SELECTIVE CATALYTIC REDUCTION OF NO_x BY AMMONIA USING ITQ-21 CATALYSTS

Komsit Pinchanchaiyoth

Thesis Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Master of Science
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma,
Case Western Reserve University and Institut Français du Pétrole
2006

ISBN 974-9937-45-7

Thesis Title: Selective Catalytic Reduction of NO_x by Ammonia Using ITQ-21 Catalysts

By: Komsit Pinchanchaiyoth

Program: Petroleum Technology

Thesis Advisors: Asst. Prof. Sirirat Jitkarnka

Asst. Prof. Apanee Luengnaruemitchai

Accepted by the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, in partial fulfilment of the requirements for the Degree of Master of Science.

Nantaya Yanumet .... College Director

(Assoc. Prof. Nantaya Yanumet)

Thesis Committee:

(Asst. Prof. Sirirat Jitkarnka)

Apanee L.

(Asst. Prof. Apanee Luengnaruemitchai)

Pramoch R.

(Assoc. Prof. Pramoch Rangsunvigit)

Kitipat Siemanond

(Asst. Prof. Kitipat Siemanond)

490398

ABSTRACT

4773007063: Petroleum Technology Program
Komsit Pinchanchaiyoth: Selective Catalytic Reduction of NO_x by Ammonia Using ITQ-21 Catalysts.
Thesis Advisors: Asst. Prof. Sirirat Jitkarnka and Asst. Prof. Apanee Luengnaruemitchai 53 pp. ISBN 974-9937-45-7
Keywords: SCR/ NOx/ ITQ-21/ Mordenite/ NH_3-SCR/ DeNOx

The synthesis of ITQ-21 was successfully accomplished. 5% ITQ-21 was mixed with H-MOR denoted as 5%ITQ-21/H-MOR. The mixed zeolites with higher acidity than H-MOR due to the addition of ITQ-21 were subsequently used as the support for NO_x reduction. However, the acidity was decreased after the addition of metals. The presence of metals showed enhancement in NO conversion, but it decreased N_2 selectivity. Among the metal-supported H-MOR catalysts, Cu gave the highest NO conversion. ITQ-21 enhanced NO conversion for the metal-containing catalysts by improving the accessibility to the active sites. When compared with all catalysts, Fe/ITQ-21/H-MOR yielded the maximum NO conversion at 400°C. The higher reaction temperature increased NO conversion, depending also on type of metal, but it did not affect on N_2 selectivity. Germanium in ITQ-21 may cause higher acidity of catalysts, resulting in the better N_2 selectivity. In addition, Ge itself was not the appropriate type of deNO$_x$ metal due to its low NO conversion.

บทคัดย่อ

คมน์สิทธิ์ ปิ่นชาญชัยยุทธ : การศึกษาปฏิกิริยารีดักชันอย่างเจาะจงของก๊าซไนตริกออกไซด์ด้วยก๊าซแอมโมเนียโดยใช้ซีโอไลท์ชื่อไอทีคิว-21 เป็นตัวเร่งปฏิกิริยา (Selective Catalytic Reduction of NO_x by Ammonia Using ITQ-21 Catalysts) อ. ที่ปรึกษา: ผศ. ดร. ศิริรัตน์ จิตการค้า และ ผศ.ดร.อาภาณี เหลืองนฤมิตชัย 53 หน้า ISBN 974-9937-45-7

การสังเคราะห์ไอทีคิว-21ประสบความสำเร็จ ซึ่ง ได้ถูกผสมกับมอร์เดไนต์ เป็น 5%ITQ-21/H-MOR การใส่ไอทีคิว-21ทำให้มีความเป็นกรดสูงกว่ามอร์เดไนต์ โดยใช้เป็นตัวรองรับตัวเร่งปฏิกิริยาในการลดก๊าซไนตริกออกไซด์ แต่ความเป็นกรดจะลดลงหลังจากใส่โลหะลงไป การใส่โลหะจะเพิ่มความสามารถในการลดก๊าซไนตริกออกไซด์แต่จะลดความเจาะจงในการเกิดก๊าซไนโตรเจน ทองแดงจะมีความสามารถในการลดก๊าซไนตริกออกไซด์สูงสุดในตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้มอร์เดไนต์เป็นตัวรองรับตัวเร่งปฏิกิริยา การใช้ไอทีคิว-21บนตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีโลหะอยู่จะช่วยเพิ่มความสามารถในการลดก๊าซไนตริกออกไซด์ โดยจะเพิ่มความสามารถในการเข้าถึงบริเวณที่ใช้ทำปฏิกิริยาได้ และจากการเปรียบเทียบกับตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งหมดพบว่า Fe/ITQ-21/H-MOR จะมีความสามารถสูงที่สุดในการลดก๊าซไนตริกออกไซด์ที่ 400 องศาเซลเซียส อุณหภูมิสูงขึ้นจะช่วยเพิ่มความสามารถในการลดก๊าซไนตริกออกไซด์แต่ก็ขึ้นอยู่กับชนิดของโลหะด้วย เจอมาเนียมในไอทีคิว-21น่าจะเป็นสาเหตุที่ทำให้ตัวเร่งปฏิกิริยามีความเป็นกรดเพิ่มขึ้น และเจอมาเนียมจัดว่าเป็นโลหะที่ไม่เหมาะสมในการลดก๊าซไนตริกออกไซด์ เนื่องจากมีความสามารถในการลดก๊าซไนตริกออกไซด์ต่ำ

ACKNOWLEDGEMENTS

The author gratefully acknowledges Asst. Prof. Sirirat Jitkarnka and Asst. Prof. Apanee Luengnaruemitchai, his advisor and co-advisor, respectively, for their sharp suggestions, discussions, encouragements, and problem solving throughout all course of his work.

The author would like to express his sincere appreciation to Assoc. Prof. Pramoch Rangsunvigit and Asst. Prof. Kitipat Siemanond for serving as his thesis committee.

The author is grateful to PPT consortium for the partial support on his research, and also appreciates the supports from the college staffs.

Finally, the author would like to take this opportunity to thank all his friends at PPC, especially the SJ's group, Petroleum, and also Ph.D. students for their helps.

The author is also greatly indebted to his parents and his family for their support, love and understanding.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER

CHAPTER **PAGE**

CHAPTER PAGE

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES