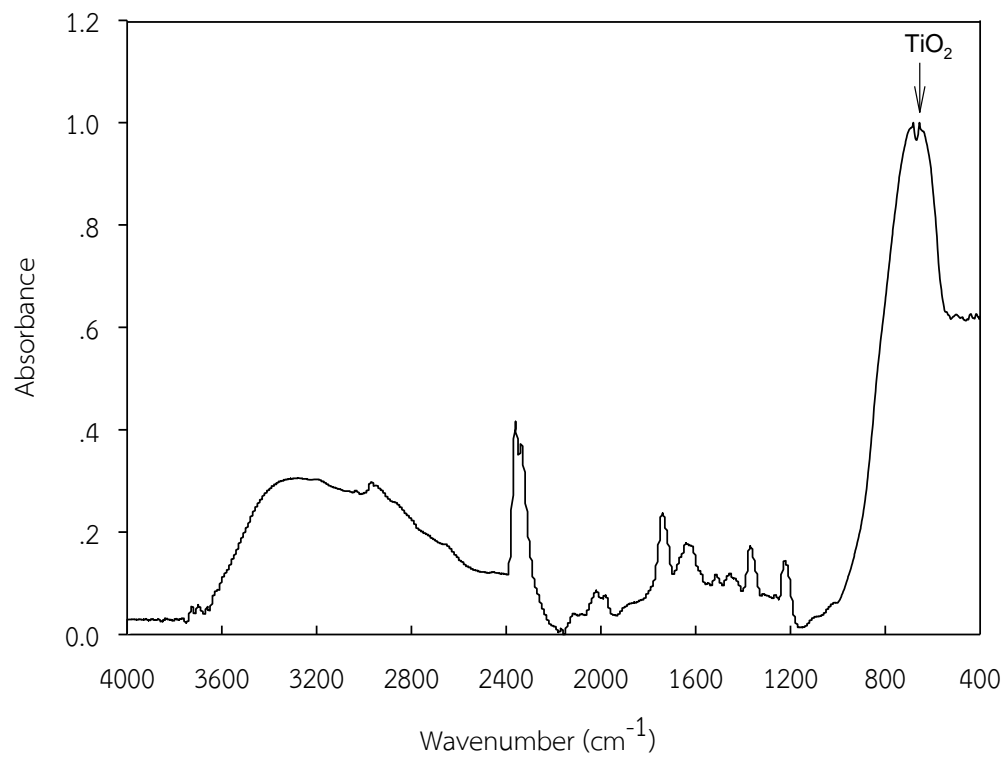
รูปที่ 4. 8 การหักเหรังสีเอกซ์ของตัวรองรับ TiO₂ และตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ Fe₂O₃/TiO₂ CuO/TiO₂ NiO/TiO₂ MoO₃-WO₃/TiO₂ และ MoO₃-NiO/TiO₂

4.1.5 การวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด

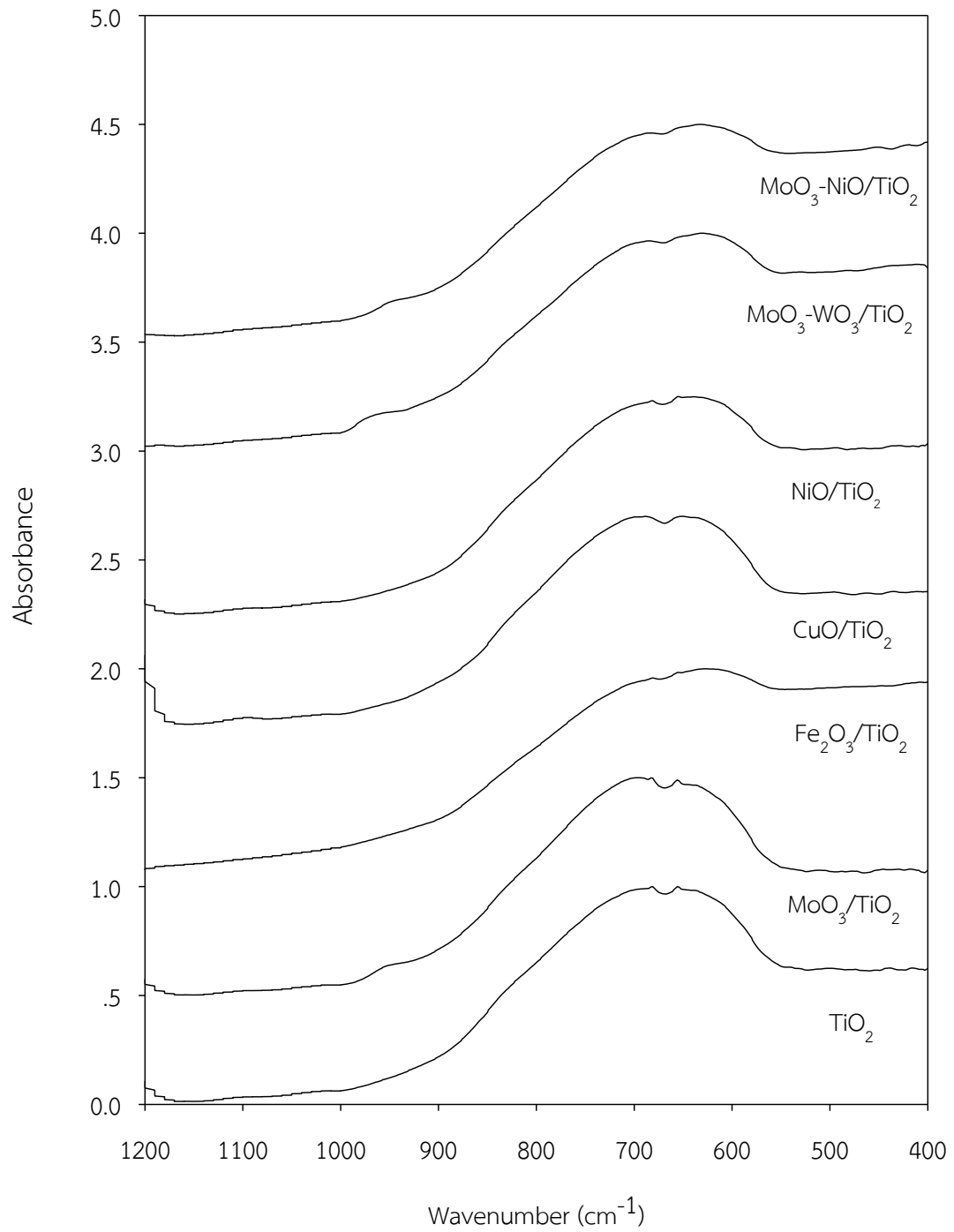
จากผลการวิเคราะห์การดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของตัวรองรับ TiO_2 แสดงดังรูปที่ 4.9 TiO_2 มีการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดอยู่ในช่วงคลื่น $700\text{-}660\text{ cm}^{-1}$ พบการดูดกลืนคลื่นที่ตำแหน่ง 3280 และ 1660 cm^{-1} นอกจากนี้ยังพบการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดในช่วงความยาวคลื่น $1270\text{-}1060\text{ cm}^{-1}$ ซึ่งเป็นของ C-O การที่ตัวรองรับ TiO_2 มีหมู่ฟังก์ชัน C-O เนื่องมาจากสารตั้งต้นที่ใช้ในการเตรียมได้แก่ Titanium (IV) isopropoxide ซึ่งมี C-O อยู่ในโครงสร้างและการเผาที่อุณหภูมิ 500°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ไม่เพียงพอทำให้คาร์บอนออกไปได้หมด พบตำแหน่งของหมู่ฟังก์ชัน OH ที่ความยาวคลื่น 3200 cm^{-1} ซึ่งน่าจะมาจาก Ti-OH และ H_2O ในขั้นตอนการเตรียม TiO_2

จากผลการวิเคราะห์การดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของตัวเร่งปฏิกิริยาดังแสดงในรูปที่ 4.10 พบว่าตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3/\text{TiO}_2$ $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$ และ $\text{MoO}_3\text{-NiO}/\text{TiO}_2$ พบการดูดกลืนที่ความยาวคลื่น 950 cm^{-1} ซึ่งแสดง M=O ซึ่งความยาวคลื่นตำแหน่งนี้จะไม่ปรากฏใน IR spectrum ของ MoO_3 แต่จะพบเมื่อ MoO_3 กระจายตัวอยู่บนตัวรองรับ TiO_2 [11]

เพื่อยืนยันว่ามีโลหะออกไซด์ของ Cu Fe Ni บนตัวรองรับ TiO_2 อาจใช้เทคนิครามานสเปกโตรสโกปี (Raman spectroscopy) เพื่อตรวจสอบการสั่นที่เทคนิคการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดไม่พบ นอกจากนี้สามารถหาลักษณะโครงสร้างของ TiO_2 ที่มีโลหะออกไซด์ปกคลุมและเปอเซนต์ของโลหะออกไซด์ด้วยเครื่องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดร่วมกับ Energy-dispersive X-ray spectroscopy สำหรับการหาเปอร์เซ็นต์ของโลหะออกไซด์ยังสามารถใช้เทคนิค X-ray fluorescence spectrometry (XRF)



รูปที่ 4. 9 FT-IR สเปกตรัมของตัวรองรับ TiO₂



รูปที่ 4. 10 FT-IR สเปกตรัมของตัวรองรับ TiO₂ และตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ Fe₂O₃/TiO₂ CuO/TiO₂ NiO/TiO₂ MoO₃-WO₃/TiO₂ Mo-Ni/TiO₂

4.2 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาแบ่งออกเป็น 3 ปฏิกิริยา คือ การทดสอบในระหว่างปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของไนตริกออกไซด์ด้วยแอมโมเนีย (The selective catalytic reduction (SCR) of NO by NH₃) การทดสอบในระหว่างปฏิกิริยาการออกซิไดซ์แอมโมเนีย (NH₃ oxidation) โดยทั้ง 2 ปฏิกิริยาจะตรวจวัดการกำจัดไนตริกออกไซด์ (NO) และการเกิดไนตรัสออกไซด์ (N₂O) และการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาการออกซิไดซ์ซัลเฟอร์ไดออกไซด์ (SO₂ oxidation) ซึ่งมีผลการทดลองดังนี้

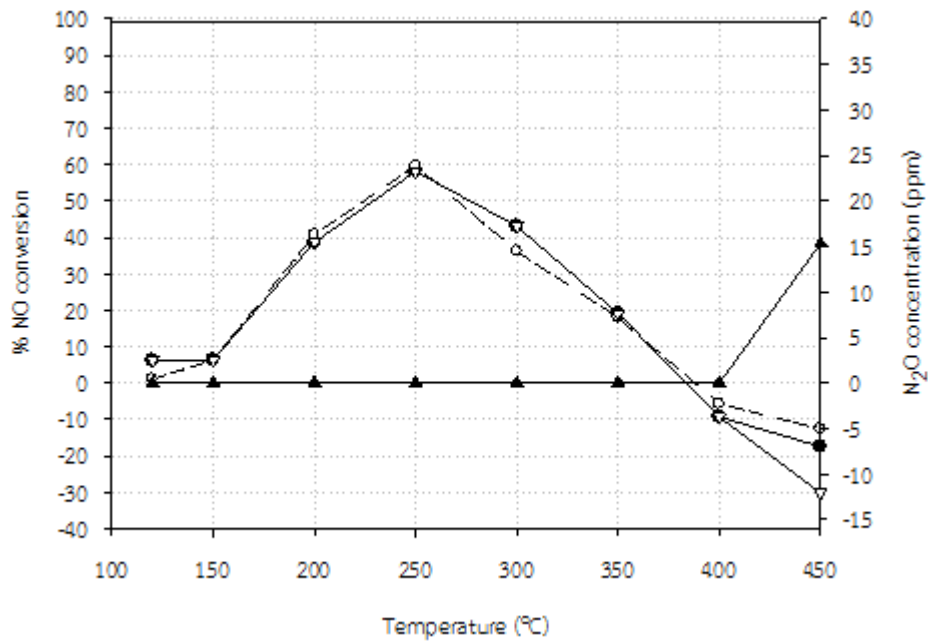
4.2.1 การทดสอบในระหว่างปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยา NH₃ oxidation

การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยา SCR ทำในเครื่องปฏิกรณ์แบบเบดนิ่ง (fixed bed reactor) บรรจุตัวเร่งปฏิกิริยา 0.1 g แก๊สตั้งต้นประกอบด้วยแก๊สไนตริกออกไซด์ (NO) แอมโมเนีย (NH₃) ออกซิเจน (O₂) ซัลเฟอร์ไดออกไซด์ (SO₂) ไอน้ำ (H₂O) และไนโตรเจน (N₂) โดยอุณหภูมิที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาตั้งแต่ 120 ถึง 450°C และวัดความเข้มข้นของไนตริกออกไซด์ (NO) และไนโตรเจนไดออกไซด์ (N₂O) ที่ออกจากเครื่องปฏิกรณ์ด้วยเครื่องแก๊สโครมาโตกราฟ (Gas chromatograph) Shimadzu GC-2014 ซึ่งทำทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยา SCR จำนวน 2 ครั้ง ครั้งที่ 1 (ผล run 1) ได้จากการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาตั้งแต่อุณหภูมิ 120 ถึง 450°C จากนั้นลดอุณหภูมิลงมาที่อุณหภูมิห้อง แล้วทำการทดลองซ้ำครั้งที่ 2 (ผล run 2) โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาตัวเดิมเพื่อทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาและทดสอบว่าตัวเร่งปฏิกิริยามีความสามารถในการทำซ้ำหรือไม่ ถ้าผลการทดลองครั้งที่ 2 (run 2) ไม่ใกล้เคียงกับผลของครั้งที่ 1 (run 1) จะปรับสถานะในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาใหม่เพื่อให้สามารถทำการทดลองซ้ำได้

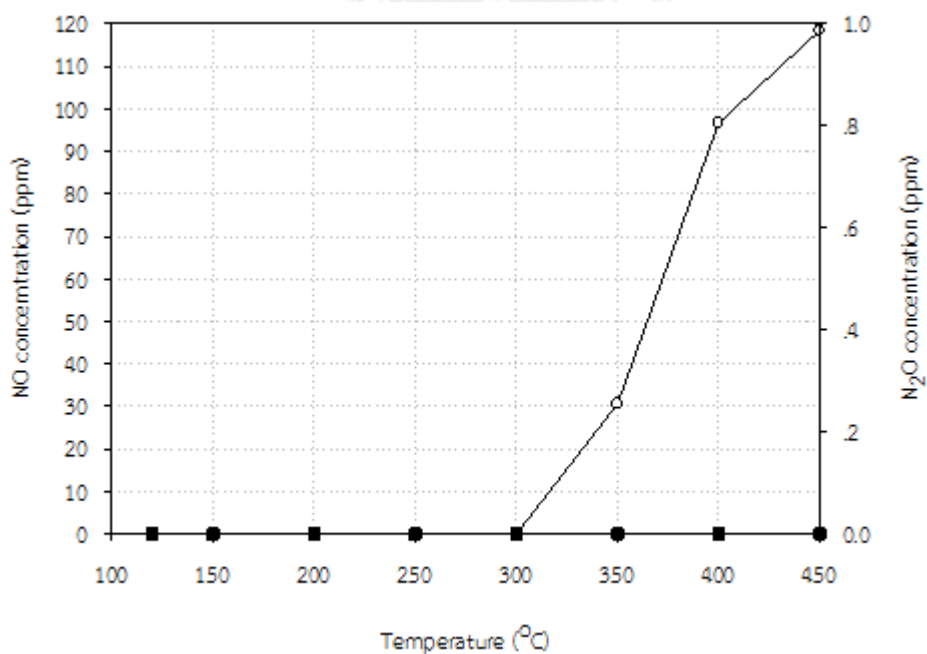
จากรูปที่ 4.11 ปฏิกิริยา SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ เพื่อตรวจวัดการลดลงของ NO และการเกิดขึ้นของ N₂O พบว่า ในช่วงอุณหภูมิต่ำที่ 120°C ถึง 150°C สามารถกำจัด NO ได้น้อยกว่า 10 % เมื่ออุณหภูมิเพิ่มขึ้นพบว่าสามารถกำจัด NO ได้มากขึ้น โดยกำจัด NO ได้มากที่สุด 58.1 % ที่อุณหภูมิ 250°C และที่อุณหภูมิระหว่าง 300°C ถึง 450°C พบว่าสามารถกำจัด NO ได้น้อยลง โดยที่อุณหภูมิ 400°C กับ 450°C พบว่า % NO conversion ตีตก แสดงว่าในระบบมี NO

มากกว่าความเข้มข้นของ NO ตั้งต้น ซึ่งการที่การกำจัด NO มีค่าน้อยลงจนติดลบนั้นเป็นเพราะเกิดปฏิกิริยา NH₃ oxidation ดังรูปที่ 4.12 ซึ่งจากผล NH₃ oxidation ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ เริ่มมี NO เกิดขึ้นที่อุณหภูมิ 350°C และเกิดเพิ่มสูงขึ้นเรื่อยๆ ซึ่งผลจากการทดสอบปฏิกิริยาด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาเดิมซ้ำจะเห็นว่าได้ค่าที่ใกล้เคียงกัน แสดงว่าตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ มีเสถียรภาพ เมื่อดูการเกิด N₂O ของปฏิกิริยา SCR พบว่าเกิด N₂O 15.3 ppm ที่อุณหภูมิ 450°C จากผลของ N₂O และผล % NO conversion ครั้งที่ 1 สามารถนำมาคิด % NO_x conversion จากสมการ 4.1

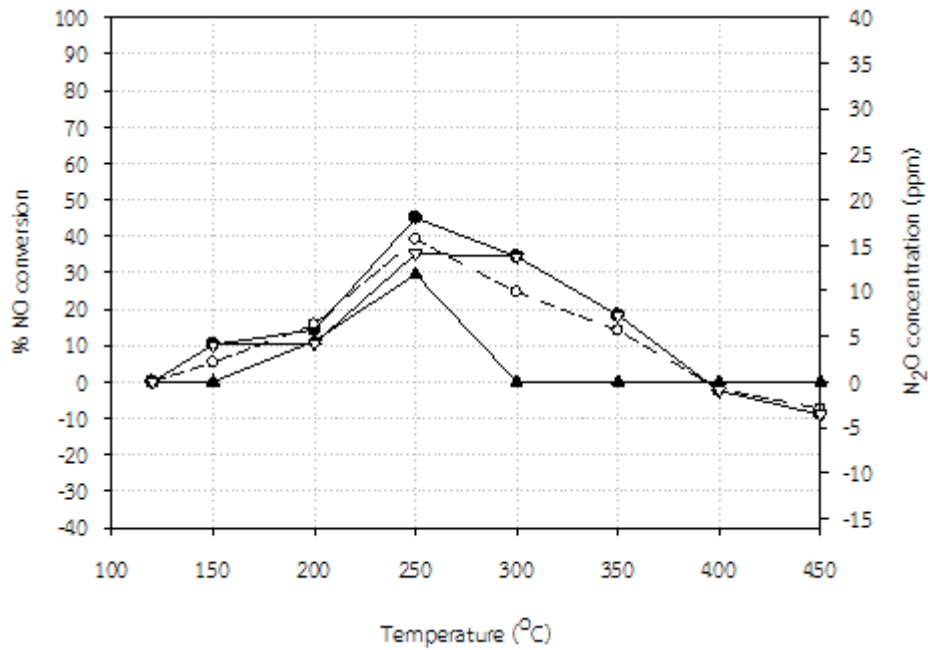
$$\% \text{NO}_x \text{ conversion} = [(\text{NO} \text{ ขาเข้า} - (\text{NO} \text{ ขาออก} + \text{N}_2\text{O} \text{ ที่เกิดขึ้น})) / \text{NO} \text{ ขาเข้า}] \times 100 \quad 4.1$$



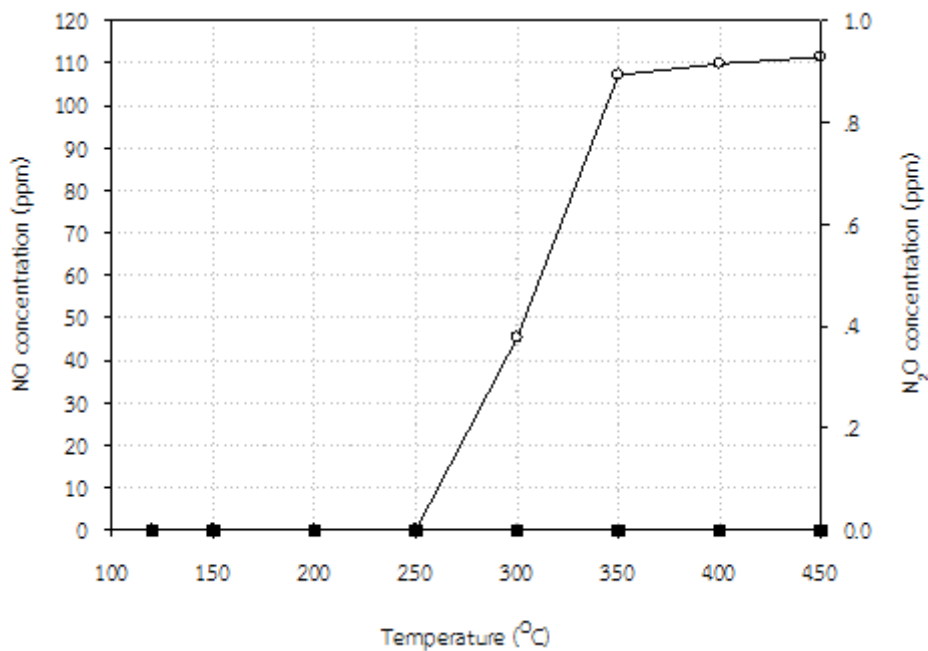
รูปที่ 4. 11 ปฏิกริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3/\text{TiO}_2$ (ปริมาณ MoO_3 5.17 wt%) —●— run 1 -○- run 2 -▽- NO_x conversion —▲— N_2O ppm



รูปที่ 4. 12 ปฏิกริยาของ NH_3 oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3/\text{TiO}_2$ (ปริมาณ MoO_3 5.17 wt%) —○— NO ppm —■— N_2O ppm



รูปที่ 4.13 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO₂ (ปริมาณ CuO 4.33 wt%) —●— run 1
 -○- run 2 —▽— NO_x conversion —▲— N₂O ppm



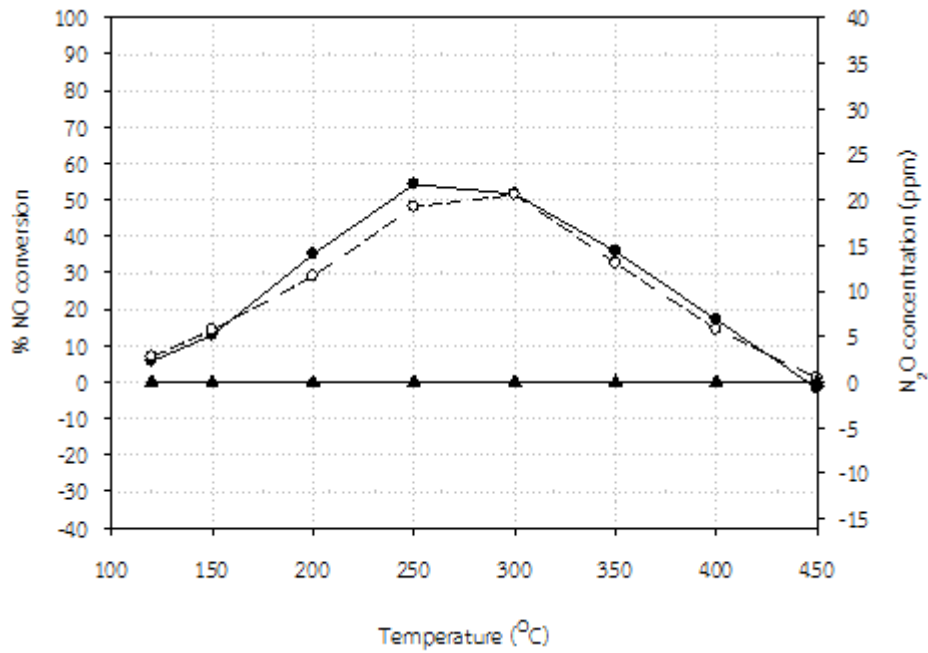
รูปที่ 4.14 ปฏิกิริยาของ NH₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO₂ (ปริมาณ CuO 4.33 wt%)
 —○— NO ppm —■— N₂O ppm

ผลของตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO₂ ในปฏิกิริยา SCR ในช่วงอุณหภูมิ 120°C ถึง 250°C สามารถกำจัด NO เพิ่มขึ้นเรื่อยๆ แต่เมื่ออุณหภูมิ 300°C เป็นต้นไปจะกำจัด NO ได้น้อยลงเรื่อยๆ เช่นกัน ซึ่งที่อุณหภูมิ 250°C สามารถกำจัด NO ได้มากที่สุด 45 % แต่เมื่อดูการเกิดของ N₂O พบว่าที่อุณหภูมิ 250°C เกิด N₂O เท่ากับ 11.8 ppm เมื่อนำมาคิดในสมการที่ 4.1 จะได้ผล % NO_x conversion ซึ่งจะเห็นว่าที่อุณหภูมิ 250°C กำจัด NO_x ได้เท่ากับที่อุณหภูมิ 300°C โดยผลของ N₂O พบว่าเกิด N₂O ที่อุณหภูมิ 200°C ถึง 250°C เท่านั้น แสดงว่าในระหว่างปฏิกิริยา SCR การกำจัด NO เป็น N₂ ด้วย NH₃ โดยใช้ออกซิเจนมากเกินไป ดังสมการที่ 4.2 และการเกิด N₂O ดังสมการที่ 4.3 เป็นปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นพร้อมกันที่อุณหภูมิ 200°C และ 250°C เนื่องจากที่อุณหภูมิดังกล่าวมีการกำจัด NO พร้อมกับการเกิดขึ้นของ N₂O

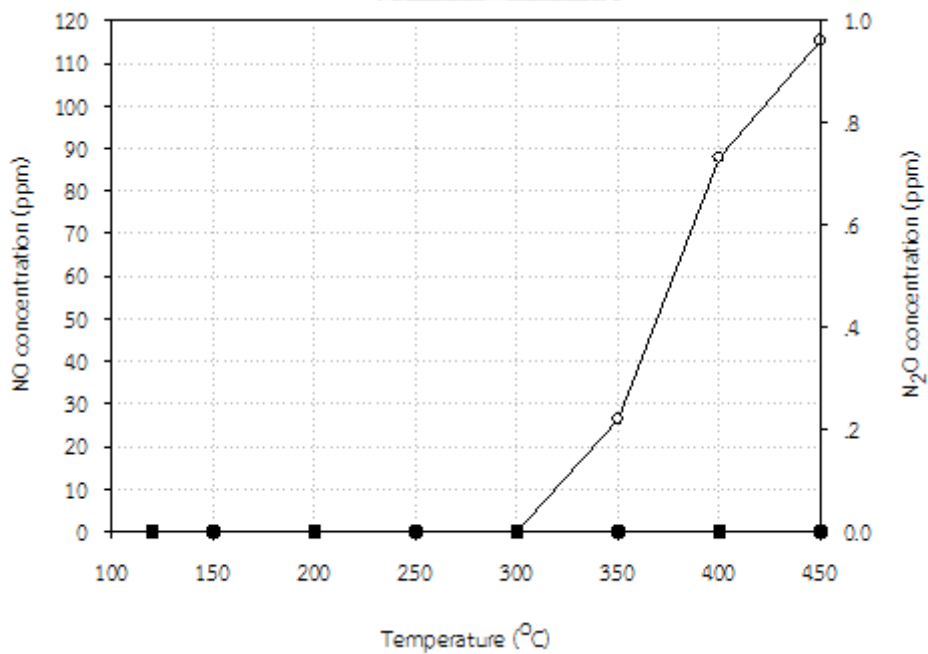


นอกจากนี้การที่ตั้งแต่อุณหภูมิ 300°C กำจัด NO ได้น้อยลง ทั้งนี้สอดคล้องกับผลของปฏิกิริยา NH₃ oxidation ที่อุณหภูมิตั้งแต่ 300°C เกิด NO ในระบบและเกิดเพิ่มขึ้นเรื่อยๆ

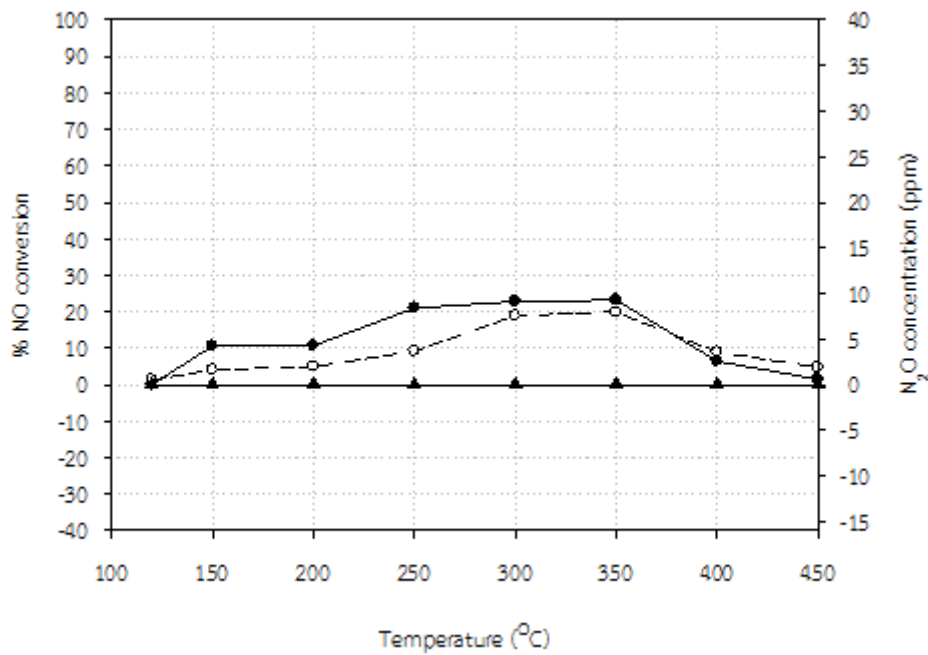
ในส่วนของตัวเร่งปฏิกิริยา Fe₂O₃/TiO₂ ดังรูปที่ 4.15 พบว่าในช่วงอุณหภูมิ 120°C ถึง 250°C กำจัด NO เพิ่มขึ้นเรื่อยๆ และที่อุณหภูมิ 250°C และ 300°C กำจัด NO ได้ใกล้เคียงกัน ซึ่งแตกต่างจากตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ และ CuO/TiO₂ ที่เมื่ออุณหภูมิ 300°C การกำจัด NO จะลดลงทันที ซึ่งสอดคล้องกับผลของ NH₃ oxidation ของ Fe₂O₃/TiO₂ ดังรูปที่ 4.16 ที่เริ่มเกิด NO ในระบบที่อุณหภูมิ 350°C นอกจากนี้ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ไม่พบการเกิด N₂O



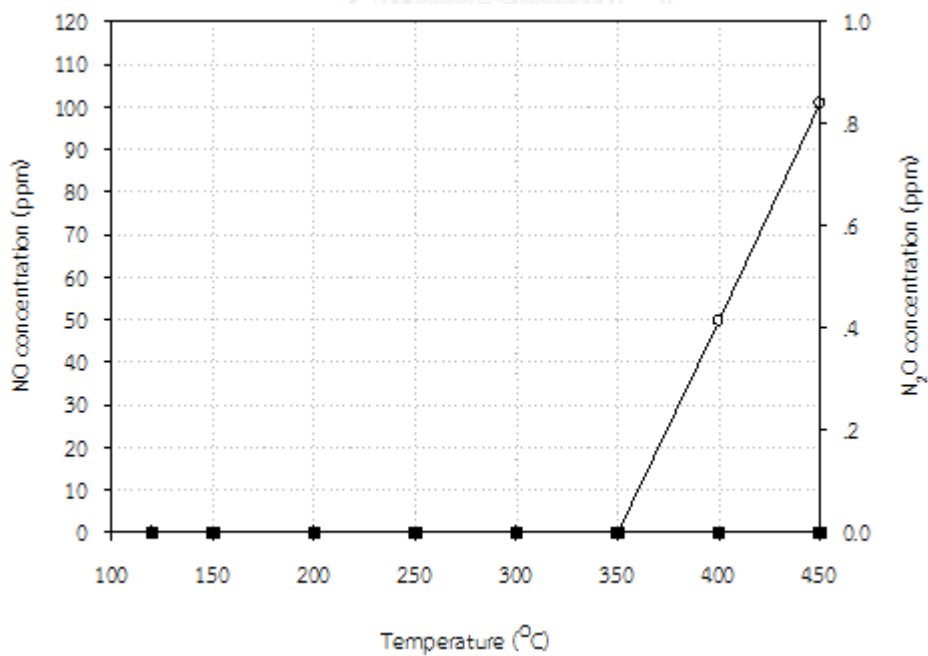
รูปที่ 4. 15 ปฏิกริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ (ปริมาณ Fe_2O_3 2.50 wt%) —●— run 1
 -○- run 2 —▲— N_2O ppm



รูปที่ 4. 16 ปฏิกริยาของ NH_3 oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ (ปริมาณ Fe_2O_3 2.50 wt%) —○— NO ppm —■— N_2O ppm



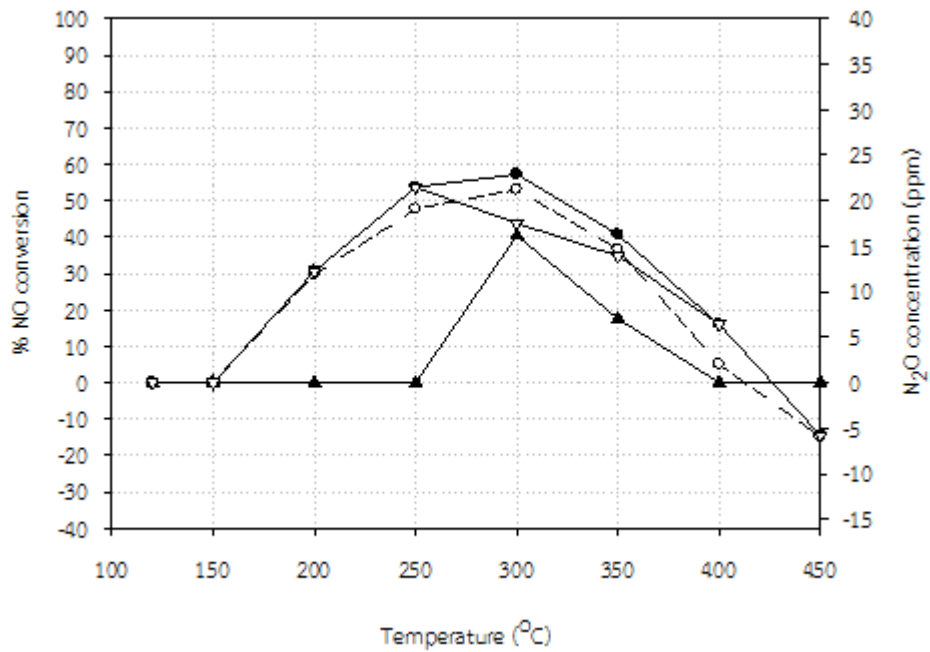
รูปที่ 4. 17 ปฏิกริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกริยา NiO/TiO₂ (ปริมาณ NiO 2.43 wt%) —●— run 1 —○— run 2 —▲— N₂O ppm



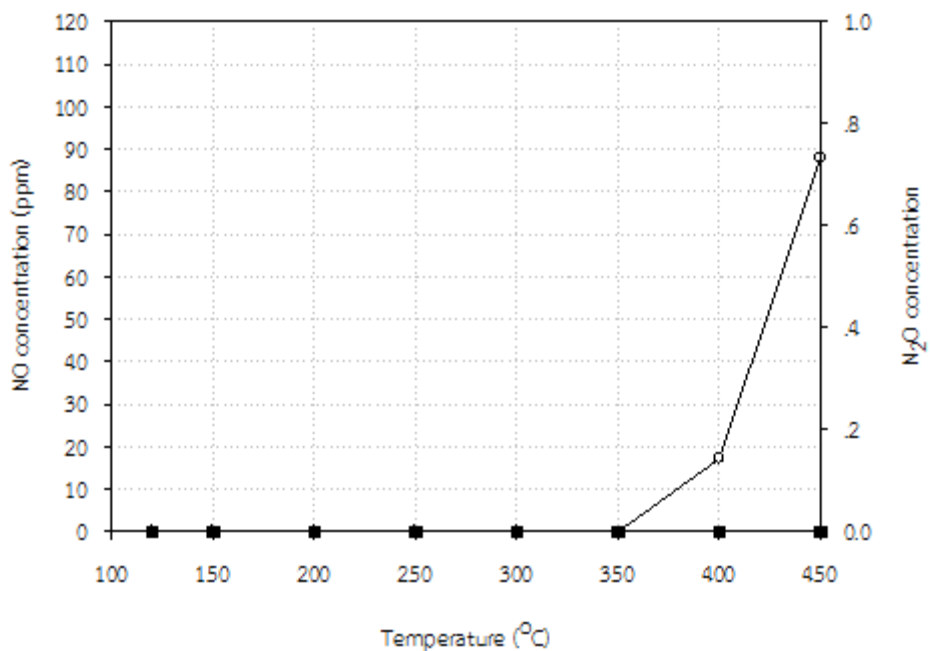
รูปที่ 4. 18 ปฏิกริยาของ NH₃ oxidation บนตัวเร่งปฏิกริยา NiO/TiO₂ (ปริมาณ NiO 2.43 wt%) —○— NO ppm —■— N₂O ppm

จากรูปที่ 4.17 แสดงผลการกำจัด NO ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO₂ พบว่ากำจัด NO ได้น้อยกว่าตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ CuO/TiO₂ Fe₂O₃/TiO₂ มาก โดยสามารถกำจัด NO ได้สูงสุด 22.8 % แต่พบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาค่อนข้างเสถียรกล่าวคือ สามารถกำจัด NO ได้คงที่ และกำจัด NO ได้น้อยลงที่อุณหภูมิ 400°C แสดงว่า NiO/TiO₂ สามารถกำจัด NO ได้ดีในช่วงอุณหภูมิที่กว้างกว่าตัวเร่งปฏิกิริยาตัวอื่น ซึ่งการที่กำจัด NO ได้น้อยลงที่อุณหภูมิ 400°C สาเหตุเป็นเพราะอุณหภูมิดังกล่าวเกิดปฏิกิริยา NH₃ oxidation ดังรูปที่ 4.18 ซึ่งแสดงว่าแม้ว่า NiO/TiO₂ จะกำจัด NO ในปฏิกิริยา SCR ได้น้อย แต่ก็มีข้อดีคือปฏิกิริยา NH₃ oxidation เกิดน้อยกว่าเมื่อเทียบกับตัวเร่งปฏิกิริยาตัวอื่นและเกิดที่อุณหภูมิสูง นอกจากนี้ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ไม่พบการเกิด N₂O

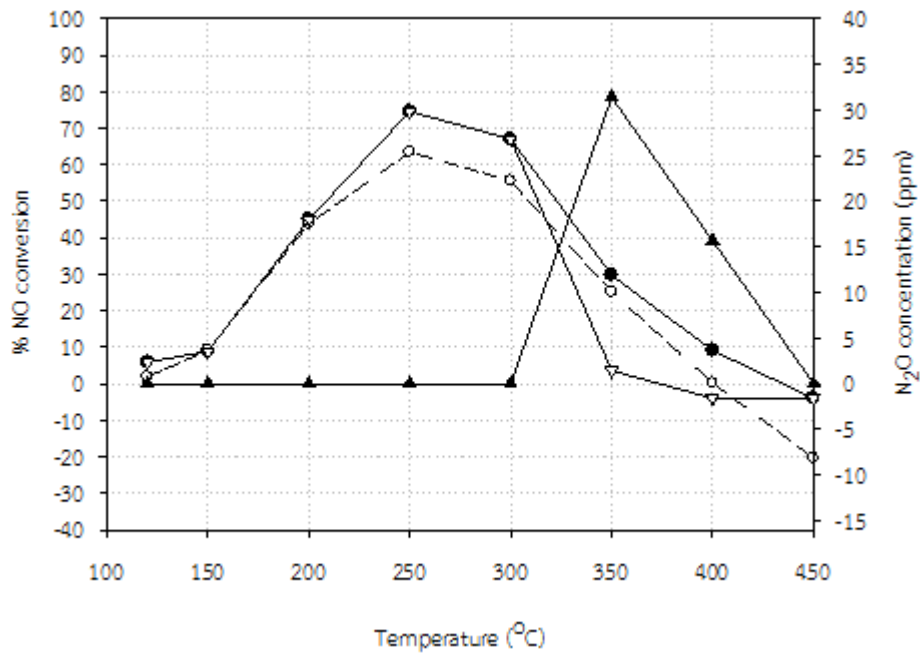
สืบเนื่องมาจากงานวิจัยของนางสาวอัญรัตน์ มโนวรกุล ที่มีการศึกษาการกำจัด NO ด้วยตัวเร่งปฏิกิริยา WO₃/TiO₂ ซึ่งได้นำผลมาแสดงในรูปที่ 4.19 และ 4.20 พบว่าสามารถกำจัด NO ได้ประมาณ 60 % ที่อุณหภูมิ 300°C โดยเกิดปฏิกิริยา NH₃ oxidation ที่อุณหภูมิ 400°C และ 450°C และมีปริมาณความเข้มข้นของ NO เพียง 17.19 และ 88.02 ppm ตามลำดับ จากข้อดีที่ได้กล่าวมางานวิจัยชิ้นนี้จึงได้นำ WO₃ 7.65 wt% เติมลงในตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ ซึ่งได้ผลการทดลองดังรูปที่ 4.21



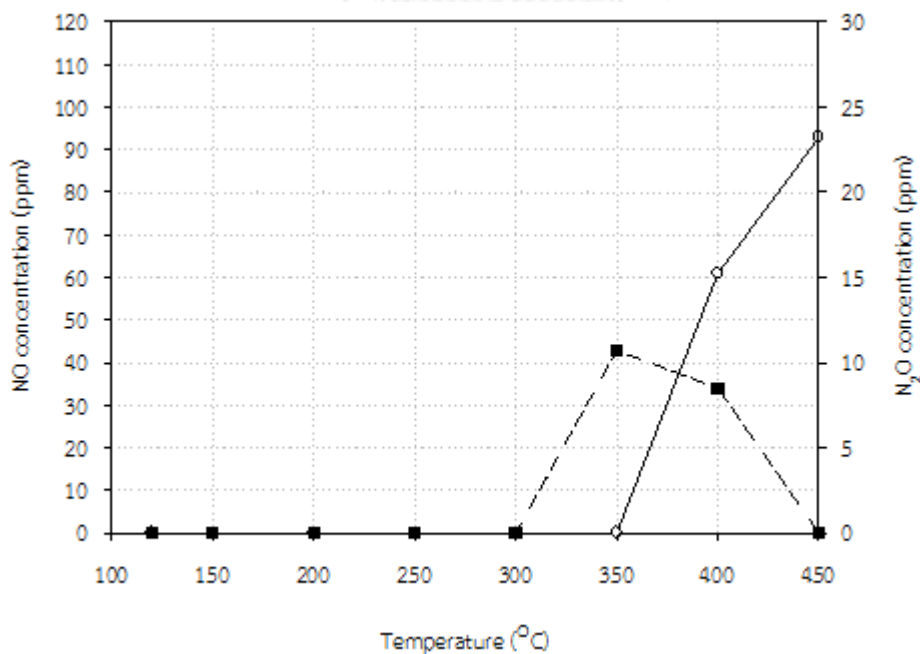
รูปที่ 4. 19 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 (ปริมาณ WO_3 7.11 wt%) —●— run 1
 -○- run 2 —▽— NO_x conversion —▲— N_2O ppm



รูปที่ 4. 20 ปฏิกิริยาของ NH_3 oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 (ปริมาณ WO_3 7.11 wt%) —○— NO ppm —■— N_2O ppm

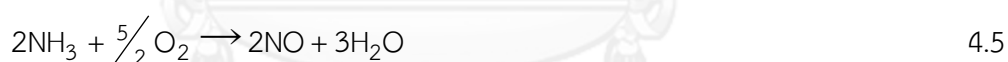


รูปที่ 4. 21 ปฏิกิริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$ (ปริมาณ MoO_3 5.68 wt% WO_3 6.88 wt%) —●— run 1 —○— run 2 —▽— NO_x conversion —▲— N_2O ppm



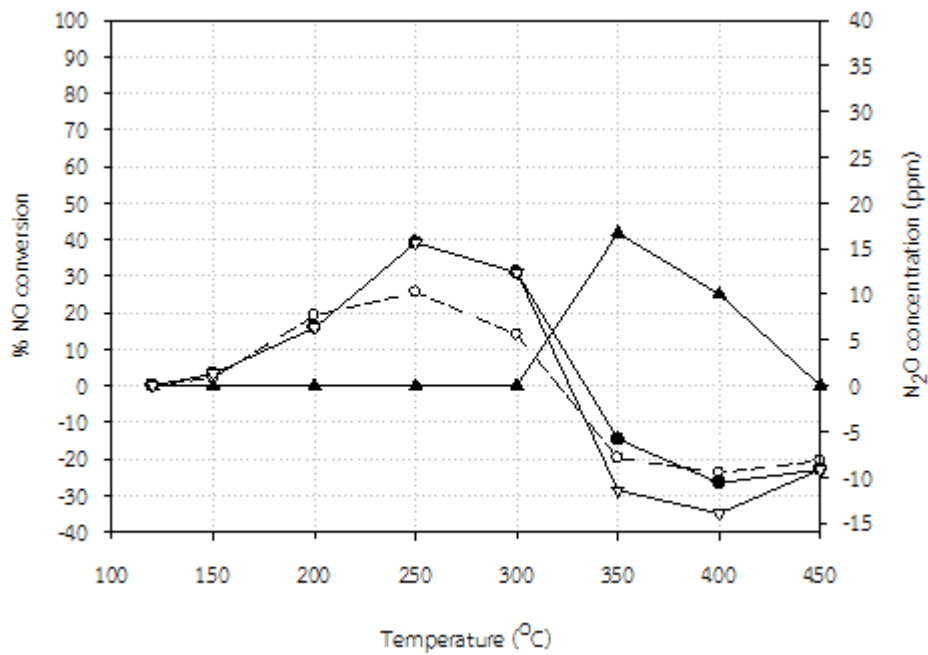
รูปที่ 4. 22 ปฏิกิริยาของ NH_3 oxidation บนตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$ (ปริมาณ MoO_3 5.68 wt% WO_3 6.88 wt%) —○— NO ppm —■— N_2O ppm

การเติม WO_3 ทำให้การกำจัด NO เพิ่มขึ้นโดย % NO conversion เพิ่มขึ้นจากอุณหภูมิ 120°C ถึง 250°C ซึ่งสามารถกำจัด NO ได้ 74.58 % ในการทดลองครั้งที่ 1 (run 1) และ 63.48 % ในการทดลองครั้งที่ 2 (run 2) ที่อุณหภูมิ 250°C และ % NO conversion เริ่มลดลงตั้งแต่อุณหภูมิ 300°C เป็นต้นไป นอกจากนี้ยังพบการเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ที่อุณหภูมิ 300°C เท่ากับ 31.38 ppm และเกิดลดลงเหลือ 15.67 ppm ที่อุณหภูมิ 400°C และไม่พบ N_2O ที่อุณหภูมิ 450°C การเกิด N_2O ของตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$ ที่อุณหภูมิ 350°C ไม่น่าจะมาจากปฏิกิริยาในสมการที่ 4.3 เพราะถ้าเกิดปฏิกิริยาที่ 4.3 ขึ้น % NO conversion ไม่ควรลดลง เนื่องจากปฏิกิริยาที่ 4.3 เป็นการกำจัด NO เช่นกันแต่ได้ผลิตภัณฑ์เป็น N_2O แทน N_2 เพราะฉะนั้น N_2O อาจจะมาจกปฏิกิริยาระหว่าง NH_3 กับ O_2 เกิดเป็น N_2O ดังสมการที่ 4.4 การที่ O_2 ทำปฏิกิริยากับ NH_3 ทำให้ NH_3 ที่จะทำปฏิกิริยากับ NO ลดลง ทำให้เห็นว่า % NO conversion ลดลงขณะที่มีการเกิด N_2O ส่วนที่อุณหภูมิ 400°C N_2O ที่เกิดขึ้นน่าจะมาจากปฏิกิริยา NH_3 oxidation ซึ่งได้ผลิตภัณฑ์เป็น NO (รูปที่ 4.22) ดังสมการที่ 4.5 แล้ว NO จึงไปทำปฏิกิริยากับ NH_3 และ O_2 ตามสมการที่ 4.3 ส่วนการที่ไม่พบ N_2O ที่อุณหภูมิ 450°C น่าจะมาจาก NH_3 เกิดเป็น NO ตามสมการที่ 4.5 จนมี NH_3 ไม่เพียงพอให้เกิด N_2O ในสมการที่ 4.3

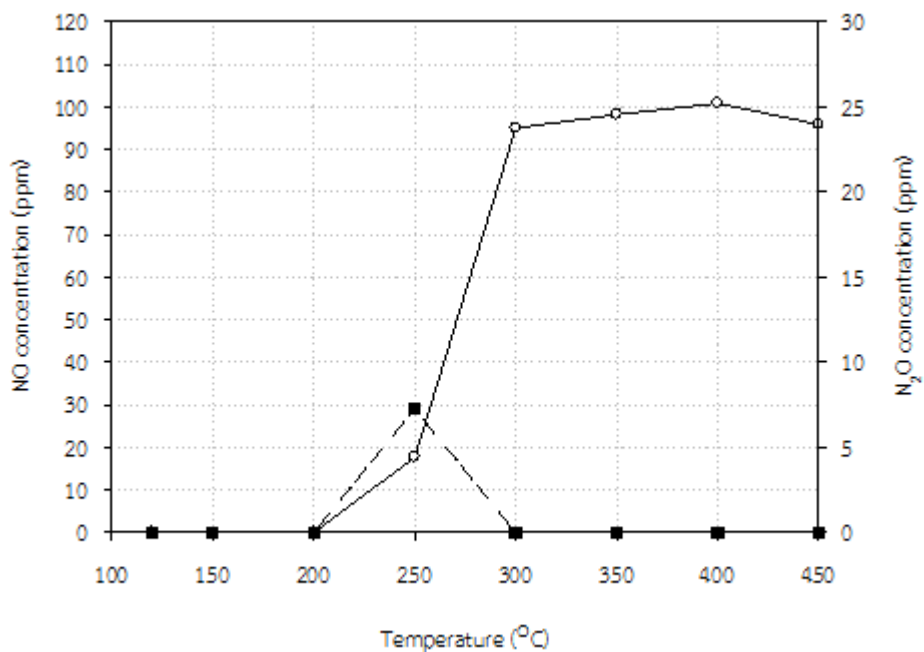


สำหรับผลของ NH_3 oxidation ของตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$ ดังรูปที่ 4.22 พบว่าที่อุณหภูมิ 350°C เกิด N_2O ก่อนที่ระบบจะเกิด NO แสดงว่า N_2O น่าจะเกิดจาก NH_3 ทำปฏิกิริยากับ O_2 เกิดเป็น N_2O ดังสมการที่ 4.4

เมื่อพิจารณาที่อุณหภูมิ 400°C มีการเกิด NO ในระบบร่วมกับการเกิด N_2O เป็นไปได้ว่า NO เกิดขึ้น ตามสมการที่ 4.5 และทำปฏิกิริยากับ NH_3 บางส่วน เกิดเป็น N_2O ตามสมการที่ 4.3 โดยทั้ง 2 สมการน่าจะเกิดขึ้นพร้อมๆกัน เนื่องจากในระบบมีการเกิดทั้ง NO และ N_2O การที่ไม่พบการเกิด N_2O ที่อุณหภูมิ 450°C อาจเป็นเพราะ NH_3 เกิดเป็น NO จนหมด จนไม่เหลือทำปฏิกิริยากับ NO เกิดเป็น N_2O ตามสมการที่ 4.3 หรือไม่สมการที่ 4.5 เกิดขึ้นได้ดีมากที่อุณหภูมิ 450°C



รูปที่ 4. 23 ปฏิกริยา SCR บนตัวเร่งปฏิกริยา $\text{MoO}_3\text{-NiO/TiO}_2$ (ปริมาณ MoO_3 5.78 wt% NiO 2.79 wt%) —●— run 1 —○— run 2 —▽— NO_x conversion —▲— N_2O ppm



รูปที่ 4. 24 ปฏิกริยาของ NH_3 oxidation บนตัวเร่งปฏิกริยา $\text{MoO}_3\text{-NiO/TiO}_2$ (ปริมาณ MoO_3 5.78 wt% NiO 2.79 wt%) —○— NO ppm —■— N_2O ppm

จากการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO₂ ในระหว่างปฏิกิริยา SCR พบว่าตัวเร่งปฏิกิริยา ค่อนข้างเสถียรกล่าวคือ สามารถกำจัด NO ได้คงที่ และสามารถกำจัด NO ได้ดีในช่วงอุณหภูมิที่กว้าง กว่าตัวเร่งปฏิกิริยาตัวอื่น จากข้อดีดังกล่าวจึงนำ NiO เติมลงในตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ ซึ่งผล ของปฏิกิริยา SCR แสดงดังรูปที่ 4.23 พบว่าทำให้การกำจัด NO ลดลงเมื่อเทียบกับผลของตัวเร่ง ปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ (รูปที่ 4.11) โดยที่อุณหภูมิ 250°C ค่า % NO conversion ของการทดลอง ครั้งที่ 1 (run 1) ลดลงเหลือ 39.07 % นอกจากนี้ % NO conversion ยังลดลงทันทีที่อุณหภูมิ 300°C และลดลงเรื่อยๆจนถึงอุณหภูมิ 450°C นอกจากนี้ยังพบว่าเริ่มเกิด N₂O ที่อุณหภูมิ 350°C เท่ากับ 16.72 ppm และที่อุณหภูมิ 400°C เท่ากับ 10 ppm แสดงว่าการเติม NiO ไม่ได้ทำให้ตัวเร่ง ปฏิกิริยาสามารถกำจัด NO คงที่ได้ในช่วงอุณหภูมิกว้างและไม่ได้ทำให้ตัวเร่งปฏิกิริยาไม่เกิด N₂O การเกิด N₂O ในขณะที่ % NO conversion ลดลงอย่างมาก แสดงว่าเกิดปฏิกิริยา NH₃ oxidation ขึ้นก่อน ตามสมการที่ 4.5 แล้ว NH₃ บางส่วนจึงทำปฏิกิริยากับ NO เกิดเป็น N₂O ตามสมการที่ 4.3 เมื่อนำผลการกำจัด NO ครั้งที่ 1 (run 1) ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃-NiO/TiO₂ มาแสดงผลเป็น % NO_x conversion พบว่าที่อุณหภูมิ 350°C และ 400°C มี NO และ N₂O ในระบบมาก ทำให้ค่า % NO_x conversion ตีตกสูงมาก

สำหรับตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃-NiO/TiO₂ ดังรูปที่ 4.24 พบว่า N₂O เกิดขึ้นที่อุณหภูมิ 250°C ซึ่งอุณหภูมิดังกล่าวมีการเกิด NO เช่นกัน เป็นไปได้ว่าสมการที่ 4.5 เกิดขึ้นก่อน แล้ว NH₃ บางส่วน ทำปฏิกิริยากับ NO ที่ได้จากสมการ 4.5 เกิดเป็น N₂O ช่วงอุณหภูมิระหว่าง 300 ถึง 450°C พบว่า NO ในระบบมีความเข้มข้นสูง แสดงว่า MoO₃-NiO/TiO₂ ทำให้เกิดปฏิกิริยา NH₃ oxidation ได้ดีขึ้น เมื่อเทียบกับผลของปฏิกิริยา NH₃ oxidation ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂ และ NiO/TiO₂ ดังรูป ที่ 4.12 และ 4.18 ตามลำดับ

จากการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยา SCR สรุปได้ว่า ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ให้ค่า % NO conversion สูง แต่กลับพบการเกิด N₂O ร่วมด้วย ซึ่งแสดงให้เห็นว่าการกำจัด NO ไม่ได้เกิดเป็น N₂ ทั้งหมด แต่กลับเกิดเป็นแก๊สพิษอีกตัวหนึ่ง เมื่อนำ NO และ N₂O มาคิดเป็น NO_x conversion พบว่าค่า conversion ลดลง ซึ่งงานวิจัยที่ผ่านมายังไม่มีการศึกษาถึงประเด็นดังกล่าว

4.2.2 การทดสอบในระหว่างปฏิกิริยาการออกซิไดซ์ซัลเฟอร์ไดออกไซด์ (SO₂ oxidation)

การทดสอบเพื่อตรวจวัด SO₃ จากปฏิกิริยา SO₂ oxidation ด้วยเครื่องแก๊สโครมาโตกราฟ (Gas chromatograph) Shimadzu GC-2014 ตรวจวัดโดยอ้างอิงจากตำแหน่งกราฟ SO₂ โดยถ้ากราฟ SO₂ ไม่ลดลงแสดงว่าไม่เกิด SO₃ เนื่องจากไม่มีแก๊สมาตรฐานของ SO₃ ซึ่งจากผลการทดลองพบว่าไม่พบการลดลงของกราฟ SO₂ แต่ด้วยวิธีดังกล่าวอาจเป็นไปได้ว่ากราฟ SO₃ เกิดขึ้นซ้อนอยู่กับกราฟ SO₂ ดังนั้นจึงได้ทดลองปล่อยแก๊สออกจากเครื่องปฏิกรณ์ขณะทำปฏิกิริยาในสารละลาย BaCl₂ 0.2 mol/L ตลอดการทดลอง ซึ่งถ้ามี SO₃ เกิดขึ้นจะเกิดตะกอน BaSO₄ จากการทดลองพบตะกอนน้อยมาก โดยเกิดในตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃-WO₃/TiO₂ และ MoO₃-NiO/TiO₂ ในช่วงเวลาใกล้เคียงกัน กล่าวคือ การเกิดตะกอนขึ้นในสารละลาย BaCl₂ ไม่ขึ้นกับตัวเร่งปฏิกิริยาแต่ขึ้นกับระยะเวลาในการทดลอง ดังนั้นตะกอนที่เกิดขึ้นอาจเป็นตะกอนของ BaS หรือตะกอนอื่นๆที่เกิดขึ้นได้ง่ายกว่า

บทที่ 5

สรุปผลการวิจัยและข้อเสนอแนะ

ในบทนี้จะกล่าวถึงสรุปผลการทดลองคุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยาและการทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาพร้อมทั้งข้อเสนอแนะ

5.1 สรุปผลการทดลองคุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา

การหาพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิคการดูดซับทางกายภาพด้วยแก๊สไนโตรเจน (N_2 physisorption) ตัวรองรับ TiO_2 มีพื้นที่ผิวสูงและเมื่อเติมโลหะออกไซด์ลงบนตัวรองรับพบว่าพื้นที่ผิวลดลง

การหาความเป็นกรด (acid sites) บนตัวเร่งปฏิกิริยา TiO_2 MoO_3/TiO_2 Fe_2O_3/TiO_2 MoO_3-WO_3/TiO_2 มีทั้งกรดอ่อนและกรดแก่ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยา $NiO-TiO_2$ MoO_3-NiO/TiO_2 มีแต่กรดแก่เพียงอย่างเดียว

การวิเคราะห์เพื่อหารูปแบบการเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ (XRD pattern) ของตัวรองรับ TiO_2 และตัวเร่งปฏิกิริยา พบว่า TiO_2 เป็นเฟสอนาเทสและพบเฟสรูไทล์กับบรูคไต์เล็กน้อย แต่ไม่พบตำแหน่งของโลหะออกไซด์เป็นเพราะปริมาณของโลหะออกไซด์น้อยเกินกว่าที่จะตรวจพบ

การวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด พบการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดในช่วงคลื่นของของ MoO_3 เท่านั้น โดยไม่พบการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของโลหะออกไซด์ตัวอื่น

5.2 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

สำหรับปฏิกิริยา SCR พบว่าในช่วงอุณหภูมิต่ำ (ตั้งแต่ 120-250°C) การเพิ่มขึ้นของ % NO conversion เป็นไปตามแบบจำลองของ Eley-Rideal แบบจำลองนี้อธิบายว่าโมเลกุลของสารตั้งต้นตัวหนึ่งจะถูกดูดซับลงบนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยา แล้วสารตั้งต้นอีกตัวหนึ่งจะเข้าทำปฏิกิริยาโดยไม่ได้ถูกดูดซับลงบนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยา ซึ่งในปฏิกิริยา SCR ตัวที่ถูกดูดซับลงบนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยาคือ NH_3 ส่วนตัวที่เข้าทำปฏิกิริยาคือ NO และ O_2 ในช่วงอุณหภูมิต่ำการกำจัด NO ตามแบบจำลอง Eley-Rideal ขึ้นกับโอกาสที่จะเกิดปฏิกิริยาในการชนแต่ละครั้งซึ่งโอกาสในการชนขึ้นอยู่กับอุณหภูมิ กล่าวคือ เมื่ออุณหภูมิเพิ่มขึ้นสัดส่วนโมเลกุลที่มีพลังงานจลน์สูงจะเพิ่มขึ้นด้วยและจะวิ่งเข้าชนกับ NH_3 บนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยา ซึ่งในช่วงดังกล่าว NO มีพลังงานจลน์สูงกว่า O_2 สามารถวิ่งเข้าชนกับ NH_3 ได้มากกว่า O_2 จึงเห็นการกำจัด NO เพิ่มขึ้นในช่วงอุณหภูมิ 120-250°C ส่วนในช่วงอุณหภูมิสูง (ตั้งแต่ 300-450°C) พบว่า % NO conversion ลดน้อยลง เป็นเพราะ O_2 มีพลังงานจลน์สูงพอที่จะทำปฏิกิริยากับ NH_3 แล้วเกิดเป็น NO เรียกว่าปฏิกิริยา NH_3 oxidation

สำหรับการเกิด N_2O ในปฏิกิริยา SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3/\text{TiO}_2$ พบว่า N_2O เกิดจาก NH_3 ทำปฏิกิริยากับ NO ซึ่งเกิดจากปฏิกิริยา NH_3 oxidation และอุณหภูมิที่เหมาะสมที่สุดในการกำจัด NO คืออุณหภูมิ 250 °C โดยในปฏิกิริยา NH_3 oxidation ไม่เกิด N_2O

ตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO_2 พบว่า N_2O เกิดในช่วงที่มี % NO conversion สูง แสดงว่า NH_3 ทำปฏิกิริยากับ NO ที่เป็นแก๊สตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยา SCR เมื่อนำ NO กับ N_2O มาคิด % NO_x conversion พบว่าอุณหภูมิที่เหมาะสมในการกำจัด NO_x คือ 300 °C สำหรับปฏิกิริยา NH_3 oxidation ไม่เกิด N_2O

ปฏิกิริยา SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยา Fe_2O_3 อุณหภูมิที่เหมาะสมในการกำจัด NO อยู่ระหว่าง 250 และ 300 °C ในระหว่างปฏิกิริยา SCR และ NH_3 oxidation ไม่พบ N_2O เช่นเดียวกับตัวเร่งปฏิกิริยา NiO ที่ไม่พบการเกิด N_2O นอกจากนี้ในปฏิกิริยา SCR สามารถกำจัด NO ได้ในช่วงอุณหภูมิกว้างตั้งแต่ 250 ถึง 350 °C

สำหรับตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$ ในปฏิกิริยา SCR เกิด N_2O ในช่วงที่ปฏิกิริยามีการกำจัด NO ต่ำ และยังไม่เกิด NO ในปฏิกิริยา NH_3 oxidation แสดงว่า N_2O เกิดจาก NH_3 ทำปฏิกิริยากับ O_2 และอุณหภูมิที่สามารถกำจัด NO ได้ดีที่สุดที่อุณหภูมิ 250°C เช่นเดียวกับปฏิกิริยา NH_3 oxidation พบการเกิด N_2O ก่อนการเกิด NO แสดงว่า NH_3 ทำปฏิกิริยากับ O_2 เกิดเป็น N_2O

ตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-NiO}/\text{TiO}_2$ ในปฏิกิริยา SCR พบการเกิด N_2O ในช่วงที่มีการกำจัด NO ลดลง แต่พบว่าในปฏิกิริยา NH_3 oxidation มีการเกิด NO ดังนั้น N_2O ที่เกิดขึ้นน่าจะมาจาก NH_3 ทำปฏิกิริยากับ NO และพบว่าอุณหภูมิที่เหมาะสมที่สุดในการกำจัด NO คือ 250°C ส่วนปฏิกิริยา NH_3 oxidation N_2O เกิดพร้อมกับ NO แสดงว่า NH_3 ทำปฏิกิริยากับ NO บางส่วนที่เกิดจาก NH_3 oxidation เกิดเป็น N_2O

สำหรับปฏิกิริยา SO_2 oxidation ไม่พบการเกิด SO_3

5.3 ข้อเสนอแนะ

ทดสอบตำแหน่งกราฟ SO_3 สำหรับเครื่องแก๊สโครมาโตกราฟ (Gas chromatograph) เพื่อยืนยันตำแหน่งของ SO_3 ทำให้สามารถทำการทดลองได้ถูกต้องแม่นยำขึ้น

ปรับปรุงประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5 ที่ใช้ในอุตสาหกรรมด้วย Fe_2O_3 และ NiO ที่พบว่าไม่ทำให้เกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR และเกิด NO ในปริมาณต่ำที่อุณหภูมิสูงเมื่อเทียบกับโลหะออกไซด์ตัวอื่น

รายการอ้างอิง

1. Curtin, T., in *Environmental catalysis*, V.H. Grassian, Editor. 2005, CRC press: Boca Raton. p. 197-210.
2. Forzatti, P., et al., *Effect of operating variables on the enhanced SCR reaction over a commercial V2O5-WO3/TiO2 catalyst for stationary applications*. *Catalysis Today*, 2012. **184**(1): p. 153-159.
3. Guido Busca, et al., *Chemical and mechanistic aspects of the selective catalytic reduction of NOx by ammonia over oxide catalysts: A review*. *Applied Catalysis B: Environmental*, 1998. **18**: p. 1-36.
4. Yates, M., et al., *N2O formation in the ammonia oxidation and in the SCR process with V2O5-WO3 catalysts*. *Catalysis Today*, 2005. **107-108**: p. 120-125.
5. Pyung Sam Ji, et al., *V2O5-based catalyst for removing NOx from flue gas and preparing method therefor*. 2002, Korea hydro & Nuclear Power Co., Ltd., Seoul (KR): South Korea.
6. Gabriele Centi and S. Perathoner, in *Metal Oxides Chemistry and Application*, J.L.G.Fierro, Editor. 2006, CRC press: Boca Raton. p. 661-679.
7. Luis J Alemany, et al., *Reactivity and Physicochemical Characterisation of V2O5-WO3/TiO2 De-NOx Catalysts*. *Journal of Catalysis*, 1995. **155**: p. 117-130.
8. Shinpei Matsuda, et al., *Proocess for reducing an eliminating nitrogen oxide in an exhaust gas*. 1982, Hitachi,Lid.; Babcock-Hitachi kabushiki-kaisha, both of Tokyo: Japan.
9. Martin, J.A., et al., *Nitrous oxide formation in low temperature selective catalytic reduction of nitrogen oxides with V2O5/TiO2 catalysts*. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2007. **70**(1-4): p. 330-334.
10. Gaigneaux, E., et al., *Preparation of V2O5/TiO2 catalyst for NH3-SCR: Controlling factor of TiO2 support for highly active catalyst*, in *Scientific Bases for the Preparation of Heterogeneous Catalysts*, E.M.G.e. al., Editor. 2002. p. 785-792
11. H. Matralis, et al., *Selective catalytic reduction of nitric oxide with ammonia using MoO3/TiO2: Catalyst structure and activity*. *Applied Catalysis B: Environmental*, 1995. **5**: p. 271-281.
12. Ramis, G., et al., *Adsorption, Activation, and Oxidation of Ammonia over SCR catalysts*. *Journal of Catalysis*, 1995. **157**: p. 523-535.
13. I. Novaa, et al., *Characterization and reactivity of TiO2-supported MoO3 De-Nox SCR catalysts*. *Applied Catalysis B: Environmental*, 1998. **17**: p. 245-258.

14. Laura Casagrande, et al., *SCR of NO by NH₃ over TiO₂-supported V₂O₅-MoO₃ catalysts: reactivity and redox behavior*. Applied Catalysis B: Environmental, 1999. **22**: p. 63-77.
15. Luca Lietti, et al., *Characterization and Reactivity of V₂O₅-MoO₃/TiO₂ De-NO_x SCR Catalysts*. Journal of Catalysis, 1999. **187**: p. 419-435.
16. Ch. Fountzoula, et al., *Molybdenum-titanium oxide catalysts: the influence of the preparation conditions on their activity for the selective catalytic reduction of NO by NH₃*. Applied Catalysis B: Environmental, 2002. **35**: p. 295-304.
17. Silvia Suárez, et al., *Influence of NH₃ and NO oxidation on the SCR reaction mechanism on copper/nickel and vanadium oxide catalysts supported on alumina and titania*. Catalysis Today, 2002. **75**: p. 331-338.
18. Qi, G. and R.T. Yang, *Low-temperature selective catalytic reduction of NO with NH₃ over iron and manganese oxides supported on titania*. Applied Catalysis B: Environmental, 2003. **44**(3): p. 217-225.
19. Peña, D.A., B.S. Uphade, and P.G. Smirniotis, *TiO₂-supported metal oxide catalysts for low-temperature selective catalytic reduction of NO with NH₃. Evaluation and characterization of first row transition metals*. Journal of Catalysis, 2004. **221**(2): p. 421-431.
20. Suarez, S., et al., *N₂O formation in the selective catalytic reduction of NO_x with NH₃ at low temperature on CuO-supported monolithic catalysts*. Journal of Catalysis, 2005. **229**(1): p. 227-236.
21. Kröcher, O. and M. Elsener, *Chemical deactivation of V₂O₅/WO₃-TiO₂ SCR catalysts by additives and impurities from fuels, lubrication oils, and urea solution*. Applied Catalysis B: Environmental, 2008. **77**(3-4): p. 215-227.
22. Sounak Roy, et al., *Low-Temperature Selective Catalytic Reduction of NO with NH₃ over Ti_{0.9}M_{0.1}O₂ (M = Cr, Mn, Fe, Co, Cu)*. J. Phys. Chem. C, 2008. **112**: p. 6002-6012.
23. Liu, F., et al., *Selective catalytic reduction of NO with NH₃ over iron titanate catalyst: Catalytic performance and characterization*. Applied Catalysis B: Environmental, 2010. **96**(3-4): p. 408-420.
24. Zhu, J., et al., *Studies on surface structure of M_xO_y/MoO₃/CeO₂ system (M=Ni, Cu, Fe) and its influence on SCR of NO by NH₃*. Applied Catalysis B: Environmental, 2010. **95**(1-2): p. 144-152.
25. Thirupathi, B. and P.G. Smirniotis, *Nickel-doped Mn/TiO₂ as an efficient catalyst for the low-temperature SCR of NO with NH₃: Catalytic evaluation and characterizations*. Journal of Catalysis, 2012. **288**: p. 74-83.

26. Zhang, S., H. Li, and Q. Zhong, *Promotional effect of F-doped V₂O₅-WO₃/TiO₂ catalyst for NH₃-SCR of NO at low-temperature*. *Applied Catalysis A: General*, 2012. **435-436**: p. 156-162.
27. Liu, Z., et al., *Promoting effect of MoO₃ on the NO_x reduction by NH₃ over CeO₂/TiO₂ catalyst studied with in situ DRIFTS*. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2014. **144**: p. 90-95.





ภาคผนวก

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

ภาคผนวก ก

การคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

การคำนวณปริมาณโลหะออกไซด์ทุกตัวคิดจากจำนวนโมลโลหะเท่ากับจำนวนโมลโลหะวานาเดียมที่คิดเป็นวานาเดียมออกไซด์ร้อยละ 3 ในภาคผนวก ก จะแสดงตัวอย่างการคำนวณของ MoO_3 และ Fe_2O_3

ข.1 ตัวอย่างการคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3

$$\begin{aligned} \text{น้ำหนักของโลหะวานาเดียมใน } 3\% \text{ V}_2\text{O}_5 &= \frac{(3 \times \text{MW metal})}{\text{MW V}_2\text{O}_5} \\ &= \frac{(3 \times 101.884)}{181.88} \\ &= 1.6805 \text{ กรัม} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{โมลของโลหะวานาเดียม} &= \frac{1.6805}{50.942} \\ &= 0.032989 \end{aligned}$$

ให้โมลของโลหะวานาเดียมเท่ากับโมลของโลหะโมลิบดีนัม

$$\begin{aligned} \text{น้ำหนักของโลหะโมลิบดีนัม} &= \text{mol V} \times \text{MW Mo} \\ &= 0.032989 \times 95.96 \\ &= 3.165604 \text{ กรัม} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{ร้อยละของ } \text{MoO}_3 &= \frac{(\text{Weight metal} \times \text{MW metal oxide})}{\text{MW metal}} \\ &= \frac{(3.165604 \times 143.9382)}{95.96} \end{aligned}$$

$$= 4.75 \%$$

เตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา 2 กรัม

$$\text{MoO}_3 = \frac{(2 \times 4.75)}{100} = 0.095 \text{ กรัม}$$

MoO₃ 0.095 กรัม เตรียมจากสาร (NH₄)₆Mo₇O₂₄·4H₂O น้ำหนักโมเลกุล 1235.86 g/mole

$$\begin{aligned} \text{ปริมาณ (NH}_4\text{)}_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O ที่ใช้} &= \frac{(\text{metal oxide required (g)} \times \text{MW (NH}_4\text{)}_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O})}{\text{MW metaloxide}} \\ &= \frac{(0.095 \times 1235.86)}{(7 \times 143.9382)} \text{ กรัม} \\ &= 0.11648 \text{ กรัม} \end{aligned}$$

ข.1 ตัวอย่างการคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา Fe₂O₃

ให้โมลของโลหะวานาเดียมเท่ากับโมลของโลหะเหล็ก

$$\begin{aligned} \text{น้ำหนักของ Fe} &= \text{mol V} \times \text{MW Fe} \\ &= 0.032989 \times 55.845 \\ &= 1.842259 \text{ กรัม} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{ร้อยละของ Fe}_2\text{O}_3 &= \frac{(\text{Weight metal} \times \text{MW metal oxide})}{\text{MW metal}} \\ &= \frac{(1.842259 \times 159.6882)}{55.815 \times 2} \\ &= 2.63 \% \end{aligned}$$

เตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา 2 กรัม

$$\text{Fe}_2\text{O}_3 = \frac{(2 \times 2.63)}{100} = 0.0526 \text{ กรัม}$$

Fe_2O_3 0.0526 กรัม เตรียมจากสาร $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ น้ำหนักโมเลกุล 404 g/mole

$$\begin{aligned} \text{ปริมาณ } \text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O} \text{ ที่ใช้} &= \frac{\text{metal oxide required (g)} \times \text{MW } \text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}}{\text{MW metaloxide}} \\ &= \frac{(0.0526 \times 404)}{(159.6882)} \text{ กรัม} \\ &= 0.26654 \text{ กรัม} \end{aligned}$$

ภาคผนวก ข
ข้อมูลผลการทดลอง

ข.1 ผลการทดลองในปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยา NH₃ oxidation

ตารางที่ ข. 1 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂

อุณหภูมิ (°C)	ปฏิกิริยา SCR			ปฏิกิริยา NH ₃ oxidation	
	NO conversion (%)		ความเข้มข้น ของ N ₂ O (ppm)	ความเข้มข้น ของ NO (ppm)	ความเข้มข้น ของ N ₂ O (ppm)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2			
120	6.24	1.04	0	0	0
150	6.32	6.32	0	0	0
200	38.71	40.75	0	0	0
250	58.12	59.61	0	0	0
300	43.05	36.22	0	0	0
350	19.15	17.94	0	30.58	0
400	-9.28	-5.72	0	96.66	0
450	-17.36	-12.61	15.30	118.37	0

ตารางที่ ข. 2 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO₂

อุณหภูมิ (°C)	ปฏิกิริยา SCR			ปฏิกิริยา NH ₃ oxidation	
	NO conversion (%)		ความเข้มข้น ของ N ₂ O (ppm)	ความเข้มข้น ของ NO (ppm)	ความเข้มข้น ของ N ₂ O (ppm)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2			
120	0	0	0	0	0
150	10.21	5.33	0	0	0
200	14.27	15.74	4.5	0	0
250	45.01	39.04	11.8	0	0
300	34.36	24.58	0	45.26	0
350	18.25	14.08	0	107.18	0
400	-2.44	-2.02	0	109.83	0
450	-9.02	-7.4	0	111.43	0

ตารางที่ ข. 3 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา Fe₂O₃/TiO₂

อุณหภูมิ (°C)	ปฏิกิริยา SCR		ปฏิกิริยา NH ₃ oxidation		
	NO conversion (%)		ความเข้มข้น ของ N ₂ O (ppm)	ความเข้มข้น ของ NO (ppm)	ความเข้มข้น ของ N ₂ O (ppm)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2			
120	5.76	6.94	0	0	0
150	12.92	14.27	0	0	0
200	35.12	29.01	0	0	0
250	54.28	48.04	0	0	0
300	51.61	51.4	0	0	0
350	35.87	32.55	0	26.35	0
400	17.1	14.39	0	87.81	0
450	-1.69	1.11	0	115.33	0

ตารางที่ ข. 4 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา NiO/TiO₂

อุณหภูมิ (°C)	ปฏิกิริยา SCR			ปฏิกิริยา NH ₃ oxidation	
	NO conversion (%)		ความเข้มข้น ของ N ₂ O (ppm)	ความเข้มข้น ของ NO (ppm)	ความเข้มข้น ของ N ₂ O (ppm)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2			
120	0.04	1.36	0	0	0
150	10.58	4.02	0	0	0
200	10.73	4.91	0	0	0
250	20.98	9.17	0	0	0
300	22.81	18.9	0	0	0
350	23.20	19.89	0	0	0
400	6.44	8.96	0	49.66	0
450	1.94	4.7	0	100.79	0

ตารางที่ ข. 5 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-WO}_3/\text{TiO}_2$

อุณหภูมิ ($^{\circ}\text{C}$)	ปฏิกิริยา SCR			ปฏิกิริยา NH_3 oxidation	
	NO conversion (%)		ความเข้มข้น ของ N_2O (ppm)	ความเข้มข้น ของ NO (ppm)	ความเข้มข้น ของ N_2O (ppm)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2			
120	5.87	1.89	0	0	0
150	8.89	9.08	0	0	0
200	45	43.74	0	0	0
250	74.58	63.48	0	0	0
300	67.03	55.54	31.38	0	0
350	29.73	25.19	15.67	0	10.70
400	9.08	0.17	0	60.87	8.50
450	-4	-20.37	0	92.85	0

ตารางที่ ข. 6 ผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยา $\text{MoO}_3\text{-NiO/TiO}_2$

อุณหภูมิ ($^{\circ}\text{C}$)	ปฏิกิริยา SCR			ปฏิกิริยา NH_3 oxidation	
	NO conversion (%)		ความเข้มข้น ของ N_2O (ppm)	ความเข้มข้น ของ NO (ppm)	ความเข้มข้น ของ N_2O (ppm)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2			
120	0	0	0	0	0
150	3.25	2.16	0	0	0
200	15.83	19.17	0	0	0
250	39.07	25.57	0	17.71	7.27
300	30.94	14.01	0	95.05	0
350	-14.67	-19.78	16.72	98.19	0
400	-26.56	-23.82	0	100.89	0
450	-22.95	-20.58	0	95.88	0

ข.2 ผล NO_x conversion (%) ในปฏิกิริยา SCR

ตารางที่ ข. 7 ผล NO_x conversion (%) ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃/TiO₂

อุณหภูมิ (°C)	NO _x conversion (%)
120	6.24
150	6.32
200	38.71
250	58.12
300	43.05
350	19.15
400	-9.28
450	-30.11

ตารางที่ ข. 8 ผล NO_x conversion (%) ของตัวเร่งปฏิกิริยา CuO/TiO₂

อุณหภูมิ (°C)	NO _x conversion (%)
120	0
150	10.21
200	10.52
250	35.17
300	34.36
350	18.25
400	-2.44
450	-9.02

ตารางที่ ข. 9 ผล NO_x conversion (%) ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃-WO₃/TiO₂

อุณหภูมิ (°C)	NO _x conversion (%)
120	5.87
150	8.89
200	45.00
250	74.58
300	67.03
350	3.58
400	-3.98
450	-4.00

ตารางที่ ข. 10 ผล NO_x conversion (%) ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO₃-NiO/TiO₂

อุณหภูมิ (°C)	NO _x conversion (%)
120	0
150	3.25
200	15.83
250	39.07
300	30.94
350	-28.61
400	-34.89
450	-22.95

ประวัติผู้เขียนวิทยานิพนธ์

นางสาวลภัสสรดา ชื่นกลิ่น เกิดเมื่อวันที่ 20 ธันวาคม 2532 ที่จังหวัดสิงห์บุรี สำเร็จการศึกษาชั้นมัธยมศึกษาตอนปลายจากโรงเรียนพิบูลวิทยาลัย จังหวัดลพบุรี ในปี พ.ศ. 2550 และเข้ารับการศึกษาระดับปริญญาตรีที่คณะวิศวกรรมศาสตร์ สาขาวิศวกรรมเคมี มหาวิทยาลัยมหิดล และสำเร็จการศึกษาเมื่อปี 2554 และได้ศึกษาต่อในหลักสูตรวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต ภาควิชาวิศวกรรมเคมี คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย



จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY