การเกิด N_2O และ SO_3 บนตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ประเภทวานาเดียม ระหว่างการเกิดปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของ NO ด้วย NH_3

นางสาวอัญรัตน์ มโนวรกุล

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 N_2O AND SO_3 OVER VANADIUM-BASED SCR CATALYSTS DURING THE SELECTIVE CATALYTIC REDUCTION OF NO BY NH_3

Miss Anyarat Manoworakul

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 N_2O และ SO_3 บนตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ประเภทวานาเดียม ระหว่างการเกิด ปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของ NO ด้วย NH_3
โดย	นางสาวอัญรัตน์ มโนวรกุล
สาขาวิชา	วิศวกรรมเคมี
อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก	รองศาสตราจารย์ ดร.ธราธร มงคลศรี

คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย อนุมัติให้นับวิทยานิพนธ์ฉบับนี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญามหาบัณฑิต

....คณบดีคณะวิศวกรรมศาสตร์

(ศาสตราจารย์ ดร.บัณฑิต เอื้ออาภรณ์)

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

....ประธานกรรมการ

(ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ดร.สุพจน์ พัฒนะศรี)

....อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก

(รองศาสตราจารย์ ดร.ธราธร มงคลศรี)

....กรรมการ

(อาจารย์ ดร.ชุติมณฑน์ สถิรพิพัฒน์กุล)

....กรรมการภายนอกมหาวิทยาลัย

(อาจารย์ ดร.เพียงพิศ วงศ์มณีนิล)

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

อัญรัตน์ มโนวรกุล : การเกิด N_2O และ SO_3 บนตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ประเภทวานาเดียม ระหว่างการเกิด ปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของ NO ด้วย NH_3. (FORMATION OF N_2O AND SO_3 OVER VANADIUM-BASED SCR CATALYSTS DURING THE SELECTIVE CATALYTIC REDUCTION OF NO BY NH_3) อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก: รศ. ดร.ธราธร มงคลศรี , 83 หน้า.

งานวิจัยนี้ทำการศึกษาการเกิด N_2O และ SO_3 บนตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ประเภทวานาเดียม ระหว่างการเกิดปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของ NO ด้วย NH_3 โดยเตรียมตัวรองรับ TiO_2 ด้วยวิธีโซล-เจล และทำการเติมโลหะวานาเดียม ทังสเตน และโมลิบดินัมลงบน TiO_2 ด้วยวิธีเคลือบฝังแบบเปียกพอดีรูพรุน ทำการวิเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้เทคนิค N_2 Physisorption, NH_3-TPD, ICP-OES, XRD และ FT-IR การทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยากระทำในช่วงอุณหภูมิ 120-450°C องค์ประกอบของก๊าซจำลองที่ใช้เป็นองค์ประกอบเดียวกับก๊าซไอเสียที่ได้จากโรงไฟฟ้าที่ใช้กังหันก๊าซที่มีปริมาณ O_2 และไอน้ำสูงถึง 15 vol.% จากผลการทดลองพบว่าการเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 เกิดจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของแอมโมเนีย การเกิด N_2O ของตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2, MoO_3/TiO_2 และ V_2O_5-MoO_3/TiO_2 เกิดจากปฏิกิริยาระหว่าง NO และ NH_3 ในขณะที่ตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 นั้น N_2O เกิดขึ้นจากทั้งปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 และ ปฏิกิริยาระหว่าง NO กับ NH_3 ส่วนการเกิด SO_3 นั้นไม่ตรวจพบ SO_3 ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

ภาควิชา	วิศวกรรมเคมี	ลายมือชื่อนิสิต	....
สาขาวิชา	วิศวกรรมเคมี	ลายมือชื่อ อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก	....
ปีการศึกษา	2556		

5570461021 : MAJOR CHEMICAL ENGINEERING
KEYWORDS: SELECTIVE CATALYTIC REDUCTION / VANADIUM-BASED SCR CATALYSTS / FORMATION OF N2O / FORMATION OF SO3

ANYARAT MANOWORAKUL: FORMATION OF N_2O AND SO_3 OVER VANADIUM-BASED SCR CATALYSTS DURING THE SELECTIVE CATALYTIC REDUCTION OF NO BY NH_3. ADVISOR: ASSOC. PROF. THARATHON MONGKHONSI, Ph.D., 83 pp.

This research studied the formation of N_2O and SO_3 over vanadium-based SCR catalysts during the selective catalytic reduction of NO by NH_3. The TiO_2 support was prepared by sol-gel method. The vanadium, tungsten and molybdenum were loaded by incipient wetness impregnation method. The catalysts were characterized by N_2 physisorption, NH_3-TPD, ICP-OES, XRD and FT-IR techniques. The catalytic activity testing was carried out in the temperature range 120-450°C. The simulated exhaust gas has the same composition as the exhaust gas of a gas turbine power plant having O_2 and H_2O content as high as 15 %vol. The results showed that N_2O formation of V_2O_5/TiO_2 catalyst during SCR causes from the oxidation of NH_3. The N_2O formation of WO_3/TiO_2, MoO_3/TiO_2, and V_2O_5-MoO_3/TiO_2 catalyst causes from the reaction between NO and NH_3, while N_2O formation of V_2O_5-WO_3/TiO_2 causes from both the oxidation of NH_3 and the reaction between NO and NH_3. The formation of SO_3 during the SCR does not occur.

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

Department:	Chemical Engineering	Student's Signature	....
Field of Study:	Chemical Engineering	Advisor's Signature	....
Academic Year:	2013		

กิตติกรรมประกาศ

วิทยานิพนธ์ฉบับนี้จะไม่สามารถสำเร็จลุล่วงไปได้ด้วยดีได้เลยถ้าหากไม่ได้รับความอนุเคราะห์และความช่วยเหลือที่ดีจากบุคคลต่างๆ ข้าพเจ้าจึงใคร่ขอขอบพระคุณ รศ.ดร.ธราธร มงคลศรี อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ ที่ได้กรุณาให้คำปรึกษาและคำแนะนำต่างๆที่เป็นประโยชน์ในการทำวิจัย และให้ข้อคิดเห็นในการแก้ไขปัญหาต่างๆในขณะทำการทดลอง ตลอดจนช่วยแก้ไขและเพิ่มเติมวิทยานิพนธ์ฉบับนี้ตั้งแต่ต้นจนสำเร็จสมบูรณ์ออกมาเป็นรูปเล่ม

ขอขอบพระคุณคณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์ ซึ่งประกอบด้วย ผศ.ดร. สุพจน์ พัฒนะศรี อ.ดร.ชุติมณฑน์ สถิรพิพัฒน์กุล และอ.ดร.เพียงพิศ วงศ์มณีนิล กรรมการสอบวิทยานิพนธ์ ที่ได้ให้ข้อคิดเห็นที่เป็นประโยชน์ต่อการทำให้วิทยานิพนธ์ฉบับนี้มีความสมบูรณ์ยิ่งขึ้น

ขอขอบพระคุณเจ้าหน้าที่ในภาควิชาวิศวกรรมเคมี ตลอดจนเพื่อน พี่และน้องๆ ทุกคนที่ได้ให้ความช่วยเหลือและกำลังใจในการทำวิจัย และทำให้วิทยานิพนธ์ฉบับนี้สำเร็จได้ด้วยดี

ขอกราบขอบพระคุณ บิดา มารดา ทุกคนในครอบครัว และท่านผู้มีพระคุณทุกท่าน ที่ได้ให้ความสนับสนุนและเป็นกำลังใจแก่ข้าพเจ้าในการศึกษามาโดยตลอด

ท้ายที่สุดขอขอบคุณบริษัท ปตท.จากัด (มหาชน) ที่สนับสนุนทุนในการทำวิจัย ทำให้งานวิจัยนี้สาเร็จลุล่วงไปด้วยดี

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

สารบัญ

หน้า

บทคัดย่อภาษาไทย....ง

บทคัดย่อภาษาอังกฤษ.... จ

กิตติกรรมประกาศ.... ฉ

สารบัญ.... ช

สารบัญรูปภาพ....ฎ

สารบัญตาราง.... ฐ

บทที่ 1 บทนำ 1

1.1 ความเป็นมาและความสำคัญของปัญหา 1

1.2 วัตถุประสงค์ของงานวิจัย.... 3

1.3 ขอบเขตงานวิจัย.... 3

บทที่ 2 ทฤษฎีและงานวิจัยที่เกี่ยวข้อง 5

2.1 ปฏิกิริยาการรีดิวซ์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบเลือกเกิดของ NO โดยใช้ NH_3.... 5

2.2 ปฏิกิริยาออกซิเดชันของแอมโมเนีย 6

2.3 ปฏิกิริยาออกซิเดชันของซัลเฟอร์ไดออกไซด์ 7

2.4 ตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ใช้ในระดับอุตสาหกรรม.... 8

2.5 ความแตกต่างของงานวิจัยที่ผ่านมากับงานวิจัยนี้.... 9

บทที่ 3 อุปกรณ์ เคมีภัณฑ์ และวิธีการดำเนินงานวิจัย.... 19

3.1 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา 19

3.1.1 สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา.... 19

3.1.2 การเตรียมตัวรองรับ (Support) [152].... 20

3.1.3 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว.... 20

3.1.4 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ 21

3.2 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา 21

3.2.1 การวัดพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา.... 22

3.2.2 การวัดปริมาณโลหะของตัวเร่งปฏิกิริยา 22

3.2.3 การวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา 22

3.2.4 การวัดโครงสร้างผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิค X-ray diffraction (XRD)....23

CHULALONGKORN UNIVERSITY

หน้า

3.2.5 การวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด 23
3.3 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา 23
3.3.1 สารเคมีที่ใช้ในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา 23
3.3.2 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา 24
บทที่ 4 ผลการทดลองและการวิจารณ์ผลการทดลอง 27
4.1 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา 27
4.1.1 การวัดปริมาณโลหะของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ด้วยเทคนิค Inductively-Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP-OES) 27
4.1.2 การวัดพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้การดูดซับด้วยก๊าซไนโตรเจน (Nitrogen Physisorption) 28
4.1.3 การวัดโครงสร้างผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิค X-Ray Diffraction (XRD) 29
4.1.4 การวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา 30
4.1.5 การตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด 32
4.2 การวิเคราะห์ประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา 35
4.2.1 การวิเคราะห์เสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา 35
4.2.2 การวิเคราะห์การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR 39
4.2.2.1 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ V_2O_5/TiO_2 39
4.2.2.2 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ WO_3/TiO_2 42
4.2.2.3 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ MoO_3/TiO_2 43
4.2.2.4 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ V_2O_5-WO_3/TiO_2 44
4.2.2.5 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ V_2O_5-MoO_3/TiO_2 46
4.2.3 การวิเคราะห์การเกิด SO_3 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 47
4.2.4 การเปรียบเทียบค่า %NO conversion และ %NO_x conversion ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ 47
บทที่ 5 สรุปผลการวิจัยและข้อเสนอแนะ 52
5.1 สรุปผลการวิจัย 52
5.2 ข้อเสนอแนะ 52

หน้า

รายการอ้างอิง 53
ภาคผนวก ก กราฟมาตรฐานของ Mass flow controller 69
ก.1 กราฟมาตรฐานของ Mass flow controller 69
ก.1.1 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ NH_3 70
ก.1.2 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ NO 71
ก.1.3 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ SO_2 72
ก.1.4 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ O_2 73
ก.1.5 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ N_2 74
ภาคผนวก ข การคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา 75
ข.1 สารเคมีสาหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้ในการทดลอง 75
ข.2 การคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว 75
ข.3 การคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ 76
ภาคผนวก ค ข้อมูลผลการทดลอง 77
ค.1 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา 77
ค.2 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ TiO_2 และตัวเร่งปฏิกิริยา 80
ประวัติผู้เขียนวิทยานิพนธ์ 83

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

สารบัญรูปภาพ

รูปที่ หน้า

2. 1 ลักษณะของกราฟประสิทธิภาพการกำจัด NO_x ในปฏิกิริยา SCR 7

2. 2 ตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ใช้งานในระดับอุตสาหกรรม 9

3. 1 ระบบการไหลของก๊าซในปฏิกิริยาการรีดิวซ์ของ NO โดยใช้ NH_3 24

4. 1 ผลการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค X-Ray Diffraction ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้........ 30

4. 2 การเปรียบเทียบผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวรองรับและตัวเร่งปฏิกิริยา 32

4. 3 ผลการวิเคราะห์หมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของตัวรองรับและตัวเร่งปฏิกิริยาออกไซด์เดี่ยว 33

4. 4 ผลการวิเคราะห์หมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของตัวเร่งปฏิกิริยาออกไซด์ผสม 34

4.5 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 36

4.6 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 36

4.7 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 37

4.8 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 37

4.9 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 38

4. 10 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR 40

4. 11 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 40

4. 12 ผลการเปรียบเทียบปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 ของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 41

4. 13 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR 42

4.14 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 42

4.15 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR 43

4.16 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 44

4.17 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR 45

4.18 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 45

4.19 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR 46

4.20 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 46

4.21 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ %NO_X conversion ของ V_2O_5/TiO_2 48

4.22 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ $\%NO_X$ conversion ของ WO_3/TiO_2.......... 49
4.23 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ $\%NO_X$ conversion ของ MoO_3/TiO_2........ 49
4.24 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ $\%NO_X$ conversion ของ V_2O_5-WO_3/TiO_2 50
4.25 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ $\%NO_X$ conversion ของ V_2O_5-MoO_3/TiO_2 50
ก. 1 กราฟมาตรฐานของ NH_3.. 70
ก. 2 กราฟมาตรฐานของ NO.. 71
ก. 3 กราฟมาตรฐานของ SO_2.. 72
ก. 4 กราฟมาตรฐานของ O_2.. 73
ก. 5 กราฟมาตรฐานของ N_2.. 74
ค. 1 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ TiO_2.. 80
ค. 2 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ V_2O_5/TiO_2.. 80
ค. 3 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ WO_3/TiO_2.. 81
ค. 4 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ MoO_3/TiO_2.. 81
ค. 5 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ V_2O_5-WO_3/TiO_2.. 82
ค. 6 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ V_2O_5-MoO_3/TiO_2.. 82

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

สารบัญตาราง

ตารางที่ หน้า

2. 1 การสืบค้นและรวบรวมข้อมูลของงานวิจัยที่เกี่ยวข้อง 10
3. 1 สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา 19
3. 2 สารตั้งต้นที่ใช้สำหรับทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา 23
3. 3 องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าที่ใช้ในปฏิกิริยาต่างๆ 25
3. 4 สภาพการทำงาน (Operating conditions) ของเครื่องก๊าซโครมาโทกราฟที่ใช้ในการวิเคราะห์ก๊าซขาออกจากเครื่องปฏิกรณ์ 26
4. 1 ปริมาณโลหะออกไซด์ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ด้วยเทคนิค ICP-OES 28
4. 2 พื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ที่เตรียมได้ 29
4. 3 ผลการคำนวณความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิวของตัวรองรับและตัวเร่งปฏิกิริยา 31
ก. 1 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้ว Bubble flow ของ NH_3 70
ก. 2 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ NO 71
ก. 3 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ SO_2 72
ก. 4 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ O_2 73
ก. 5 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ N_2 74
ค. 1 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 77
ค. 2 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 78
ค. 3 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 78
ค. 4 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 79
ค. 5 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 79

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

บทที่ 1

บทนำ

1.1 ความเป็นมาและความสำคัญของปัญหา

สารประกอบไนโตรเจนออกไซด์ หรือที่เรียกกันโดยทั่วไปว่า NO_x นั้นเป็นรูปทั่วไปที่ใช้เรียกก๊าซไนโตรเจนมอนอกไซด์ (NO) และก๊าซไนโตนเจนไดออกไซด์ (NO_2) รวมกัน ก๊าซทั้ง 2 ชนิดนี้ถูกผลิตขึ้นจากปฏิกิริยาระหว่างก๊าซไนโตรเจน (N_2) และก๊าซออกซิเจน (O_2) ซึ่งเป็นองค์ประกอบของอากาศที่ใช้ในการเผาไหม้ทำปฏิกิริยากันในระหว่างกระบวนการเผาไหม้ที่อุณหภูมิสูง แต่โดยทั่วไปสารประกอบไนโตรเจนออกไซด์ที่พบในก๊าซที่ได้จากการไหม้ส่วนใหญ่แล้วจะมีปริมาณของ NO มากที่สุด

สารประกอบไนโตรเจนออกไซด์เหล่านี้ไม่เพียงแต่จะก่อให้เกิดหมอกควันแบบเคมิเคิล (photochemical smog) แต่ยังสามารถรวมตัวกับน้ำแล้วทำให้เกิดฝนกรด (acid rain) อีกทั้งสารประกอบเหล่านี้ยังเป็นมลพิษที่เป็นอันตรายต่อระบบหายใจของสิ่งมีชีวิต จึงกล่าวได้ว่าก๊าซไนโตรเจนออกไซด์นั้นเป็นก๊าซที่ก่อให้เกิดปัญหาต่อสิ่งมีชีวิตและสิ่งแวดล้อม ดังนั้นจึงได้มีความพยายามมากมายในการคิดหาวิธีในการกำจัด NO ซึ่งวิธีการหนึ่งที่ในอุตสาหกรรมนิยมนำมาใช้ในการลดการปลดปล่อย NO ออกจากก๊าซไอเสียก่อนปล่อยออกสู่บรรยากาศ ได้แก่ การใช้ " ปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยา (Selective catalytic reduction หรือ SCR) "

ปฏิกิริยา SCR นี้จะให้ NO ทำปฏิกิริยากับก๊าซ NH_3 และ O_2 ในภาวะที่มีตัวเร่งปฏิกิริยาช่วยในช่วงอุณหภูมิที่เหมาะสม ซึ่งผลิตภัณฑ์ที่ได้จะออกมาในรูป N_2 และไอน้ำ ซึ่งข้อดีของปฏิกิริยานี้ คือ เป็นปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นได้ง่าย มีค่าใช้จ่ายในกระบวนการต่ำ ผลิตภัณฑ์ที่ได้จากปฏิกิริยานี้ไม่เป็นมลพิษต่อสิ่งแวดล้อม และที่สำคัญ คือ ปฏิกิริยานี้ให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO สูง

แต่อย่างไรก็ตามข้อเสียที่สำคัญอย่างหนึ่งของกระบวนการนี้ คือ ในระหว่างปฏิกิริยามักจะมีปฏิกิริยาข้างเคียงเกิดขึ้นด้วยเสมอ ซึ่งจากการศึกษาพบว่าเป็นผลมาจาก ธรรมชาติของตัวเร่งปฏิกิริยา, ปริมาณออกซิเจนในระบบ, อุณหภูมิระหว่างปฏิกิริยา หรือ การมีก๊าซที่มีฤทธิ์เป็นกรดในปล่อยทิ้ง โดยปกติแล้วปฏิกิริยาข้างเคียงที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR ประกอบไปด้วย ปฏิกิริยาออกซิเดชันของแอมโมเนีย (oxidation of NH_3) และปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 (oxidation of SO_2) [1-5]

โดยปฏิกิริยาออกซิเดชันของแอมโมเนียนั้น แอมโมเนียจะทำปฏิกิริยากับออกซิเจนที่อุณหภูมิสูงซึ่งจะทำให้ได้ผลิตภัณฑ์ข้างเคียงที่ไม่ต้องการออกมา ได้แก่ NO NO_2 และ N_2O ซึ่งก๊าซชนิดนี้เป็นหนึ่งในก๊าซเรือนกระจกที่สำคัญที่ก่อให้เกิดภาวะโลกร้อน [4, 5]

ส่วนปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 นั้นเป็นปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นเนื่องจากในก๊าซปล่อยทิ้งหรือก๊าซไอเสียมีก๊าซซัลเฟอร์ไดออกไซด์เป็นองค์ประกอบ โดยผลิตภัณฑ์ข้างเคียงที่เกิดขึ้นจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 นั้น คือ ก๊าซซัลเฟอร์ไตรออกไซด์ (SO_3) ซึ่งก๊าซนี้เมื่อทำปฏิกิริยากับน้ำที่เกิดขึ้นระหว่างปฏิกิริยา SCR หรือความชื้นที่มาจากก๊าซปล่อยทิ้งจะเกิดเป็นกรดซัลฟิวริกที่มีฤทธิ์ในการกัดกร่อนรุนแรง ยิ่งไปกว่านั้น SO_3 สามารถทำปฏิกิริยากับ NH_3 และน้ำได้เป็นสารประกอบแอมโมเนียมไบซัลเฟต (ammonium bisulfate) และสารประกอบแอมโมเนียมซัลเฟต (ammonium sulfate) ที่มีลักษณะเป็นของ ซึ่งจะไปปิดรูพรุนของตัวเร่งปฏิกิริยาและอุดตันอุปกรณ์อื่นๆในกระบวนการปลายทาง (downstream process) [2, 3]

นอกจากนี้ปฏิกิริยาข้างเคียงที่เกิดขึ้นเหล่านี้ยังใช้แอมโมเนียเป็นสารตั้งต้นในการเกิดปฏิกิริยาด้วย จึงทำให้ปริมาณแอมโมเนียที่ใช้ในการกำจัด NO ลดลง ส่งผลให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO ลดลงด้วย

ดังนั้นตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO สูง อาจไม่ใช่ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ดีก็ได้ ถ้าหากตัวเร่งปฏิกิริยานั้นก่อให้เกิดปฏิกิริยาข้างเคียงที่เราไม่ต้องการขึ้นด้วย

ที่ผ่านมามีงานวิจัยมากมายที่ทำการศึกษาปฏิกิริยา SCR ซึ่งโดยส่วนใหญ่แล้วจะมุ่งเน้นไปที่การพัฒนาตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO ที่สูง มีเพียงงานวิจัยส่วนน้อยเท่านั้นที่เลือกศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียงที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR อีกทั้งงานวิจัยเหล่านั้นเลือกใช้องค์ประกอบของก๊าซไอเสียที่ได้จากการเผาไหม้เชื้อเพลิงในเตาเผาเพื่อผลิตไอน้ำโดยที่ก๊าซดังกล่าวมีความเข้มข้นออกซิเจนและความชื้นต่ำ กล่าวคือไม่เกิน 3 vol.% แต่เนื่องจากในปัจจุบันการผลิตกระแสไฟฟ้ามีการใช้ก๊าซธรรมชาติเป็นเชื้อเพลิงในการผลิต ซึ่งส่วนใหญ่นิยมใช้วัฏจักรร่วม (combined cycle) โดยในการผลิตนั้นจะใช้การอัดอากาศให้มีความดันสูงแล้วป้อนเข้าไปเผาไหม้กับก๊าซธรรมชาติให้กลายเป็นก๊าซร้อนที่มีอุณหภูมิและความดันสูง ด้วยคุณลักษณะเชื้อเพลิงก๊าซธรรมชาติที่มีสัดส่วนไฮโดรเจนในเชื้อเพลิงสูงและรูปแบบการทำงานของกังหันก๊าซ ทำให้ก๊าซไอเสียที่ออกจากระบบวัฏจักรร่วมเป็นก๊าซที่มีความชื้นสูง (ไม่ต่ำกว่า 10 vol.%) และมีออกซิเจนหลงเหลือสูงด้วย (ไม่ต่ำกว่า 10 vol.%) [6, 7] จึงทำให้มีโอกาสในการเกิดปฏิกิริยาข้างเคียงดังที่กล่าวข้างต้นสูงกว่าในก๊าซไอเสียที่ได้จากการเผาไหม้เชื้อเพลิงในเตาเผาเพื่อผลิตไอน้ำ ดังนั้นในงานวิจัยนี้จึงเลือกศึกษาการเกิด การเกิด N_2O และ SO_3 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR โดยใช้องค์ประกอบของก๊าซที่ได้

จากไอเสียที่ได้จากการเผาไหม้ก๊าซธรรมชาติ ซึ่งตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้ในงานวิจัยนี้จะมี V_2O_5 เป็นองค์ประกอบหลักร่วมกับออกไซด์ของโลหะตัวอื่น โดยเลือกเอาออกไซด์ของโลหะทังสเตน (W) และโมลิบดินัม (Mo) มาทำการศึกษา เนื่องจากออกไซด์ของโลหะเหล่านั้นมีการนำมาใช้เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้ในการกำจัด NO ในระดับอุตสาหกรรม โดยโลหะ WO_3 และ MoO_3 นั้นเป็นตัวสนับสนุนในการเกิดปฏิกิริยา (Promoter) ของปฏิกิริยาการรีดิวซ์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบเลือกเกิดของ NO_x โดยใช้ NH_3

1.2 วัตถุประสงค์ของงานวิจัย

เพื่อศึกษาการเกิด N_2O และ SO_3 บนตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ประเภทวานาเดียม โดยเลือกเอาออกไซด์ของโลหะวานาเดียม ทังสเตนและโมลิบดินัม มาทำการศึกษา เนื่องจากออกไซด์ของโลหะเหล่านั้นมีการนำมาใช้เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้ในการกำจัด NO ในระดับอุตสาหกรรม

1.3 ขอบเขตงานวิจัย

ศึกษาคุณลักษณะและประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้นั้นจะมี V_2O_5 เป็นองค์ประกอบหลักร่วมกับออกไซด์ของโลหะโลหะทังสเตนและโมลิบดินัมในปฏิกิริยาการรีดิวซ์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบเลือกเกิดของ NO โดยใช้ NH_3 ในสภาวะที่มี SO_2 และน้ำ โดยปริมาณโลหะที่เติมบนตัวเร่งปฏิกิริยานั้นจะใช้ปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.% ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ตัวอื่นนั้นจะเตรียมโดยให้ปริมาณโลหะชนิดนั้นเท่ากับปริมาณโลหะวานาเดียมในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ที่มีปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.% นั่นคือ จำนวนโมลของโลหะแต่ละชนิดบนตัวเร่งปฏิกิริยาแต่ละตัวเท่ากัน ใช้ไททาเนีย (TiO_2) เป็นตัวรองรับโดยเตรียมด้วยวิธีโซล-เจล และเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยวิธีการเคลือบฝังด้วยเทคนิคเปียกพอดีพื้นผิว (incipient wetness impregnation) สภาวะของการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยานั้นจะใช้องค์ประกอบของก๊าซที่ใช้ในการทดลองที่เป็นข้อมูลจากโรงงานผลิตไฟฟ้าด้วยก๊าซธรรมชาติประกอบด้วย NO 120 ppm NH_3 120 ppm SO_2 30 ppm O_2 15 vol.% และน้ำ 15 vol.% และทำสมดุลด้วย N_2 เพื่อให้อัตราการไหลรวมเท่ากับ 200 ml/min ทำการทดลองที่อุณหภูมิตั้งแต่ 120-450 °C ทำการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมขึ้น โดยทำการวัดประสิทธิภาพในการกำจัด NO และวัดเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมขึ้น วัดการเกิด N_2O ในระหว่างการปฏิกิริยา SCR วัดการเกิด NO และ N_2O ในระหว่างการปฏิกิริยาแอมโมเนียออกซิเดชัน และวัดการเกิด SO_3 ในระหว่างการปฏิกิริยาซัลเฟอร์ไดออกไซด์ออกซิเดชัน

ส่วนการวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งหมดกระทำโดยใช้เทคนิค X-ray diffraction (XRD) เพื่อวัดเฟสของตัวเร่งปฏิกิริยา เทคนิคInductively coupled plasma-optical emission spectroscopy (ICP-OES) เพื่อวัดปริมาณโลหะบนตัวเร่งปฏิกิริยา เทคนิค Brunauer Emmett and Teller (BET) เพื่อวัดพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา เทคนิค NH_3 Temperature programmed desorption (NH_3-TPD) เพื่อวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา และใช้เทคนิค Fourier transform infrared spectroscopy (FT-IR) เพื่อตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา

ในวิทยานิพนธ์เล่มนี้สามารถแบ่งเนื้อหาเป็นบทต่างๆ ดังนี้

บทที่ 2 ทฤษฎีและงานวิจัยที่เกี่ยวข้อง
บทที่ 3 อุปกรณ์ เคมีภัณฑ์ และวิธีการดำเนินงานวิจัย
บทที่ 4 ผลการทดลองและการวิจารณ์การทดลอง
บทที่ 5 สรุปผลการทดลอง

ข้อมูลรายละเอียดเกี่ยวกับการสอบเทียบอุปกรณ์วัด ตัวอย่างการคำนวณการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา และตารางผลการทดลองรวบรวมไว้ในภาคผนวกท้ายเล่ม

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

บทที่ 2

ทฤษฎีและงานวิจัยที่เกี่ยวข้อง

ในบทนี้จะกล่าวถึงทฤษฎีและงานวิจัยที่เกี่ยวข้องกับปฏิกิริยาการรีดิวซ์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบเลือกเกิดของ NO โดยใช้ NH_3 (selective catalytic reduction of NO by NH_3) ปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 (oxidation of NH_3) ปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 (oxidation of SO_2) ตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ใช้ในระดับอุตสาหกรรม และการสืบค้นและรวบรวมงานวิจัยที่ผ่านมาเกี่ยวข้องกับปฏิกิริยาการรีดิวซ์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบเลือกเกิดของ NO

2.1 ปฏิกิริยาการรีดิวซ์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบเลือกเกิดของ NO โดยใช้ NH_3

สารประกอบไนโตรเจนออกไซด์ (NO_x) นั้นประกอบด้วยก๊าซไนโตรเจนมอนอกไซด์ (NO) ก๊าซไนโตรเจนไดออกไซด์ (NO_2) และก๊าซไนตรัสออกไซด์ (N_2O) รวมกัน เป็นที่ทราบกันดีอยู่แล้วว่าก๊าซเหล่านี้เป็นก๊าซที่ก่อให้เกิดมลพิษทางอากาศ (air pollutant) ต่างๆมากมาย เช่น ฝนกรด ปรากฏการณ์หมอกควันแบบเคมิเคิล (photochemical smog) ผลเสียที่เกิดขึ้นจากก๊าซเหล่านี้ต่างทำลายสภาพแวดล้อม สิ่งมีชีวิต และยังเป็นอันตรายต่อสุขภาพของมนุษย์ โดยแหล่งกำเนิดของก๊าซเหล่านี้มักเกิดขึ้นในระหว่างการเผาไหม้เชื้อเพลิงฟอสซิล (เช่น ผลิตภัณฑ์ปิโตรเลียมต่างๆ ถ่านหิน ก๊าซธรรมชาติ เป็นต้น) โดยปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นนั้นจะเป็นปฏิกิริยาระหว่างก๊าซ N_2 และ O_2 ซึ่งเป็นองค์ประกอบของอากาศที่ใช้ในการเผาไหม้ทำปฏิกิริยากันในระหว่างกระบวนการเผาไหม้ที่อุณหภูมิสูง ดังแสดงในสมการที่ 2.1 ถึง สมการที่ 2.3

$$N_2 + O_2 \leftrightarrow 2NO \qquad \text{(สมการ 2.1)}$$

$$NO + 1/2O_2 \leftrightarrow NO_2 \qquad \text{(สมการ 2.2)}$$

$$2NO \leftrightarrow N_2O + 1/2O_2 \qquad \text{(สมการ 2.3)}$$

เทคนิคที่ใช้ในการลด NO_x ในก๊าซไอเสียที่ได้จากกระบวนการเผาไหม้ก่อนปล่อยออกสู่บรรยากาศ มีมากมายแต่เทคนิคที่เป็นที่นิยมในอุตสาหกรรมได้แก่ เทคนิคที่ใช้ "ปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดด้วยตัวเร่งปฏิกิริยา (Selective catalytic reduction หรือ SCR)" โดยปฏิกิริยานี้จะให้ NO ทำปฏิกิริยากับก๊าซ NH_3 บนตัวเร่งปฏิกิริยาในภาวะที่มี O_2 ในช่วงอุณหภูมิที่เหมาะสม ซึ่งผลิตภัณฑ์ที่ได้จะออกมาในรูป N_2 และไอน้ำ ปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นเป็นไปดังแสดงในสมการที่ 2.4 และ 2.5

$$4NH_3 + 4NO + O_2 \longrightarrow 4N_2 + 6H_2O \qquad \text{(สมการ 2.4)}$$

$$2NO_2 + 4NH_3 + O_2 \longrightarrow 3N_2 + 6H_2O \qquad \text{(สมการ 2.5)}$$

ปฏิกิริยานี้มีข้อดีหลายประการ คือ กระบวนการนี้เกิดขึ้นได้ง่าย มีค่าใช้จ่ายในกระบวนการต่ำ และที่สำคัญ คือ มีประสิทธิภาพในการกำจัด NO สูง แต่อย่างไรก็ตามข้อเสียอย่างหนึ่งของกระบวนการนี้ คือ ในระหว่างปฏิกิริยามักจะเกิดปฏิกิริยาข้างเคียงขึ้นด้วยเสมอ ปฏิกิริยาข้างเคียงที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR ประกอบไปด้วย ปฏิกิริยาออกซิเดชันของแอมโมเนีย (oxidation of NH_3) และปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 (oxidation of SO_2) ปฏิกิริยาข้างเคียงที่เกิดขึ้นเหล่านี้นอกจากจะใช้แอมโมเนียเป็นสารตั้งต้นในการเกิดปฏิกิริยาด้วยจนทำให้ปริมาณแอมโมเนียที่ใช้ในการกำจัด NO ลดลง ส่งผลให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO ลดลงแล้ว ยังก่อให้เกิดผลิตภัณฑ์ข้างเคียงที่เราไม่ต้องการเกิดขึ้นด้วย รายละเอียดของปฏิกิริยาข้างเคียงจะอธิบายในหัวข้อถัดไป

2.2 ปฏิกิริยาออกซิเดชันของแอมโมเนีย

ปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 เป็นปฏิกิริยาข้างเคียงที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR ปฏิกิริยานี้มักจะเกิดที่อุณหภูมิมากกว่า 350 °C โดยไม่จำเป็นต้องมีตัวเร่งปฏิกิริยา ปฏิกิริยานี้ NH_3 จะถูกออกซิไดซ์ด้วย O_2 ไปเป็น N_2 เป็นหลัก ดังแสดงในสมการที่ 2.6

$$4NH_3 + 3O_2 \longrightarrow 2N_2 + 6H_2O \qquad \text{(สมการ 2.6)}$$

แต่อย่างไรก็ตามมักจะมีการเกิดผลิตภัณฑ์ข้างเคียงที่ไม่ต้องการอื่นๆเกิดขึ้น ได้แก่ NO NO_2 และ N_2O ดังแสดงในสมการที่ 2.7-2.9

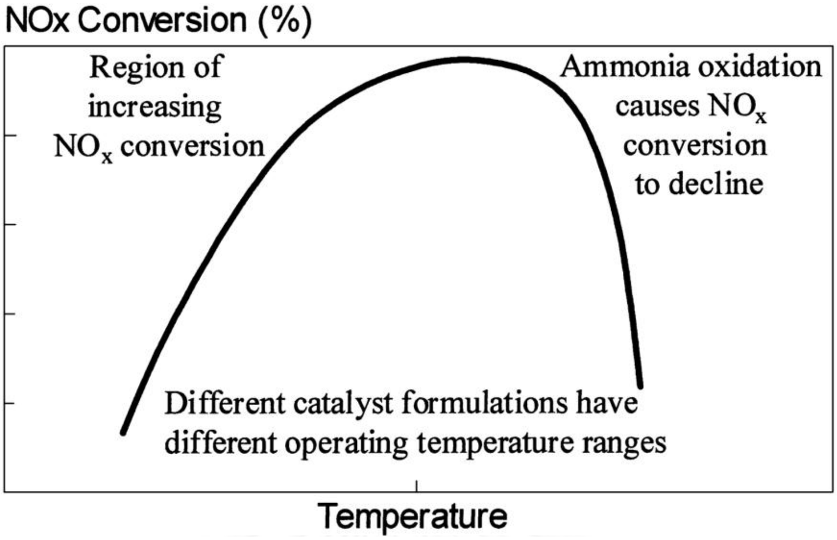
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

$$4NH_3 + 5O_2 \longrightarrow 4NO + 6H_2O \qquad \text{(สมการ 2.7)}$$

$$4NH_3 + 7O_2 \longrightarrow 4NO_2 + 6H_2O \qquad \text{(สมการ 2.8)}$$

$$2NH_3 + 2O_2 \longrightarrow N_2O + 3H_2O \qquad \text{(สมการ 2.9)}$$

เนื่องจากปฏิกิริยาข้างเคียงนี้เกิดขึ้นไปพร้อมกับปฏิกิริยา SCR ที่อุณหภูมิสูง ทำให้ปริมาณของ NH_3 ส่วนหนึ่งถูกใช้ไป ดังนั้นที่อุณหภูมิสูงประสิทธิภาพในการกำจัด NO_x ที่ได้จึงลดลง ดังแสดงให้เห็นได้ในรูปที่ 2.1



รูปที่ 2. 1 ลักษณะของกราฟประสิทธิภาพการกำจัด NO_x ในปฏิกิริยา SCR [8]

2.3 ปฏิกิริยาออกซิเดชันของซัลเฟอร์ไดออกไซด์

ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ถ้าก๊าซไอเสียมีองค์ประกอบก๊าซ SO_2 รวมอยู่ด้วยนั้นถูกป้อนเข้าไปในกระบวนการ ก๊าซ SO_2 ที่มีอยู่จะถูกออกซิไดซ์เป็น SO_3 ดังแสดงในสมการที่ 2.10

$$2SO_2 + O_2 \longrightarrow 2SO_3 \quad \text{(สมการ 2.10)}$$

เมื่อก๊าซ SO_3 ที่เกิดขึ้นทำปฏิกิริยากับไอน้ำที่เกิดขึ้นจากปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 หรือไอน้ำที่ติดมากับก๊าซไอเสียแล้วจะเกิดเป็นกรดซัลฟิวริก (H_2SO_4) ซึ่งเป็นกรดแก่ มีฤทธิ์ในการกัดกร่อนสูง จึงเป็นอันตรายต่อระบบท่อต่างๆที่เป็นโลหะที่มีอยู่ในกระบวนการบำบัดก๊าซไอเสีย ปฏิกิริยาเป็นไปดังแสดงในสมการที่ 2.11

$$SO_3 + H_2O \longrightarrow H_2SO_4 \quad \text{(สมการ 2.11)}$$

และเมื่อ H_2SO_4 ที่เกิดขึ้นทำปฏิกิริยากับ NH_3 ที่เป็นสารตั้งต้นในปฏิกิริยา SCR จะทำให้เกิดสารประกอบแอมโมเนียมซัลเฟต ($(NH4)_2SO_4$) และสารประกอบแอมโมเนียมไบซัลเฟต (NH_4HSO_4) ซึ่งเป็นของแข็ง ปฏิกิริยาเป็นไปดังแสดงในสมการที่ 2.12-2.13

$$NH_3 + SO_3 + H_2O \longrightarrow NH_4HSO_4 \quad \text{(สมการ 2.12)}$$

$$2NH_3 + SO_3 + H_2O \longrightarrow (NH4)_2SO_4 \quad \text{(สมการ 2.13)}$$

สารประกอบทั้งสองชนิดนี้จะไปอุดตันรูพรุนของตัวเร่งปฏิกิริยาและไปอุดตันเครื่องแลกเปลี่ยนความร้อน (Heat Exchanger) อุปกรณ์หรือระบบท่อในกระบวนการบำบัดก๊าซไอเสียได้

2.4 ตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ใช้ในระดับอุตสาหกรรม

ตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ใช้กันในปัจจุบันมีหลายชนิด แต่ในระดับอุตสาหกรรมตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีการนำมาใช้งานส่วนใหญ่แล้วจะเป็นตัวเร่งปฏิกิริยาผสมระหว่างโลหะวานาเดียมออกไซด์ (V_2O_5) กับโลหะทังสเตนออกไซด์ (WO_3) หรือโมลิบดินัมออกไซด์ (MoO_3) ที่ถูกรองรับด้วยตัวรองรับไททาเนียเฟสอะนาเทส (anatase TiO_2) โดย V_2O_5 จะถูกใช้เป็นองค์ประกอบที่ว่องไวต่อปฏิกิริยา (active component) เนื่องจากให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO_x ที่สูงกว่าโลหะออกไซด์ตัวอื่นๆ ส่วน WO_3 และ MoO_3 นั้นจะใช้เป็นตัวสนับสนุน (promoter) ในปฏิกิริยา SCR ทั้งนี้เพราะเดิมทีตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 (anatase) นั้นไม่เสถียรเนื่องจากในทางเทอร์โมไดนามิกส์นั้นตัวรองรับไททาเนียที่เป็นเฟสอะนาเทสนั้นเป็นโครงสร้างกึ่งเสถียร (metastable) และมีแนวโน้มที่จะเปลี่ยนเฟสไปเป็นเฟส รูไทล์ (rutile) ซึ่งเป็นโครงสร้างที่เสถียรกว่าได้เมื่ออุณหภูมิและความดันสูงขึ้น (การเปลี่ยนแปลงจากอะนาเทสไปเป็นเฟสรูไทล์นี้มักถูกทำให้เกิดขึ้นโดย V_2O_5) ดังนั้นจึงทำให้เกิดการสูญเสียพื้นที่ผิวและเกิดการหลอมรวมของเฟสอะนาเทส (anatase sintering) แต่ทั้งการเติม WO_3 และ MoO_3 นั้น มีข้อดี คือ

- WO_3 และ MoO_3 มีส่วนช่วยให้การลดลงของพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาและการเปลี่ยนเฟสไปเป็นรูไทล์ของไททาเนียลดน้อยลง
- WO_3 และ MoO_3 นั้นเป็นตัวยับยั้ง (inhibitor) ไม่ให้เกิดปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2
- การเติม WO_3 ลงไปบนตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 นั้น ช่วยให้ความว่องไว และการเลือกเกิดของตัวเร่งปฏิกิริยาสูงขึ้น เนื่องจากไปช่วยเพิ่มความแรงของกรดบนตัวเร่งปฏิกิริยาให้สูงขึ้น [1]

ดังนั้นจึงนิยมนำ WO_3 และ MoO_3 มาใช้ตัวสนับสนุน (promoter) ในปฏิกิริยา SCR โดยในที่นี้ขอยกตัวอย่างของตัวเร่งปฏิกิริยา SCR SINOx® ที่ถูกผลิตขึ้นโดยบริษัท Johnson Matthey ซึ่งใช้ TiO_2 V_2O_5 WO_3 และ MoO_3 เป็นองค์ประกอบหลักในการผลิตตัวเร่งปฏิกิริยา โดยรูปแบบของตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้ในอุตสาหกรรมนั้นจะผลิตออกมาในรูปแบบของ monolith และแบบแผ่น

CHULALONGKORN UNIVERSITY

รูปที่ 2. 2 ตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ใช้งานในระดับอุตสาหกรรม

(รูปจาก http://www.jmsec.com/cm/Products/SCR-Catalysts.html)

(ก) ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบ monolith (Monolith Catalyst) และ

(ข) ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบแผ่น (Plate Catalyst)

2.5 ความแตกต่างของงานวิจัยที่ผ่านมากับงานวิจัยนี้

ในงานวิจัยที่ผ่านมาซึ่งผู้วิจัยได้ทำการย้อนสืบค้นจากบทความทางวิชาการต่างๆ ตั้งแต่ปี ค.ศ. 2008-2013 และทำการเก็บรวบรวมข้อมูลตัวเร่งปฏิกิริยา ช่วงอุณหภูมิที่ใช้และองค์ประกอบของก๊าซขาเข้าที่ใช้ในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา และการศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียงของปฏิกิริยา SCR จะพบว่างานวิจัยส่วนใหญ่มุ่งเน้นที่จะทำการศึกษาและพัฒนาตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ที่ให้ค่าประสิทธิภาพในการกำจัด NO_x ที่สูง มีเพียงงานวิจัยส่วนน้อยเท่านั้นที่เลือกศึกษาการเกิด N_2O และปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 อีกทั้งองค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์นั้นเป็นองค์ประกอบของก๊าซไอเสียที่ได้จากเตาเผาหรือหม้อไอน้ำ (boiler) ซึ่งจะเห็นว่ามีปริมาณของ O_2 และ/หรือปริมาณไอน้ำต่ำ ผลของการรวบรวมข้อมูลแสดงไว้ในตารางที่ 2.1 แต่สำหรับในงานวิจัยนี้องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์ที่ใช้จะเป็นก๊าซไอเสียจากการผลิตไฟฟ้าด้วยวัฏจักรร่วม โดยข้อมูลองค์ประกอบแก๊สทิ้งนั้นเป็นข้อมูลจริงจากโรงงานผลิตไฟฟ้าด้วยวัฏจักรร่วมที่มี O_2 มากเกินพอถึง 15 vol.% และมีปริมาณไอน้ำสูงถึง 15 vol.% ซึ่งการมีปริมาณ O_2 มากเช่นนี้อาจจะเป็นการเพิ่มโอกาสในการเกิดปฏิกิริยาข้างเคียงดังที่ได้กล่าวไปข้างต้น ดังนี้ในงานวิจัยนี้จึงเลือกศึกษาประสิทธิภาพในการกำจัด NO_x ของตัวเร่งปฏิกิริยา และการเกิดปฏิกิริยาข้างเคียงในระหว่างปฏิกิริยา SCR ในภาวะที่องค์ประกอบของก๊าซจริงที่มีปริมาณ O_2 และไอน้ำสูง

ตารางที่ 2. 1 การสืบค้นและรวบรวมข้อมูลของงานวิจัยที่เกี่ยวข้อง

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
2013												
Asima et.al. [9]	Cu/ZSM-5, Fe/ZSM-5, Cu/Fe/ZSM-5, Fe/Cu/ZSM-5	600 - 160	500 ppm	500 ppm	10 vol.%	6 vol.%	1 ppm	-	-	He	-	-
Ayari et.al. [10]	Cr-ZSM-5	50 - 450	0.2%	0.2%	3%	-	-	-	-	He	-	✓
Benat et.al. [11]	Cu-zeolite monoliths	140 - 380	750 ppm	750 ppm	7.5%	-	-	-	-	Ar	-	✓
Bo et.al. [12]	Co_3O_4 nanocrystals	75 - 375	400 ppm	600 ppm	2%	-	-	-	-	N_2	-	-
Boqiong et.al. [13]	Fe-Mn oxide/TiO_2	80 - 180	1000 ppm	1000 ppm	0-6%	-	-	-	-	N_2	-	-
Caixia et.al. [14]	CeO_2-WO_3	150 - 500	500 ppm	500 ppm	3 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Chizhong et.al. [15]	V_2O_5-WO_3/TiO_2	100 - 500	500 ppm_v	500 ppm_v	3 vol.%	5.5 vol.%	-	-	-	N_2	-	-
Fudong et.al. [16]	Fe_2O_3/TiO_2, $FeTiO_x$-TiCl4, $FeTiO_x$-$Ti(SO_4)_2$	120 - 400	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Fudong et.al. [17]	$FeVO_4$/TiO_2	50 - 400	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	5 vol.%	200 ppm*	-	-	N_2	-	-
Hai-feng et.al. [18]	Monolithic Cr–V/TiO_2/ cordierite	80 - 300	500 ppm	500 ppm	5%	-	0.01 %*	-	-	N_2	-	-
Huazhen et.al. [19]	Ge, Mn-doped CeO_2–WO_3	75 - 350	1000 ppm	1000 ppm	2%	-	100 ppm*	-	-	N_2	-	-
Hyoung-Lim et.al. [20]	MoO_3–V_2O_5/Al_2O_3	25 - 500	500 ppm	500 ppm	10%	-	-	-	-	He	-	-
Isidro et.al. [21]	V_2O_5-WO_3/TiO_2	90 - 500	500 ppm	500 ppm	2 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Kyung et.al. [22]	V_2O_5-Ce/TiO_2, Sb-V_2O_5-Ce/TiO_2	180 และ 500	800 ppm	800 ppm	3 vol.%	6 vol.%	800 ppm	-	-	N_2	-	✓
Panahi et.al. [23]	nanostructure M-Cu/ZSM-5 (M: Cr, Mn, Co and Fe)	100 - 400	1000 ppm	1000 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	Ar	-	-

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
Pranit et.al. [24]	Fe-ZSM-5, Cu-chabazite และ combined Fe- and Cu-zeolite monolithic catalysts	150 - 550	500 ppm	500 ppm	5%	2%	-	-	-	-	-	✓
Rafal et.al. [25]	V_xSiBEA zoelite	300 - 500	1000 ppm	1000 ppm	3.5 vol.%	-	-	-	-	He	-	✓
Rui-tang et.al. [26]	CeO_2/Al_2O_3	200 - 400	600 ppm	600 ppm	5%	-	-	-	-	Ar	-	-
Ruiyang et.al. [27]	CeO_2-Nb_2O_5	150 - 450	500 ppm	500 ppm	5%	4.5% *	-	-	-	N_2	-	-
Shijian et.al. [28]	CeO_2	200 - 500	500 ppm	500 ppm	2%	-	400 ppm*	-	-	N_2	-	-
Thirupathi et.al. [29]	V/CeO_2,V/TiO_2, V/Al_2O_3,V/ZrO_2, V/CeO_2- ZrO_2, V/TiO_2- Al_2O_3, V/CeO_2- CeO_2	140 - 360	400 ppm	400 ppm	2 vol.%	-	-	-	-	He	-	-
Tingting et.al. [30]	Ca doped MnO_x/TiO_2	60 - 200	650 ppm	650 ppm	3%	-	-	-	-	N_2	-	-
Wei et.al. [31]	S-doped V_2O_5- $/TiO_2$	120 - 280	500 ppm	500 ppm	5%	-	-	-	6-20%*	N_2	-	-
Xiaoliang et.al. [32]	Ce_4SnO_x, $Ce_4Sn_2O_x$, $Ce_4Sn_4O_x$, $Ce_2Sn_4O_x$, $CeSn_4O_x$, CeO_2,SnO_2	100 - 400	500 ppm	500 ppm	5 vol.% *	5 vol.% *	100 ppm	-	-	N_2	-	-
Xiaopeng et.al. [33]	Mn/Ce-ZrO_x, Mn-Co/Ce-ZrO_x, Mn/Co-Ce--ZrO_X	100 - 220	600 ppm	600 ppm	6 vol.%	3 vol.% *	100/ 500 ppm	-	-	N_2	-	-
Xie et.al. [34]	Mn-Ce/CNTs	80 - 180	500 ppm	500 ppm	5%	-	-	-	-	N_2	-	-
Yanni et.al. [35]	Hierarchically macro-mesoporous Mn/TiO_2	50 - 200	1000 ppm	1000 ppm	3 vol.%	-	30 ppm	-	-	N_2	-	-
Yanxia et.al. [36]	MnO_x/CNTs	80 - 300	0.08 %	0.08 %	5%	-	-	-	-	Ar	-	-
Yue et.al. [37]	CeO_2–WO_3/TiO_2-SiO_2	150 - 450	500 ppm	500 ppm	3%	-	500 ppm*	-	-	N_2	-	-
Zhaoxia et.al. [38]	Fe–Cu–Ox/ CNTs–TiO_2	150 - 400	550 ppm	550 ppm	5%	-	200 ppm	-	-	Ar	-	-
Zhichun et.al. [39]	NiO-CeO_2-ZrO_2	200 - 450	500 ppm	500 ppm	5%	-	-	-	-	N_2	-	-
Zhigang et.al. [40]	V_2O_5/AC	120 - 200	500 ppm	500 ppm	5%	0-6%	1000 ppm*	-	-	N_2	-	-

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
Zhiming et.al. [41]	MnO_x-CeO_2	100 - 250	500 ppm	500 ppm	5%	5%*	50 ppm*	-	-	He	-	-
2012												
Asghar et.al. [42]	$Fe_aCr_{1-a}TiO_x$	50 - 400	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	5 vol.%	-	1000 ppm	5 vol.%	N_2	-	-
Asima et.al. [43]	Mn/FER, Mn/Mont10, Mn/ETS-10, Mn/TiO_2	160 - 400	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	6 vol.%	-	-	-	He	-	-
Bin et.al. [44]	$Ti_{0.9}Ce_{0.05}V_{0.05}O_{2-\delta}$ nanocomposites	0 - 450	600 ppm	600 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Boningari et.al. [45]	Mn-Ni/TiO_2	160 - 240	400 ppm	400 ppm	2 vol.%	-	-	-	-	He	-	-
Haidi et.al. [46]	MnO_x-CeO_2/ WO_3-ZrO_2	100 - 550	0.1%	0.1%	5%	10%*	0.01 %*	-	-	Ar	-	-
Huazhen et.al. [47]	SnO_2-MnO_x-CeO_2	25 - 300	1000 ppm	1000 ppm	2%	12%*	100 ppm	-	-	N_2	-	-
Jeong et.al. [48]	MnO_x/ $Ce_{0.65}Zr_{0.35}O_2$	50 - 200	1000 ppm	1000 ppm	<5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Jihene et.al. [49]	Copper loaded hydroxyapatite (Cu-Hap)	100 - 500	400 ppm	400 ppm	8%	-	-	-	-	He	-	-
Junlin et.al. [50]	MnO_x/TiO_2	80 - 180	720 ppm	800 ppm	3%	-	-	-	-	N_2	-	-
Lei et.al. [51]	Fe/HBEA	150 - 550	500 ppm	500 ppm	5%	5%*	-	-	-	N_2	-	-
Lei et.al. [52]	Cu/SAPO-34	180 - 550	200 ppm	200 ppm	8%	10%	-	-	10%	N_2	-	-
Lishan et.al. [53]	MnO_x/MWCNTs	60 - 300	1000 ppm	1000 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	Ar	-	-
Marzia et.al. [54]	Rare earth (La, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd, Tb, Dy และ Er) vanadates supported on TiO_2-WO_3-SiO_2	250 - 450	200 ppm	200 ppm	20000 ppm	10%	-	-	-	N_2	-	-
Ochońska et.al. [55]	Copper exchanged ultrastable zeolite Y	40 - 500	2000 ppm	2000 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	He	-	-
Padmanabh et.al. [56]	Mn/TiO_2	175	2%	3.99 %	4%	-	-	-	-	He	-	✓
Patrick et.al. [57]	V_2O_5-WO_3/TiO_2	150 - 450	1000 ppm	1000 ppm	2%	-	-	-	-	He	-	-
Pingping et.al. [58]	Hollandite manganese oxide (HMO) และ β-MnO_2	100 - 300	500 ppm	500 ppm	3%	0-10%	-	-	-	N_2	-	-

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (^{o}C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
Pio et.al. [59]	Commercial V_2O_5-WO_3/TiO_2	180, 200, 250	500 ppm	500 ppm	10%	10 vol.%	-	-	-	N_2	-	✓
Pranit et.al. [60]	Combined Fe- and Cu-zeolite monoliths	150 - 550	500 ppm	500 ppm	5%	2%	-	-	-	Ar	-	-
Qian et.al. [61]	CuO_X-CNTs, CuO_X-Ac และ CuO_X-graphite	100 - 250	700 ppm	700 ppm	6%	-	100-200 ppm*	-	-	Ar	-	-
Sang et.al. [62]	MnO_X/CeO_2-TiO_2	120 - 250	200 ppm	200 ppm	8%	8%	100 ppm*	-	-	N_2	-	-
Sang et.al. [63]	V/TiO_2, W/TiO_2	150 - 550	400 ppm	420 ppm	8%	6%	-	-	-	Ar	-	-
Shijian et.al. [64]	$(Fe_3\text{-}xTi_X)_{1-\delta}O_4$	150 - 400	500 ppm	500 ppm	2%	10%	100 ppm	-	-	N_2	-	-
Shule et.al. [65]	F-doped V_2O_5–WO_3/TiO_2	120 - 240	500 ppm	500 ppm	5%	-	300 ppm	-	-	N_2	-	-
Shule et.al. [66]	Y-doped MnO_X/TiO_2	80 - 200	600 ppm	600 ppm	3%	-	-	-	-	N_2	-	-
Stanciulesc et.al. [67]	MnCBV, Mn/Al_2O_3-TiO_2, Fe/MnCBV, (Mn+Fe)/CBV	75 - 450	500 ppm_v	500 ppm_v	5%	5%	-	-	-	He	-	✓
Thirupathi et.al. [68]	V/ZrO_2, V-WO_X/ZrO_2, V-MoO_X/ZrO_2	140 - 260	400 ppm	400 ppm	2 vol.%	-	-	-	-	He	-	-
Wenpo et.al. [69]	$Ce_{0.2}TiO_X$, $Ce_{0.2}M_{0.1}TiO_X$ (M=W, Mo, Fe, Co, Cu), $Ce_{0.2}W_a\ TiO_X$ (a=W/Ti molar ratio)	150 - 450	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	5 vol.%	100 ppm	-	5 vol.%	N_2	-	-
Xiongbo et.al. [70]	Ce/nanoparticle, Ce/nanotube, Ce/nanowire, Ce/nanorod, Ce/fragment	150 - 550	600 ppm	600 ppm	3.5%	-	-	-	-	N_2	-	-
Yue et.al. [71]	CeO_2-WO_3, Mn-doped CeO_2-WO_3	100 - 350	0.05 %	0.05 %	3%	-	-	-	-	N_2	-	-
Yue et.al. [72]	Ca-doped MnO_X/TiO_2	60 - 200	1000 ppm	1000 ppm	3 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Zhaoxia et.al. [73]	Fe-Cu-O_X/ CNTs-TiO_2	100 - 300	550 ppm	550 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Zhichun et.al. [74]	$Ce_{0.75}Zr_{0.25}O_2$, $Ce_{0.75}Zr_{0.25}O_2$-PO_4^{3-}	200 - 500	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Ziran et.al. [75]	Nb_2O_5-CeO_2/ WO_X-TiO_2	150 - 500	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	✓

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
2011												
Anju et.al. [76]	Zirconia modified V_2O_5/WO_3-TiO_2	150 - 550	500 ppm	500 ppm	5%	-	-	-	-	N_2	-	✓
Asima et.al. [77]	Cu/HZSM-5, Cu/NaZSM-5, Cu/NaHZSM-5	160 - 400	200 ppm	200 ppm	10 vol.%	6 vol.%	1 ppm	-	-	He	-	-
Boningari et.al. [78]	Mn-M'/TiO_2 (M'= Cr, Fe, Co, NI, Cu, Zn, Ce, Zr)	160 - 240	400 ppm	400 ppm	2 vol.%	-	-	-	-	He	-	-
Chao et.al. [79]	Manganese oxides	100 - 300	500 ppm	500 ppm	3%	-	-	-	-	N_2	-	-
Dustin W. et.al. [80]	Copper-exchanged small-pore zeolites	150 - 500	500 ppm	500 ppm	10%	-	-	-	-	N_2	-	-
Fudong et.al. [81]	Iron titanate catalyst ($FeTiO_X$)	175 - 370	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Guangying et.al. [82]	Fe-Ce-Mn/ZSM-5	100 - 500	1000 ppm	1000 ppm	5%	-	-	-	-	Ar	-	-
Haiqiang et.al. [83]	Ce/TNTs, Ce/P25, Ce/SCT	200 - 470	600 ppm	600 ppm	3.5%	-	-	-	-	N_2	-	-
Hassib et.al. [84]	Copper loaded Hydroxyapatite (Cu-Hap)	100 - 500	400 ppm	400 ppm	8%	2.5%	-	-	-	He	-	✓
Jin-Yong et.al. [85]	Fe/zeolite	200 - 550	600 ppm	600 ppm	8%	2.4%	-	-	5%	N_2	-	✓
Liang et.al. [86]	Na, K, Mg, Ca doped on nano V_2O_5–WO_3/TiO_2	0 - 500	500 ppm	500 ppm	3 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	✓
Lili et.al. [87]	CeO_2/ACFP, CeO_2/ACFN	90 - 270	1000 ppm	1000 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	Ar	-	-
Pranit et.al. [88]	iron zeolite monolith	100 - 500	500 ppm	500 ppm	2-5%	2-5%	-	-	-	Ar	-	✓
Qiulin et.al. [89]	MnO_X-CeO_2 monolith	100 - 450	1000 ppm	1000 ppm	5%	10%	100 ppm*	-	-	Ar	-	-
Qiulin et.al. [90]	MnO_X/CeO_2–ZrO_2–Al_2O_3	20 - 300	1000 ppm	1000 ppm	5%	10%*	100 ppm*	-	-	Ar	-	-
Shijian et.al. [91]	$(Fe_3\text{-}xTi_X)_{1-\delta}O_4$	80 - 200	500 ppm	500 ppm	2 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Steffen et.al. [92]	vanadia–anatase nanoparticle	200 - 450	1000 ppm	1100 ppm	3%	-	-	-	-	He	-	-
Xiang et.al. [93]	V_2O_5/AC	50 - 300	450 ppm	500 ppm	5%	3%	-	-	-	Ar	-	-

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
Xiaoyu et.al. [94]	Mn–Ce/Ti-AC, Mn–Ce/Ti-CNTs	50 - 250	0.025 vol.%	0.025 vol.%	6.5 vol.%	-	0-630 ppm	-	-	N_2	-	-
Xiongbo et.al. [95]	Ce/TCNTs	70 - 470	600 ppm	600 ppm	3.5%	-	-	-	-	N_2	-	✓
2010												
Fudong et.al. [96]	Iron titanate (Fe_xTiO_y)	150 - 400	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Fudong et.al. [97]	$Fe_{0.75}Mn_{0.25}TiO_x$	250	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	10 vol.% *	100 ppm*	-	-	N_2	-	-
Haidi et.al. [98]	CrO_x/CeO_2 supported on porous silica sphere	80, 100, 125, 150	200 ppm	200 ppm	15 vol.%	-	-	1 vol.%	-	N_2	-	-
Hong et.al. [99]	3wt.%V_2O_5-7wt.%WO_3-TiO_2	50 - 450	900 ppm	1000 ppm	3%	-	-	-	-	N_2	-	-
Ja H. et.al. [100]	Cu-SSZ-13, Cu-beta, Cu-ZSM-5	150 - 550	350 ppm	350 ppm	14%	2%	-	-	-	N_2	-	✓
Jian et.al. [101]	MnO_2-TiO_2, MnO_2-CeO_2-TiO_2, MnO_2-Fe_2O_3-CeO_2-TiO_2	100 - 400	600 ppm	NH_3/ NO = 0.8	2 vol.%	-	300/ 900 ppm	-	-	-	-	✓
Jie et.al. [102]	$M_xO_y/MoO_3/CeO_2$ (M=Ni, Cu, Fe)	200 - 350	700 ppm	700 ppm	4%	-	-	-	-	N_2	-	-
Jin S. et.al. [103]	MnO_x/rice straw char, MnO_x/sludge char	50 - 250	1000 ppm	1000 ppm	5%	-	-	-	-	N_2	-	-
Joseph et.al. [104]	Cu-zeolite, Fe-zeolite	0 - 1000	350 ppm	350 ppm	14%	4.6%	-	-	5%	N_2	-	-
Kern et.al. [105]	Fe-zeolite	250 - 450	1000 ppm_v	1001 ppm_v	8 vol.%	5 vol.%	-	1000 ppm_v	5 vol.%	N_2	-	-
Klimczak et.al.[106]	V_2O_5-WO_3/TiO_2	200 - 450	1000 ppm_v	5 vol.%	8 vol.%	5 vol.%	-	1000 ppm_v	5 vol.%	N_2	-	✓
Liang et.al.[107]	Series of W-doped CeO_2/TiO_2	150 - 500	500 ppm	500 ppm	3 vol.%	10 vol.% *	100 ppm*	-	-	N_2	-	-
Marina V. et.al. [108]	Substituted Sr-ferrites $Sr_{1-x}Ce_xMn_{6-y}W_yFe_4Al_2O_{19}$	100 - 600	350 ppm	350 ppm	14 vol.%	4.5 vol.%	-	-	-	He	-	-
Massimo et.al.[109]	Cu-zeolite, Fe-zeolite	50 - 550	0-500 ppm	0-500 ppm	2-8 vol.%	3-10 vol.%	-	-	-	-	-	✓
Moon H. et.al.[110]	$CuCl_2/TiO_2$, $CuCl_2$-V_2O_5/TiO_2	150 - 450	500 ppm	500 ppm	3%	-	-	-	-	N_2	-	-

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
Qichun et.al. [111]	Mn/USY, Mn–Fe/USY	100 - 350	500 ppm	500 ppm	3%	10%*	100 Ppm*	-	-	N_2	-	-
Qingya et.al. [112]	CuO/cordierite -Al_2O_3, Sulfated CuO/cordierite -Al_2O_3	300 - 500	500 ppm	500 ppm	5.5%	2.5%	-	-	-	Ar	-	-
Ruiben et.al. [113]	Mn–Ce/TiO_2	100 - 200	800 ppm	800 ppm	3%	3 vol.%	100 ppm	-	-	N_2	-	-
Sandro et.al. [114]	H-ZSM-5, Fe-ZSM-5	200 - 650	1000 ppm	1000 ppm	10%	5%	-	-	-	N_2	-	-
Shuli et.al. [115]	V_2O_5/CNT	200 - 250	450 ppm	500 ppm	5 vol.%	-	400 ppm*	-	-	Ar	-	-
Tingting et.al. [116]	Fresh และ sulfated CeO_2	200 - 570	1000 ppm	1000 ppm	3 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Xiang et.al. [117]	Ce-Cu-Ti, Ce-Ti, Cu-Ti complex oxides	150 - 450	1000 ppm	1000 ppm	5 vol.%	-	-	-	-	N_2	-	-
Xiang et.al. [118]	CeO_2/TiO_2 sol-gel, Impregnation, coprecipitation method	150 - 500	500/ 1000 ppm	500/ 1000 ppm	3 vol.%	-	200/ 500 ppm	-	-	N_2	-	-
Xingfu et.al. [119]	β-MnO_2, α-MnO_2	150 - 400	680 ppm	680 ppm	3%	-	-	-	-	He	-	✓
Young J. et.al. [120]	Mn/TiO_2, Mn/Fe/TiO_2	150 - 375	500 ppm	500 ppm	5%	10%	-	-	-	N_2	-	-
Zhichun et.al. [121]	Nickel และ sulfated co-modified CeO_2-ZrO_2	100 - 500	500 ppm	500 ppm	14%	10%	-	-	14%	N_2	-	-
Zhichun et.al. [122]	CuO_x/ WO_x–ZrO_2	100 - 500	500 ppm	500 ppm	5%	-	-	-	-	N_2	-	✓
Zhihang et.al. [123]	CrO_X, MnO_X, CrO_X-MnO_x, Cr(0.5)-MnO_X	80 - 160	1000 ppm	1000 ppm	3%	-	-	-	-	N_2/ He	-	-
2009												
Arfaoui et.al. [124]	V-TiM-PILC, V-STiM-PILC	0 - 450	2000 ppm	2000 ppm	3%	-	-	-	-	He	-	-
Boyano et.al.[125]	V_2O_5/AC, V_2O_5/Al_2O_3	150 - 350	1000 ppm	1000 ppm	10%	-	-	-	-	Ar	-	-

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
Chongheng et.al. [126]	Fe/Beta (i.e., by incipient wetness impregnation zeolite)	150 - 500	1000 ppm	1000 ppm	2%	-	-	-	-	He	-	-
Daniela et.al. [127]	Cobalt-containing sulphated catalyst	150 - 270	700 ppm	700 ppm	36000 ppm	-	-	-	-	He	-	✓
Fudong et.al. [128]	$Fe_{0.9}M_{0.1}TiO_X$ (M= La, Ce, Pr, In, Mn) และ $Fe_aM_{1-a}TiO_X$	150 - 400	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	-	-	1000 Ppm*	5 vol.%	N_2	-	-
Hanna et.al. [129]	Cu-ZSM-5	150 - 500	500 ppm	500 ppm	8%	5%	-	-	-	Ar	-	✓
Maria et.al. [130]	MnCe, MnNbCe, MnWCe, MnZrCe, MnFeCe	150 - 450	1000 ppm	1000 ppm	5%	-	-	-	-	N_2	-	✓
Marina V. et.al. [131]	Mn(Fe)-substituted Sr(La) aluminates	100 - 600	350 ppm	350 ppm	14 vol.%	4.5 vol.%	-	-	-	He	-	-
Masaoki et.al. [132]	Fe/ZSM-5	250 และ 300	0.12 %	0.12 %	5%	5%	-	-	10%	N_2	-	-
Peter et.al. [133]	Fe/HBEA	150 - 500	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	5 vol.%	-	1000 ppm	5 vol.%	N_2	-	-
Peter et.al. [134]	Fe/HBEA zeolite	150 - 500	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	0/10 vol.%	-	-	-	N_2	-	-
Qingya et.al. [135]	V_2O_5-monolith cordierite-based CuO/Al_2O_3	400	500 ppm	500 ppm	5.5 vol.%	1960 ppm	2.5%	-	-	Ar	-	-
Yaqin et.al. [136]	V_2O_5/ACF (activated carbonfiber)	120 - 200	600 ppm	600 ppm	5%	-	300 ppm*	-	-	Ar	-	-
Yuesong et.al. [137]	$CeO_2/Al_2O_3/$ ATS	200 - 400	600 ppm	600 ppm	5%	-	-	-	-	N_2	-	-
Zhongbiao et.al. [138]	Mn/TiO_2, ceria modified Mn/TiO_2	150	1000 ppm	1000 ppm	3%	3 vol.%	100 ppm*	-	-	N_2	-	-

คณะผู้วิจัย	ตัวเร่งปฏิกิริยา	อุณหภูมิ (°C)	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าเครื่องปฏิกรณ์								การศึกษาปฏิกิริยาข้างเคียง	
			NO/ NO_x	NH_3	O_2	H_2O	SO_2	CO	CO_2	ก๊าซทำสมดุล	ออกซิเดชันของ SO_2	การเกิด N_2O
2008												
Boyano et.al. [139]	Vanadium-loaded carbon-based monolith	150, 250, 350	1000 ppm_v	1000 ppm_v	10%	-	-	-	-	Ar	-	-
Boyano et.al. [140]	Vanadium-loaded carbon-based monolith	50 - 400	1000 ppm_v	1000 ppm_v	10 vol.%	-	-	-	-	Ar	-	-
G’alvez et.al. [141]	V_2O_5/AC	150	1000 ppm_v	1500 ppm_v	3.5 vol.%	-	-	-	-	Ar	-	-
Grzybek et.al. [142]	Nitrogen-promoted active carbon	80 - 300	800 ppm	800 ppm	3%	-	-	-	-	He	-	✓
Grzybek et.al. [143]	Mn-containing nitrogen-promoted active carbon	80 - 300	800 ppm	800 ppm	3%	-	-	-	-	He	-	✓
Ha H. et.al. [144]	MO_X-V_2O_5/TiO_2 (M=Se, Sb, Cu, S, B, Bi, Pb, P)	150 - 400	800 ppm	800 ppm	3 vol.%	6 vol.%	500 ppm	-	-	N_2	-	-
Jihui et.al. [145]	Mn-Fe/MPS (mesoporous silica)	100 - 180	1000 ppm	1200 ppm	3%	10%*	250 ppm	-	-	N_2	-	-
Mohamed et.al. [146]	Cu or Mn supported on lab-scale carbon-based honeycomb monoliths	10 - 500	3000 ppm	6000 ppm	2 vol.%	-	-	-	-	He/ N_2	-	-
Oliver et.al. [147]	V_2O_5/WO_3-TiO_2	200 - 450	1000 ppm	0-2000 ppm	10%	5%	-	-	-	N_2	-	✓
Wenqing et.al. [148]	Ce/TiO_2	150 - 450	500 ppm	500 ppm	5 vol.%	3/10 vol.% *	100/ 180 ppm*	-	-	N_2	-	-
Xianlong et.al. [149]	V_2O_5/AC, K-V/AC	100 - 250	600 ppm	600 ppm	3.4 vol.%	2.6 vol.%	-	-	-	Ar	-	-
Zhongbiao et.al. [150]	M(y)-Mn(z)/TiO_2 (M= Fe, Cu, Ni, Cr)	80 - 180	1000 ppm	1000 ppm	3%	-	-	-	-	N_2	-	-
Zhongbiao et.al. [151]	Cerium modified MnO_X/TiO_2	40 - 220	1000 ppm	1000 ppm	3%	3 vol.%	-	-	-	N_2	-	-

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

บทที่ 3

อุปกรณ์ เคมีภัณฑ์ และวิธีการดำเนินงานวิจัย

ในบทนี้จะกล่าวถึงอุปกรณ์ เคมีภัณฑ์ และวิธีการดำเนินงานวิจัย โดยแบ่งเนื้อหาออกเป็น 3 ส่วน ได้แก่

3.1 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

3.2 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา

3.3 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

3.1 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

3.1.1 สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยวและตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ แสดงในตารางที่ 3.1

ตารางที่ 3. 1 สารเคมีที่ใช้ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

สารเคมี	บริษัทผู้ผลิต
Titanium (IV) isopropoxide, 97%	Aldrich
Nitric acid 65%	Aldrich
Oxalic acid hydrate	Fluka
Ammonium metavanadate (NH_4VO_3), 99.99%	Aldrich
Ammonium metatungstate hydrate ($(NH_4)_6H_2W_{12}O_4$. XH_2O), 99.99%	Aldrich
Ammonium molybdate tetrahydrate ($(NH_4)_6Mo_7O_{24}.4H_2O$), ≥99.0%	Aldrich

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

3.1.2 การเตรียมตัวรองรับ (Support) [152]

ไททาเนียมไดออกไซด์ (TiO_2) ที่ใช้เป็นตัวรองรับในงานวิจัยนี้ สามารถเตรียมได้จากวิธีโซลเจล (Solgel) ซึ่งในการเตรียมนั้นเริ่มต้นจากการนำน้ำที่ผ่านการกำจัดไอออนแล้ว (Deionized water) และ HNO_3 เข้มข้น 65% มาใส่ในบีกเกอร์แล้วทำการกวนให้เข้ากันโดยเครื่องกวนสาร (Stirrer) หลังจากนั้นทำการเติมสาร $Ti(OCH_2CH_2CH_3)_4$ อย่างช้าๆ จนหมด แล้วตั้งกวนสารทิ้งไว้จนกระทั่งได้สารเป็นเนื้อเดียวกันที่เรียกว่า “โซล” หลังจากนั้นนำโซลที่ได้ไปไดอะไลต์ (Dialyzed) ด้วยเซลลูโลสเมมเบรน (Cellulose membrane) จนกระทั่งมีค่า pH ประมาณ 3.5 จากนั้นนำโซลที่ได้ไปอบให้แห้งที่อุณหภูมิ 110 °C จนแห้งเป็นของแข็ง หลังจากนั้นนำของแข็งที่ได้มาบดให้ละเอียด แล้วนำไปเผาในอากาศ (Calcine) ที่อุณหภูมิ 350 °C ด้วยอัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10 °C/min เป็นเวลา 4 ชั่วโมง

3.1.3 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว

ตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยวที่ใช้ในงานวิจัยนี้ ประกอบด้วย V_2O_5/TiO_2, WO_3/TiO_2 และ MoO_3/TiO_2 ซึ่งเตรียมได้ด้วยวิธีการเคลือบฝังด้วยเทคนิคเปียกพอดีพื้นผิว (incipient wetness impregnation) โดยในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 นั้นจะใช้ปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.% ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยวตัวอื่นนั้นจะเตรียมโดยให้ปริมาณโลหะชนิดนั้นเท่ากับปริมาณโลหะวานาเดียมในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ที่มีปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.% นั่นคือ จำนวนโมลของโลหะแต่ละชนิดบนตัวเร่งปฏิกิริยาแต่ละตัวเท่ากัน

ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 นั้น จะใช้ NH_4VO_3 เป็นสารตั้งต้น (Precursor) โดยเริ่มต้นจากการนำ Oxalic acid hydrate มาละลายในน้ำจนได้สารละลายกรดออกซาลิก แล้วนำ NH_4VO_3 มาละลายในสารละลายกรดออกซาลิก จนได้สารละลายสีเหลืองใส หลังจากนั้นนำสารละลายที่ได้มาหยดลงบน TiO_2 ด้วยเทคนิคเปียกพอดีพื้นผิว แล้วนำไปอบให้แห้งที่อุณหภูมิ 110 °C เป็นเวลา 12 ชั่วโมง หลังจากนั้นนำไปเผาในอากาศ (Calcine) ที่อุณหภูมิ 500 °C ด้วยอัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10 °C/min เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ส่วนการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 และ MoO_3/TiO_2 นั้นกระทำเช่นเดียวกับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ต่างกันที่ตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 และ MoO_3/TiO_2 นั้นจะใช้สารละลายของ $(NH_4)_6H_2W_{12}O_4.XH_2O$ และ $(NH_4)_6Mo_7O_{24}.4H_2O$ เป็นสารตั้งต้น ตามลำดับ

3.1.4 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ

ตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบที่ใช้ในงานวิจัยนี้ประกอบด้วย V_2O_5-WO_3/TiO_2, และ V_2O_5-MoO_3/TiO_2 ซึ่งเตรียมได้ด้วยวิธีการเคลือบฝังด้วยเทคนิคเปียกพอดีพื้นผิว โดยในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมนั้นขั้นตอนแรกจะเริ่มต้นจากการเติมโลหะวานาเดียม โดยคิดในรูป V_2O_5 เท่ากับ 3.0 wt.% โดยใช้ NH_4VO_3 ละลายในสารละลายกรดออกซาลิก จนได้สารละลายสีเหลืองใส หลังจากนั้นนำสารละลายที่ได้มาหยดลงบน TiO_2 ด้วยเทคนิคเปียกพอดีพื้นผิว แล้วนำไปอบให้แห้งที่อุณหภูมิ 110 °C เป็นเวลา 12 ชั่วโมง หลังจากนั้นนำไปเผาในอากาศ (Calcine) ที่ อุณหภูมิ 500 °C ด้วยอัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10 °C/min เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ซึ่งจะได้ TiO_2 ที่ผ่านการเติมโลหะ V แล้ว

หลังจากนั้นในขั้นตอนที่ 2 จะทำการเติมโลหะออกไซด์ตัวที่สอง เพื่อให้ได้ตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ โดยตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 นั้นจะนำ TiO_2 ที่ผ่านการเติมโลหะ V ที่เตรียมไว้ในขั้นตอนที่แล้วมาเติมโลหะทังสเตนออกไซด์ลงไป (โดยให้ปริมาณโลหะทังสเตนเท่ากับปริมาณโลหะวานาเดียมในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ที่มีปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.%) โดยใช้สารละลายของ$(NH_4)_6H_2W_{12}O_{40}.xH_2O$ เติมลงไปบน TiO_2 ที่ผ่านการเติมโลหะ V ด้วยวิธีการเคลือบฝังด้วยเทคนิคเปียกพอดีพื้นผิว หลังจากนั้นนำไปอบแห้งอุณหภูมิ 110 °C เป็นเวลา 12 ชั่วโมง แล้วนำไปเผาในอากาศ (Calcine) ที่อุณหภูมิ 500 °C ด้วยอัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10 °C/min เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 นั้นทำเช่นเดียวกับตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 แต่ใช้สารละลายของ $(NH_4)_6Mo_7O_{24}.4H_2O$ เติมลงไปบน TiO_2 ที่ผ่านการเติมโลหะ V แทน

3.2 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา

สำหรับการวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยวและตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบที่เตรียมได้นั้น ในงานวิจัยนี้เลือกทำการวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยกันทั้งสิ้น 5 คุณลักษณะ ซึ่งได้แก่

- การวัดพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้การดูดซับด้วยก๊าซไนโตรเจน (Nitrogen Physisorption)
- การวัดปริมาณโลหะของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ด้วยเทคนิค Inductively-Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP-OES)
- การวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา

- การวัดโครงสร้างผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิค X-Ray Diffraction (XRD)
- การตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด (FT-IR)

3.2.1 การวัดพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา

ในการวัดพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยานั้นใช้เทคนิค Single point BET ซึ่งทำได้โดยใช้เครื่อง Micromeritics ChemiSorb 2750 (Pulse Chemisorption system) โดยนำตัวอย่างตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ประมาณ 0.1 g มาทำการไล่ก๊าซและน้ำออกจากพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาที่อุณหภูมิ 200°C เป็นเวลา 4 ชั่วโมง หลังจากนั้นทำการวัดพื้นที่ผิวโดยวิธีการดูดซับและการคายซับของก๊าซไนโตรเจนที่อุณหภูมิ -196°C โดยใช้ไนโตรเจนเหลว

3.2.2 การวัดปริมาณโลหะของตัวเร่งปฏิกิริยา

สำหรับการวัดปริมาณโลหะของตัวเร่งปฏิกิริยา สามารถทำได้โดยเครื่อง ICP-OES Perkin Elmer Optima 7000DV ของสถาบันเหล็กและเหล็กกล้าแห่งประเทศไทย ทำการเตรียมตัวอย่างในการวิเคราะห์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาแบบผงละลายในกรดไฮโดรฟลูออริก (HF)

3.2.3 การวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา

สำหรับการวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาทำได้โดยใช้เครื่อง Micromeritics ChemiSorb 2750 (Pulse Chemisorption system) ซึ่งการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาจะถูกควบคุมและบันทึกข้อมูลด้วยโปรแกรม ChemiSoft V.1

การวิเคราะห์ใช้ปริมาณตัวเร่งปฏิกิริยาแบบผง 0.1 g ใส่ในหลอดรูปตัวยูที่มี Quartz wool รองรับอยู่ด้านล่าง ใช้ก๊าซฮีเลียมที่มีอัตราการไหล 25 ml/min ในการไล่น้ำและก๊าซอื่นๆ ออกจากผิวตัวเร่งปฏิกิริยาที่อุณหภูมิ 500°C เป็นเวลา 1 ชั่วโมง หลังจากนั้นทำการลดอุณหภูมิลงมาที่ 100°C แล้วทำการฉีดก๊าซ NH_3 ปริมาตร 0.5 ml เข้าไปเรื่อยๆเพื่อให้ตัวเร่งปฏิกิริยาดูดซับ NH_3 ที่อุณหภูมิ 100°C จนอิ่มตัว หลังจากนั้นทำการไล่ NH_3 ออกจากผิวตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้ก๊าซฮีเลียม ซึ่ง NH_3 ที่คายซับออกจากผิวตัวเร่งปฏิกิริยาจะถูกตรวจวัดโดยตัวตรวจวัดแบบ Thermal Conductivity Detector (TCD)

3.2.4 การวัดโครงสร้างผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิค X-ray diffraction (XRD)

สำหรับการวัดโครงสร้างผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิค X-Ray Diffraction (XRD) ทำได้โดยใช้เครื่อง BRUKER D8 ADVANCE X-ray diffractometer ที่เชื่อมต่อกับคอมพิวเตอร์ที่มีโปรแกรม Diffract ZT version 3.3 โดยในการวิเคราะห์จะใช้ CuK_{α} radiation (ความยาวคลื่น λ= 0.154056 nm) วัดในช่วง 2θ ตั้งแต่10 ถึง 80°

3.2.5 การวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด

ในการตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาโดยเครื่อง FT-IR Nicolet model Impact 6700 ใช้ Infrared spectra ระหว่าง 400 ถึง 4000 cm^{-1} จำนวนรอบในการสแกนคือ 100 วิเคราะห์ในภาพแบบ ATR

3.3 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

3.3.1 สารเคมีที่ใช้ในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา

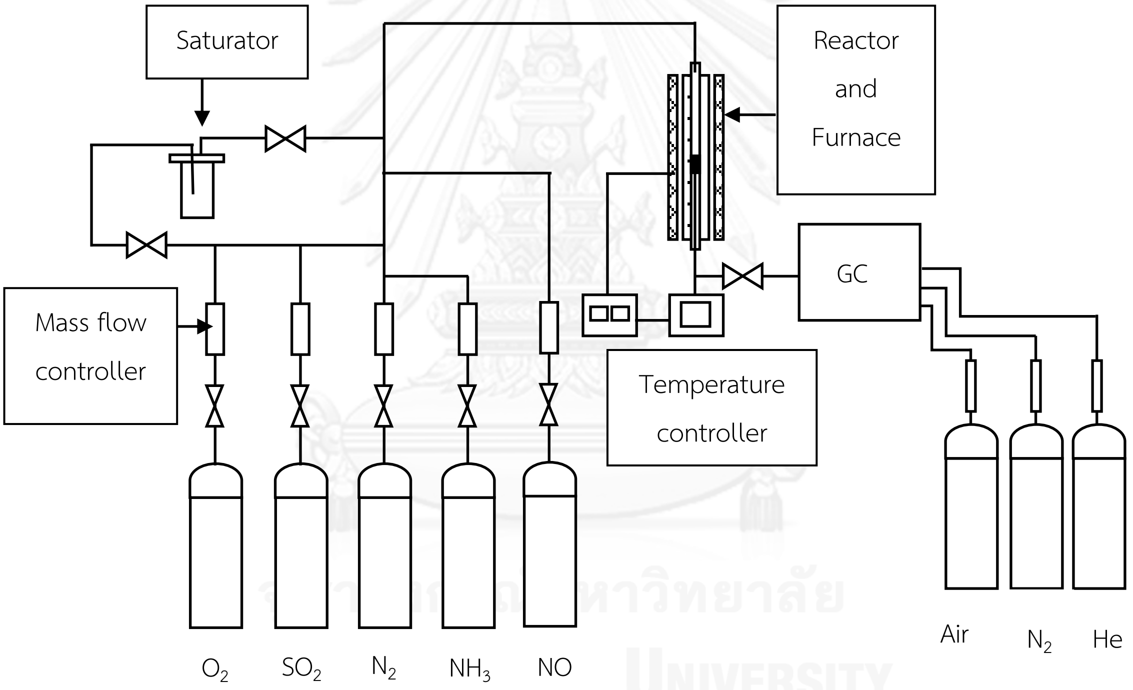
สารตั้งต้นที่ใช้สำหรับทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาจะแสดงตามตารางที่ 3.2

ตารางที่ 3. 2 สารตั้งต้นที่ใช้สำหรับทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา

ก๊าซ	บริษัทผู้ผลิต
He (99.999%)	Linde
Air Zero (Zero grade)	Linde
NH_3 (10000 ppm ใน N_2)	BOC Scientific
SO_2 (10000 ppm ใน N_2)	BOC Scientific
NO (10000 ppm ใน N_2)	BOC Scientific
N_2 (99.999%)	Linde
O_2 (≥99.9%)	Linde

3.3.2 การทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

ในการทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว (V_2O_5/TiO_2, WO_3/TiO_2, MoO_3/TiO_2) และตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ (V_2O_5-WO_3/TiO_2, V_2O_5-MoO_3/TiO_2) นั้นจะใช้เครื่องปฏิกรณ์เป็นแบบเบดนิ่ง (Fixed-bed) ซึ่งทำจากท่อเหล็กกล้าไร้สนิม (SS304) ขนาด 3/8” เส้นผ่านศูนย์กลางภายใน 7 mm ทำการทดลองที่ความดันบรรยากาศ อุณหภูมิของเตาเผานั้นควบคุมด้วยตัวควบคุมแบบดิจิตอล องค์ประกอบของก๊าซที่ใช้ในการทดลองคือ NO 120 ppm NH_3 120 ppm SO_2 30 ppm O_2 1 5 vol.% ไอน้ำ 15 vol.% และทำสมดุลโดยใช้ก๊าซไนโตรเจนเพื่อทำให้อัตราการไหลรวมของระบบเท่ากับ 200 ml/min ระบบการไหลดังแสดงในภาพที่ 3.1



รูปที่ 3. 1 ระบบการไหลของก๊าซในปฏิกิริยาการรีดิวซ์ของ NO โดยใช้ NH_3

ขั้นตอนในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยานั้น เริ่มต้นจากการบรรจุ Quartz wool ประมาณ 0.05 g เข้าไปในเครื่องปฏิกรณ์ หลังจากนั้นทำการบรรจุตัวเร่งปฏิกิริยาในเครื่องปฏิกรณ์ 0.1 g แล้วบรรจุ Quartz wool ประกบทับไปบนตัวเร่งปฏิกิริยาอีกประมาณ 0.05 g จากนั้นนำเครื่องปฏิกรณ์ที่บรรจุตัวเร่งปฏิกิริยาแล้วไปติดตั้งเข้าไปในระบบการไหล เปิดก๊าซที่ใช้ในการทดลองทั้งหมดเข้าระบบ ซึ่งก๊าซแต่ละตัวจะมีการควบคุมอัตราการไหลด้วยควบคุมอัตราการไหล (Mass flow controller) อุณหภูมิที่ใช้ในการทดสอบความว่องไวของตัวเร่งปฏิกิริยา คือ 120-450 °C

โดยในการทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา ตัวเร่งปฏิกิริยาแต่ละตัวจะถูกนำมาทำการทดสอบดังนี้

การทดสอบที่ 1 : ทดสอบในระหว่างปฏิกิริยา SCR ในสภาวะที่มีทั้งไอน้ำและ SO_2 โดยวัดปริมาณ NO ในก๊าซขาออก

การทดสอบที่ 2 : ทดสอบในระหว่างปฏิกิริยา SCR ในสภาวะที่มีทั้งไอน้ำและ SO_2 โดยวัดปริมาณ NO ในก๊าซขาออก ซึ่งจะใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ผ่านการใช้งานมาจากการทดสอบที่ 1 ในการทดสอบที่ 2 นี้กระทำเพื่อเป็นการทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่นำมาทดสอบ

ถ้าหากผลการทดสอบที่ 1 และ 2 แสดงให้เห็นว่าตัวเร่งปฏิกิริยามีเสถียรภาพ ก็จะใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาดังกล่าวที่บรรจุอยู่ในเครื่องปฏิกรณ์อยู่แล้วทำการทดสอบที่ 3-6 ต่อไปโดยไม่ต้องเปลี่ยนตัวเร่งปฏิกิริยา

การทดสอบที่ 3 : ทดสอบการเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยารีดิวซ์แบบเลือกเกิดของ NO ด้วย NH_3 ในสภาวะที่มีทั้งไอน้ำและ SO_2 โดยวัดปริมาณ N_2O ในก๊าซขาออก

การทดสอบที่ 4 : ทดสอบในระหว่างปฏิกิริยา NH_3 oxidation ไปเป็น NO ในสภาวะที่มีทั้งไอน้ำและ SO_2 แต่ไม่มี NO โดยวัดปริมาณ NO ในก๊าซขาออก

การทดสอบที่ 5 : ทดสอบในระหว่างปฏิกิริยา NH_3 oxidation ไปเป็น N_2O ในสภาวะที่มีทั้งไอน้ำและ SO_2 แต่ไม่มี NO โดยวัดปริมาณ NO ในก๊าซขาออก

การทดสอบที่ 6 : ทดสอบในระหว่างปฏิกิริยา SO_2 oxidation ไปเป็น SO_3 ในสภาวะที่มี SO_2 แต่ไม่มีไอน้ำ โดยวัดปริมาณ SO_3 ในก๊าซขาออก ซึ่งองค์ประกอบของก๊าซขาเข้าที่ใช้ในปฏิกิริยาต่างๆ แสดงตามตารางที่ 3.3

ตารางที่ 3. 3 องค์ประกอบของก๊าซขาเข้าที่ใช้ในปฏิกิริยาต่างๆ

ปฏิกิริยา	องค์ประกอบของก๊าซขาเข้า					
	NO	NH_3	O_2	SO_2	H_2O	N_2
ปฏิกิริยา SCR	มี	มี	มี	มี	มี	มี
ปฏิกิริยา NH_3 oxidation	-	มี	มี	มี	มี	มี
ปฏิกิริยา SO_2 oxidation	มี	มี	มี	มี	-	มี

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

การวัดความเข้มข้นของ NO และ N_2O ที่ออกจากเครื่องปฏิกรณ์นั้น ทำได้โดยใช้เครื่องก๊าซโครมาโทกราฟ Shimadzu GC-2014 ใช้ตัวตรวจวัดชนิด Electron Capture Detector (ECD) การวัดความเข้มข้นของ NO กระทำที่อุณหภูมิคอลัมน์ 40 °C ส่วนการวัดความเข้มข้น N_2O กระทำที่อุณหภูมิคอลัมน์ 150 °C

ในการประเมินค่าความว่องไวของตัวเร่งปฏิกิริยานั้นจะนำปริมาณ NO ที่ออกจากเครื่องปฏิกรณ์มาทำการคำนวณค่า %NO conversion ตามสมการที่ 3.1

$$\text{NOconversion}(\%) = \frac{\text{NO}_{\text{เข้า}} - \text{NO}_{\text{ออก}}}{\text{NO}_{\text{ออก}}} \times 100 \qquad \text{(สมการ 3.1)}$$

เมื่อ $\text{NO}_{\text{เข้า}}$ คือความเข้มข้นของ NO ที่ป้อนเข้าสู่เครื่องปฏิกรณ์

และ $\text{NO}_{\text{ออก}}$ คือความเข้มข้นของ NO ด้านขาออกของเครื่องปฏิกรณ์

ส่วนการวัดความเข้มข้นของ SO_3 ที่เกิดขึ้นทำได้โดยการใช้เครื่องก๊าซโครมาโทกราฟ Shimadzu GC-2014 ใช้ตัวตรวจวัดชนิด Flame Photometric Detector (FPD) ซึ่งรายละเอียดสภาพการทำงาน (Operating conditions) ของเครื่องก๊าซโครมาโทกราฟที่ใช้ในการวิเคราะห์ก๊าซขาออกจากเครื่องปฏิกรณ์ แสดงไว้ในตารางที่ 3.4

ตารางที่ 3. 4 สภาพการทำงาน (Operating conditions) ของเครื่องก๊าซโครมาโทกราฟที่ใช้ในการวิเคราะห์ก๊าซขาออกจากเครื่องปฏิกรณ์

สภาพการทำงาน	ก๊าซที่ต้องการวิเคราะห์		
	NO	N2O	SO2
ตัวตรวจวัด	ECD	ECD	FPD
อุณหภูมิของตัวตรวจวัด (°C)	200	200	185
ชนิดคอลัมน์ที่ใช้	Hyasep-DB	Hyasep-DB	Rt-XL sulfur
อุณหภูมิของคอลัมน์ (°C)	40	150	180
อุณหภูมิของ injector (°C)	200	200	100
ชนิดของก๊าซตัวพาที่ใช้ (Carrier gas)	N_2	N_2	He

บทที่ 4

ผลการทดลองและการวิจารณ์ผลการทดลอง

ในบทนี้จะกล่าวถึงผลการทดลองและวิจารณ์ผลการทดลอง โดยแบ่งเนื้อหาออกเป็น 2 ส่วนคือ การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยาและการวิเคราะห์ประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว (V_2O_5/TiO_2 WO_3/TiO_2 และ MoO_3/TiO_2) และตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ (V_2O_5-WO_3/TiO_2, และ V_2O_5-MoO_3/TiO_2)

4.1 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา

ในการวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยวและตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบที่เตรียมได้นั้น ในงานวิจัยนี้เลือกทำการวัดพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้การดูดซับด้วยก๊าซไนโตรเจน (Nitrogen Physisorption) การวัดปริมาณโลหะของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ด้วยเทคนิค Inductively-Coupled Plasma-Optical Emission Spectroscopy (ICP-OES) การวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา (NH_3-TPD) การวัดเฟสของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิค X-Ray Diffraction (XRD) และการตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด (FT-IR) โดยข้อมูลของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 ทั้งหมดนั้นอ้างอิงมาจากงานวิจัยของนางสาวลภัสลดา ชื่นกลิ่น

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

ในงานวิจัยนี้ใช้ตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ที่มีปริมาณ V_2O_5 เท่ากับ 3.0 wt.% ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยวตัวอื่นนั้นจะเตรียมโดยให้ปริมาณโลหะชนิดนั้นเท่ากับปริมาณโลหะวานาเดียมในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ที่มีปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.% (จำนวนโมลของโลหะแต่ละชนิดบนตัวเร่งปฏิกิริยาแต่ละตัวเท่ากัน) ซึ่งจากการคำนวณจะพบว่าปริมาณโลหะออกไซด์บนตัวเร่งปฏิกิริยาที่ต้องการเตรียมจะต้องมีปริมาณ V_2O_5 เท่ากับ 3.0 wt.% WO_3 เท่ากับ 7.65 wt.% และ MoO_3 เท่ากับ 4.75 wt.% (ตัวอย่างการคำนวณแสดงในภาคผนวก ข.)

จากการนำตัวอย่างตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ไปทำการวิเคราะห์ปริมาณโลหะด้วยเทคนิค ICP-OES เมื่อทำการคำนวณออกมาในรูปของโลหะออกไซด์ ผลคำนวณที่ได้แสดงในตารางที่ 4.1

ตารางที่ 4. 1 ปริมาณโลหะออกไซด์ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ด้วยเทคนิค ICP-OES

ตัวเร่งปฏิกิริยา	ปริมาณ V_2O_5 (wt.%)	ปริมาณ WO_3 (wt.%)	ปริมาณ MoO_3 (wt.%)
V_2O_5/TiO_2	2.92	-	-
WO_3/TiO_2	-	7.11	-
MoO_3/TiO_2	-	-	5.17
V_2O_5-WO_3/TiO_2	2.97	6.93	-
V_2O_5-MoO_3/TiO_2	2.76	-	4.61

4.1.2 การวัดพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้การดูดซับด้วยก๊าซไนโตรเจน (Nitrogen Physisorption)

จากการวัดพื้นที่ผิวของ TiO_2 และตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งหมดที่เตรียมได้นั้น ผลที่ได้แสดงดังตารางที่ 4.2 จากตารางจะพบว่าพื้นที่ผิวของ TiO_2 ที่เตรียมได้จากวิธีโซลเจลนั้นมีพื้นที่ผิวเท่ากับ 93.9 m^2/g แต่เมื่อนำ TiO_2 ที่เตรียมได้มาทำการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว โดยเติมโลหะชนิดต่างๆลงไปบน TiO_2 แล้วนำไปเผาในอากาศที่อุณหภูมิ 500 °C ด้วยอัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10 °C/min เป็นเวลา 2 ชั่วโมงแล้ว จะพบว่าพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยวที่ได้ลดลง ทั้งนี้เนื่องจากการเติมโลหะบนผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา อาจทำให้เกิดการอุดตันรูพรุนของตัวเร่งปฏิกิริยาได้ อีกทั้งการนำตัวเร่งปฏิกิริยาไปเผาด้วยอุณหภูมิสูงกว่าในขั้นตอนการเตรียม TiO_2 ซึ่งอาจจะทำให้โครงสร้าง TiO_2 บางส่วนที่ยังเปลี่ยนสภาพได้ไม่สมบูรณ์นั้นเกิดการหลอมรวมตัวกันของอนุภาคตัวเร่งปฏิกิริยา (Sintering) ได้ ซึ่งเหตุผลนี้ยังสอดคล้องกันกับในกรณีของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมซึ่งจะเห็นว่าเมื่อทำการเติมโลหะวานาเดียมลงไปแล้วนำไปเผาในอากาศที่อุณหภูมิ 500 °C ด้วยอัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10 °C/min เป็นเวลา 2 ชั่วโมงแล้วนำมาทำการเติมโลหะตัวที่ 2 อีกครั้งแล้วนำไปทำการเผาในอากาศซ้ำอีกครั้ง จะเห็นได้ว่าพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมนั้นมีค่าลดลงต่ำกว่าเมื่อเทียบกับตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยวและ TiO_2

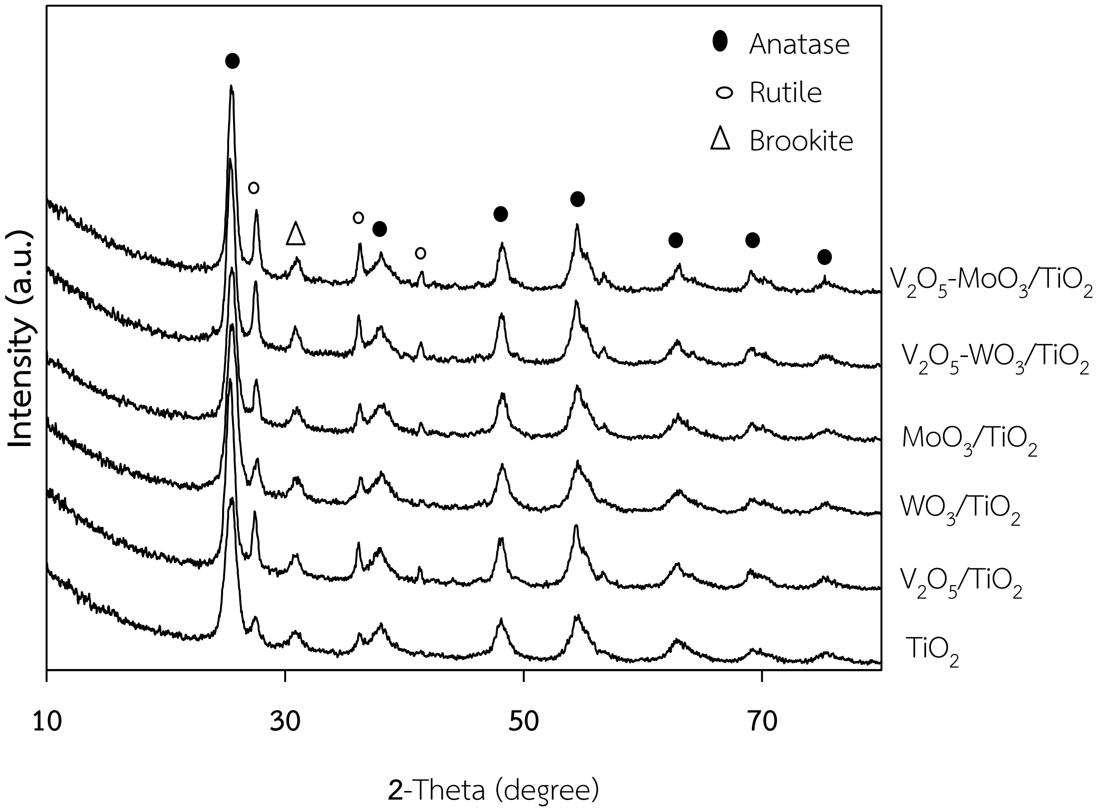
ตารางที่ 4. 2 พื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ที่เตรียมได้

ตัวเร่งปฏิกิริยา	พื้นที่ผิว (m^2/g)
TiO_2	93.9
V_2O_5/TiO_2	65.2
WO_3/TiO_2	79.9
MoO_3/TiO2	66.0
V_2O_5-WO_3/TiO_2	53.0
V_2O_5-MoO_3/TiO_2	56.7

4.1.3 การวัดโครงสร้างผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยเทคนิค X-Ray Diffraction (XRD)

จากผลการวิเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยาตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมขึ้นด้วยเทคนิค X-Ray Diffraction ดังแสดงในรูปที่ 4.1 นั้น พบว่า TiO_2 ที่เตรียมขึ้นเพื่อใช้เป็นตัวรองรับนั้นมีเฟส anatase เกิดขึ้นอย่างชัดเจนและมีเฟส rutile และ brookite ปะปนอยู่เล็กน้อย

เมื่อพิจารณาผลการวิเคราะห์ XRD ของตัวเร่งปฏิกิริยาทุกตัว จะพบว่าตำแหน่งของพีคที่เกิดขึ้นนั้นเป็นตำแหน่งของ TiO_2 เฟส anatase ไม่พบพีคของ V_2O_5 WO_3 และ MoO_3 ที่เติมลงไป ซึ่งการที่ไม่พบพีคของโลหะออกไซด์ปรากฏนั้น อาจมีสาเหตุมาจาก V_2O_5 WO_3 และ MoO_3 ที่เติมลงไปนั้นมีปริมาณน้อย หรือโลหะออกไซด์เหล่านั้นไม่ได้ก่อตัวเป็นผลึกขนาดใหญ่ที่สามารถตรวจวัดได้ด้วยเทคนิค XRD แต่อาจก่อตัวเป็นผลึกขนาดเล็กที่ไม่สามารถตรวจวัดได้ด้วยเทคนิค XRD หรือเป็นไปได้ว่าโลหะออกไซด์เหล่านั้นเกิดเป็นเพียงแค่โครงสร้างอสัณฐาน (amorphous) ที่แผ่กระจายอยู่บนพื้นผิว TiO_2จึงทำให้ไม่สามารถตรวจพบความเปลี่ยนแปลงของตำแหน่งพีคจากตัวรองรับ TiO_2 ได้



รูปที่ 4. 1 ผลการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค X-Ray Diffraction ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้

4.1.4 การวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา

จากผลการวัดความเป็นกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนพื้นผิว เมื่อนำผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวรองรับและตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งหมด (รายละเอียดแสดงไว้ในภาคผนวก ค) มาทำการคำนวณเพื่อหาความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยา ผลการคำนวณที่ได้แสดงในตารางที่ 4.3

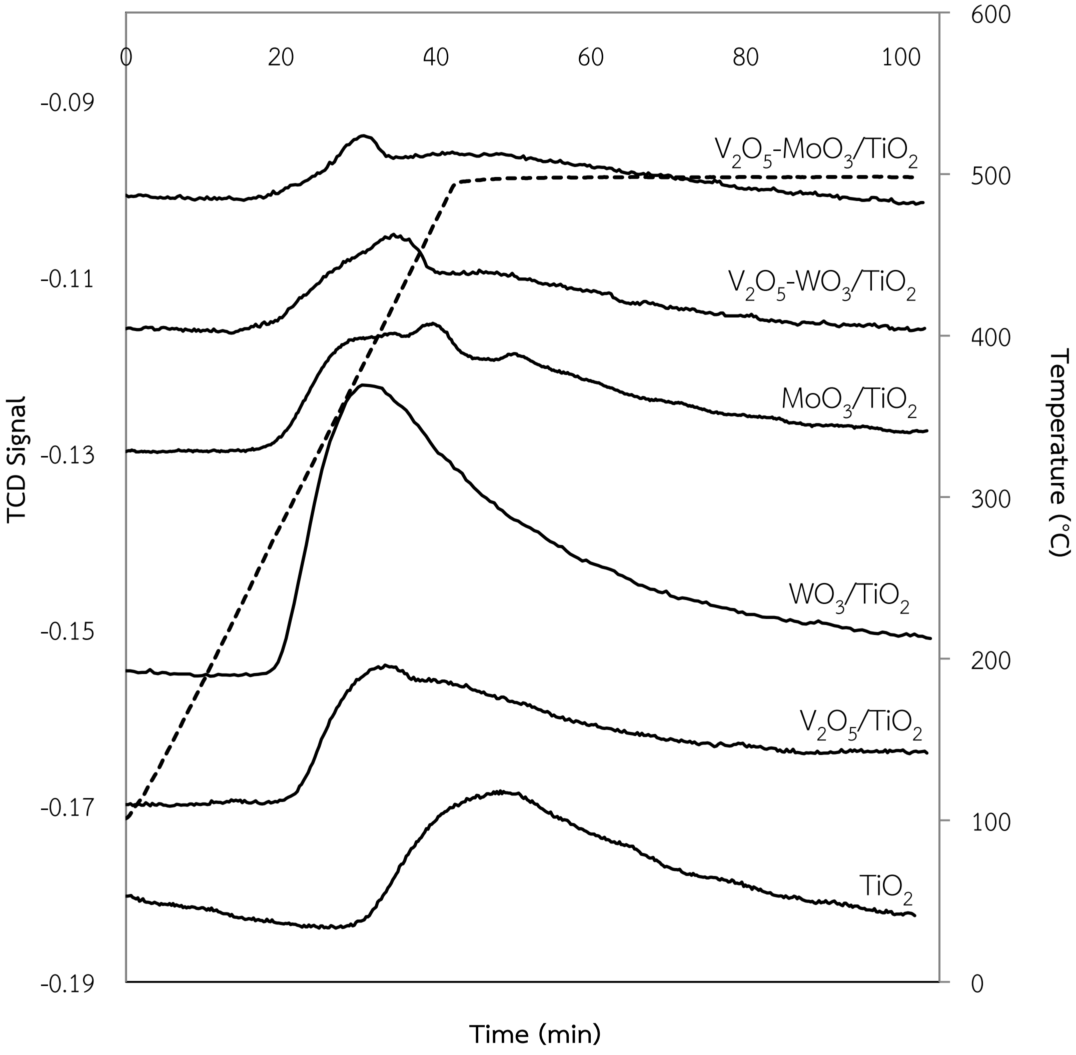
ตารางที่ 4. 3 ผลการคำนวณความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิวของตัวรองรับและตัวเร่งปฏิกิริยา

ตัวเร่งปฏิกิริยา	ความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิว ตัวเร่งปฏิกิริยา (μmol H^+/g)
TiO_2	1482
V_2O_5/TiO_2	1344
WO_3/TiO_2	3070
MoO_3/TiO_2	1573
V_2O_5-WO_3/TiO_2	1059
V_2O_5-MoO_3/TiO_2	846

เมื่อพิจารณาความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว จะพบว่าตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 และ MoO_3/TiO_2 นั้นมีความเป็นกรดบนพื้นผิวใกล้เคียงกันกับ TiO_2 แต่สำหรับตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 จะเห็นว่ามีความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิวสูงมาก ทั้งนี้เนื่องมาจาก WO_3 เองเป็นโลหะออกไซด์ที่มีความเป็นกรดสูง

เมื่อพิจารณาความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมเทียบกับตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 พบว่าการเติม WO_3 และ MoO_3 ลงไปบน V_2O_5/TiO_2 นั้นกลับทำให้ความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยาลดลง ทั้งนี้อาจเกิดจากช่วงอุณหภูมิที่ในการคายซับของ NH_3 ที่ในงานวิจัยนี้เลือกใช้นั้นอาจทำการไล่ NH_3 ที่เกาะอยู่บนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาออกได้ไม่หมด จึงทำให้ปริมาณ NH_3 ที่วัดได้น้อยกว่าความเป็นจริง ส่งผลให้ความเป็นกรดทั้งหมดบนพื้นผิวตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้น้อย

เมื่อพิจารณาความแรงของกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยอาศัยการเปรียบเทียบผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวรองรับและตัวเร่งปฏิกิริยา ดังแสดงในรูปที่ 4.2 ซึ่งพบว่าเมื่อเติมโลหะออกไซด์ลงไปบนตัวรองรับแล้ว ความแรงของกรดบนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาจะลดลง ทั้งนี้เนื่องเหตุผลเดียวกับที่กล่าวไปข้างต้นว่าช่วงอุณหภูมิที่ในการคายซับของ NH_3 อาจทำการไล่ NH_3 ที่เกาะอยู่บนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาออกได้ไม่หมด



รูปที่ 4. 2 การเปรียบเทียบผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของตัวรองรับและตัวเร่งปฏิกิริยา

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

4.1.5 การตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด

การตรวจสอบหมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดนั้นทำขึ้นเพื่อต้องการวิเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยาในส่วนที่เทคนิค X-Ray Diffraction ไม่สามารถวิเคราะห์ นั่นคือ ในส่วนของโลหะออกไซด์ที่เติมเข้าไป ซึ่งผลการวิเคราะห์ที่แสดงในรูปที่ 4.3 นั้นเป็นผลการวิเคราะห์หมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว

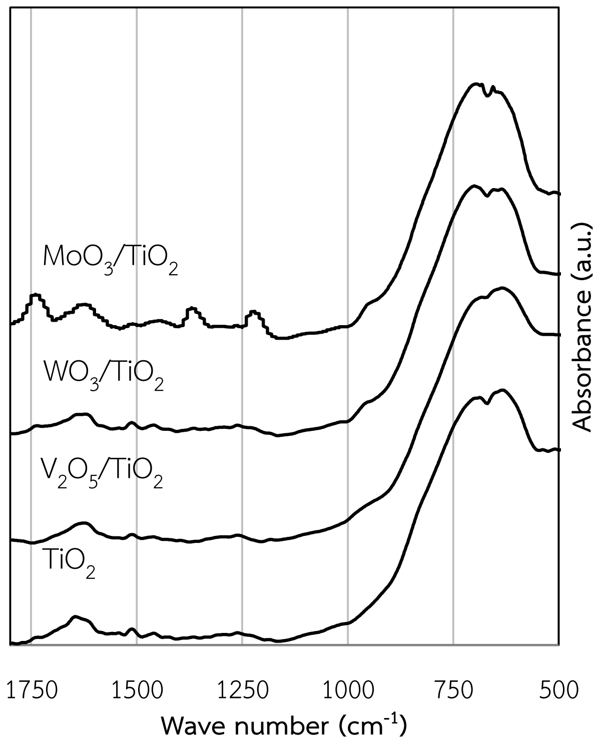
เมื่อพิจารณาผลการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของ TiO_2 และตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว ดังแสดงไว้ในรูปที่ 4.3 จะพบ strong absorption band ที่ตำแหน่งเลขคลื่นประมาณ 800-500 cm^{-1} ปรากฏขึ้นในทุกตัวเร่งปฏิกิริยา ซึ่งเมื่อทำการสืบค้นข้อมูลตำแหน่งของการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด พบว่า absorption band ที่เกิดขึ้นนี้เป็นตำแหน่งของ Ti-O stretching [153, 154] ที่แสดงลักษณะของ TiO_2 และเมื่อพิจารณาการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของตัวเร่งปฏิกิริยาที่ช่วงเลขคลื่นประมาณ 1000-900 cm^{-1} จะพบ absorption band เล็กๆปรากฏขึ้น ซึ่งเมื่อทำการสืบค้นข้อมูลตำแหน่งของการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด พบว่าเป็นตำแหน่งของโลหะออกไซด์ที่อยู่บนตัวเร่งปฏิกิริยา

โดยที่ ตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 พบ absorption band เล็กๆ ที่เลขคลื่นประมาณ 1048 cm^{-1} ซึ่งเป็นตำแหน่งของ V=O stretching [153, 154]

ตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 พบ absorption band เล็กๆ ที่เลขคลื่นประมาณ 1012 cm^{-1} ซึ่งเป็นตำแหน่งของ W=O stretching [153, 155] และ

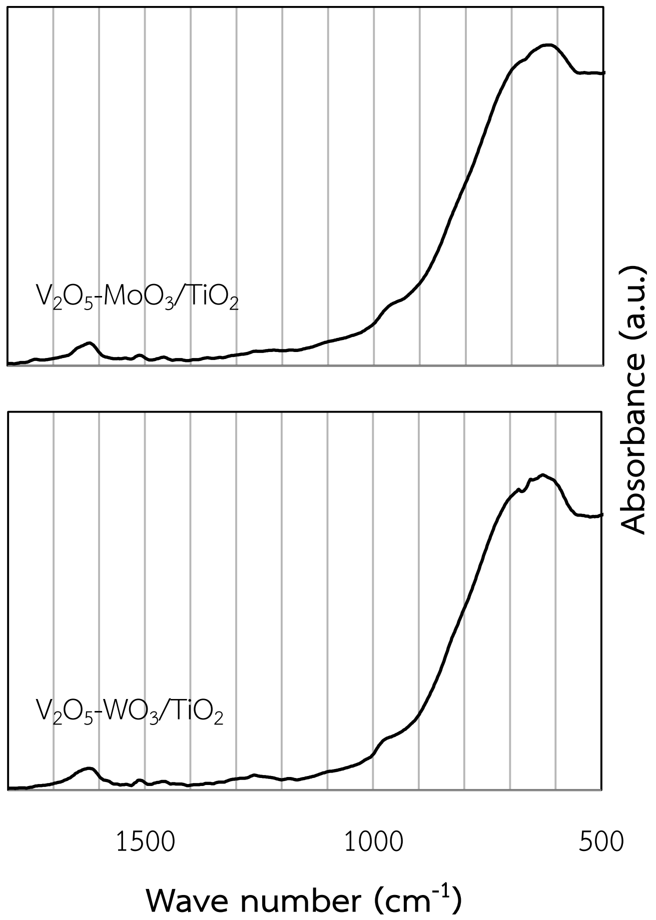
ตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 พบ absorption band เล็กๆ ที่เลขคลื่นประมาณ 990-995 cm^{-1} ซึ่งเป็นตำแหน่งของ Mo=O stretching [153, 156]

ดังนั้นจึงแสดงให้เห็นว่ามีโลหะออกไซด์อยู่บนตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้



รูปที่ 4. 3 ผลการวิเคราะห์หมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของตัวรองรับและตัวเร่งปฏิกิริยาออกไซด์เดี่ยว

สำหรับผลการวิเคราะห์หมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด พบการปรากฏของ absorption band ขึ้นเช่นเดียวกันกับในตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว แต่เกิดเป็น absorption band ที่กว้าง ทำให้ยากที่จะบอกได้ว่า absorption band ที่เกิดเป็นของโลหะออกไซด์ตัวใด หรืออาจเป็นไปได้ที่จะเกิดเป็นออกไซด์ผสมตัวใหม่ ซึ่งไม่สามารถระบุด้วยเครื่องการดูดกลืนรังสีอินฟราเรด



รูปที่ 4. 4 ผลการวิเคราะห์หมู่ฟังก์ชันบนผิวตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยการวัดการดูดกลืนรังสีอินฟราเรดของตัวเร่งปฏิกิริยาออกไซด์ผสม

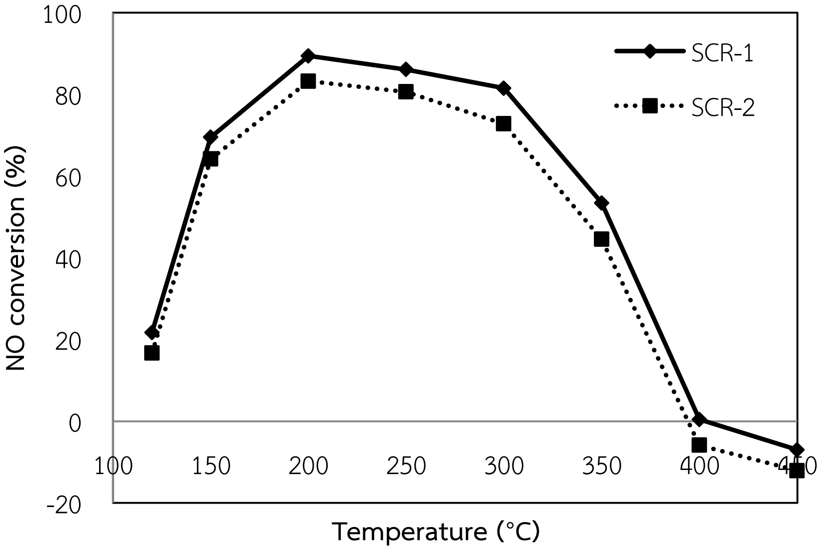
4.2 การวิเคราะห์ประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

ในการวิเคราะห์ประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว (V_2O_5/TiO_2 WO_3/TiO_2 และ MoO_3/TiO_2) และตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ (V_2O_5-WO_3/TiO_2, และ V_2O_5-MoO_3/TiO_2) ที่เตรียมได้นั้น หัวข้อที่จะทำการอภิปรายแบ่งได้เป็น

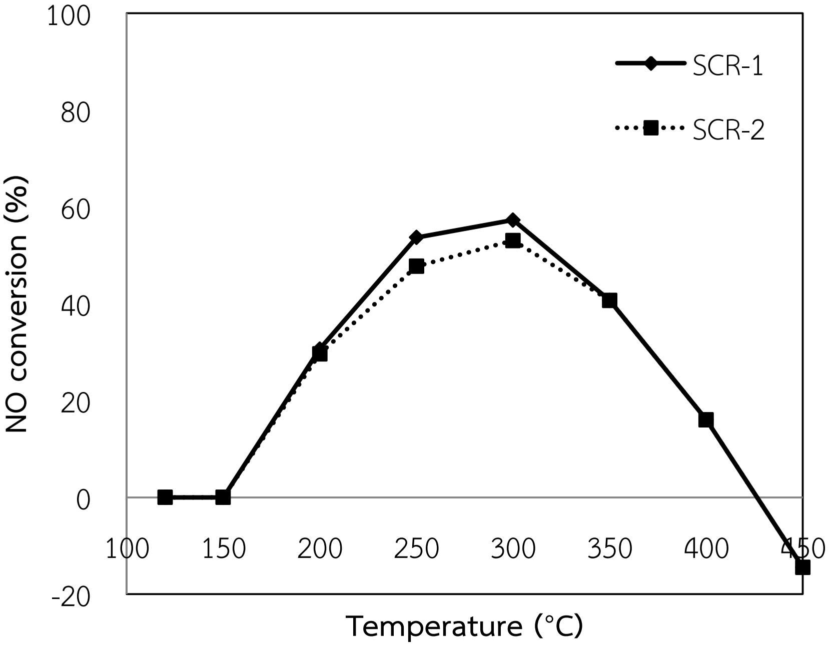
- การวิเคราะห์เสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ โดยทำการเปรียบเทียบค่า %NO conversion ที่ได้จากการทดสอบในปฏิกิริยา SCR ครั้งที่ 1 และค่า %NO conversion ที่ได้จากการทดสอบในปฏิกิริยา SCR ครั้งที่ 2 (ใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ผ่านการใช้งานมาจากการทดสอบครั้งที่ 1)
- การวิเคราะห์การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้
- การวิเคราะห์การเกิด SO_3 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 และ
- การเปรียบเทียบค่า %NO conversion และ %NO_x conversion ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้

4.2.1 การวิเคราะห์เสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

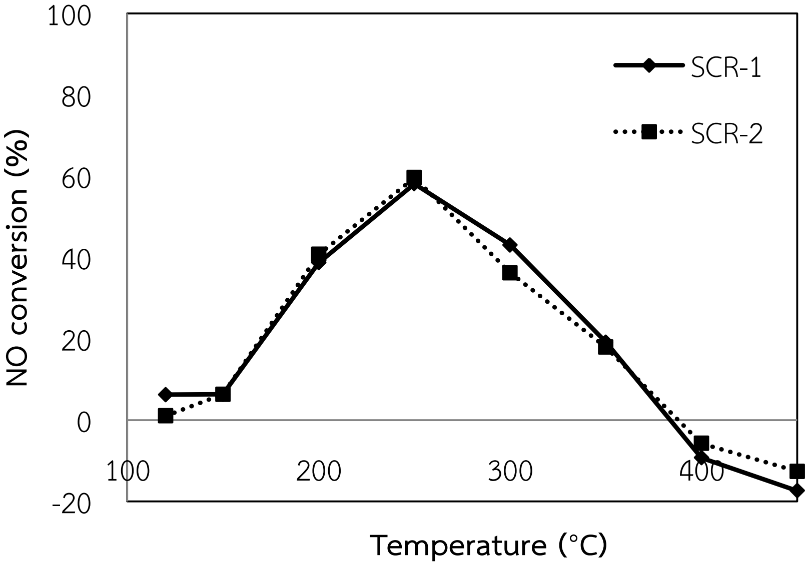
สำหรับการวิเคราะห์เสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ ในงานวิจัยนี้ได้นำตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ทั้งหมดมาทำการทดสอบประสิทธิภาพในปฏิกิริยา SCR ที่ช่วงอุณหภูมิ 120-450 °C (การทดสอบครั้งที่ 1) แล้วทำการลดอุณหภูมิลงมาแล้วเริ่มทำการทดสอบใหม่เป็นครั้งที่ 2 โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ผ่านการใช้งานมาจากการทดสอบที่ 1 จากนั้นทำการเปรียบเทียบค่า %NO conversion ที่ได้จากการทดสอบในปฏิกิริยา SCR ครั้งที่ 1 และค่า %NO conversion ที่ได้จากการทดสอบในปฏิกิริยา SCR ครั้งที่ 2 ซึ่งผลการเปรียบเทียบที่ได้แสดงไว้ในรูปที่ 4.5-4.9



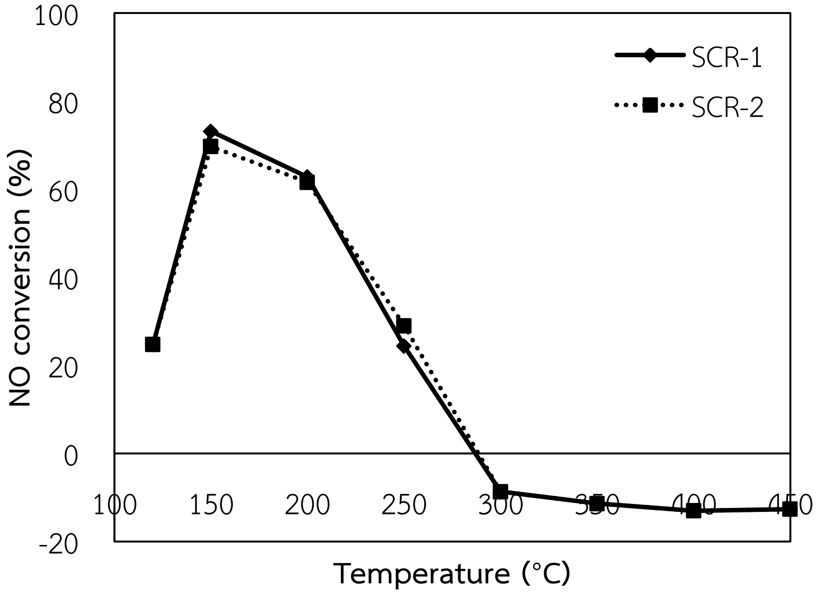
รูปที่ 4.5 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2



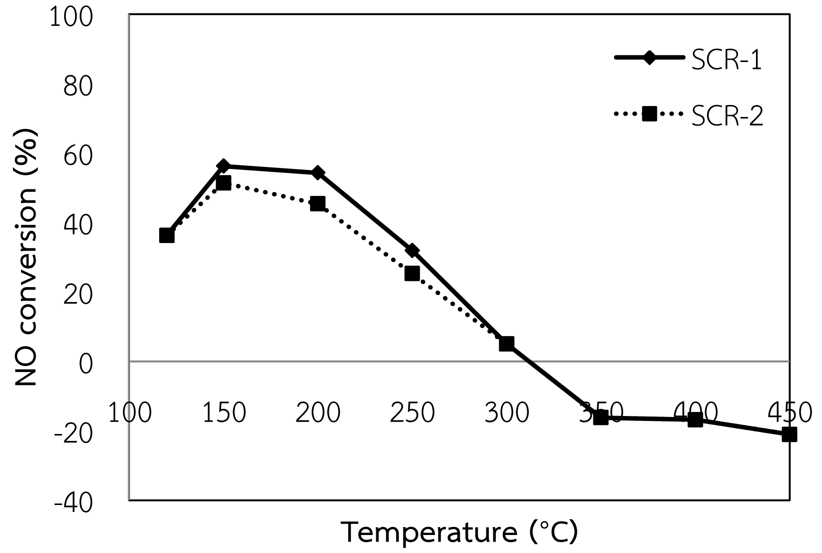
รูปที่ 4.6 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2



รูปที่ 4.7 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2



รูปที่ 4.8 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2



รูปที่ 4.9 การทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2

จากผลการทดสอบเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ทั้งหมด จะพบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้นั้นมีเสถียรภาพ กล่าวคือ ในการทดสอบปฏิกิริยา SCR ในครั้งที่ 2 ให้ผลการทดสอบที่มีแนวโน้มเหมือนกับผลการทดสอบในครั้งที่ 1 เพียงแต่ในบางอุณหภูมิ %NO conversion ที่ได้ในการทดสอบในครั้งที่ 2 นั้นลดลงเล็กน้อย ทั้งนี้อาจเนื่องมาจากการทดสอบในครั้งแรกนั้น โลหะออกไซด์ที่อยู่บนตัวเร่งปฏิกิริยาอาจมีการเสื่อมสภาพไปบางส่วน หรือในขณะที่ทำการทดสอบครั้งแรกที่ช่วงอุณหภูมิสูง โลหะออกไซด์และตัวรองรับเกิดการหลอมรวมกันบางส่วน ทำให้สูญเสียพื้นที่ผิวบางส่วนไป ทำให้พื้นที่ในการทำปฏิกิริยาลดลง ซึ่งส่งผลทำให้ %NO conversion ในการทดสอบครั้งที่ 2 ลดลง

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

4.2.2 การวิเคราะห์การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR

จากที่ได้กล่าวไปแล้วว่า ในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้น N_2O มักจะเกิดขึ้นจากปฏิกิริยาข้างเคียงเสมอ ซึ่งในงานวิจัยนี้ได้ตั้งสมมติฐานการเกิด N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้นมาจาก 2 ปฏิกิริยาหลัก คือ

- ปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3

$$2NH_3 + 2O_2 \longrightarrow N_2O + 3H_2O \qquad \text{(สมการ 2.9)}$$

ปฏิกิริยานี้ NH_3 ที่อยู่บนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาจะทำปฏิกิริยากับ O_2 โดยปฏิกิริยานี้จะเกิดขึ้นที่อุณหภูมิสูง และไม่ว่าในระบบจะมี NO อยู่ด้วยหรือไม่ ปฏิกิริยานี้ก็สามารถเกิดขึ้นได้

- ปฏิกิริยาระหว่าง NH_3 และ NO

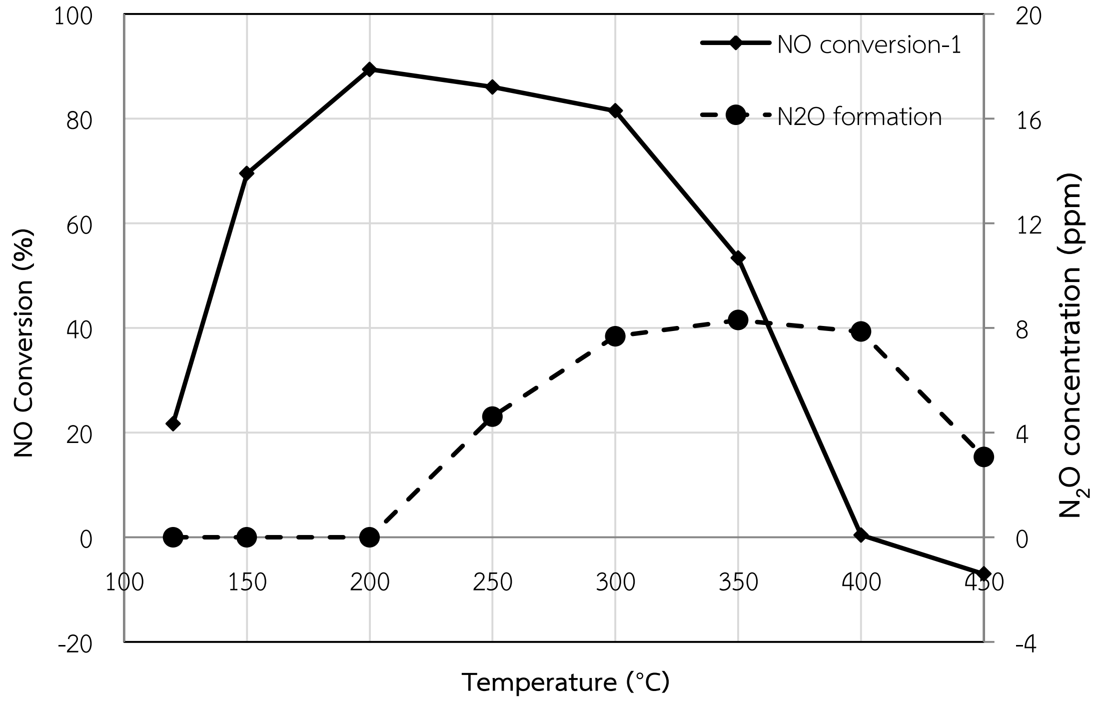
$$8NO + 2NH_3 \longrightarrow 5N_2O + 3H_2O \qquad \text{(สมการ 4.1)}$$

ปฏิกิริยานี้ NH_3 ที่อยู่บนพื้นผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาจะทำปฏิกิริยากับ NO ซึ่งอาจจะเกิดขึ้นได้ในระหว่างปฏิกิริยา SCR เนื่องจากปฏิกิริยา SCR มีสารตั้งต้นของปฏิกิริยานี้ทั้ง 2 ชนิดอยู่แล้วในระบบ

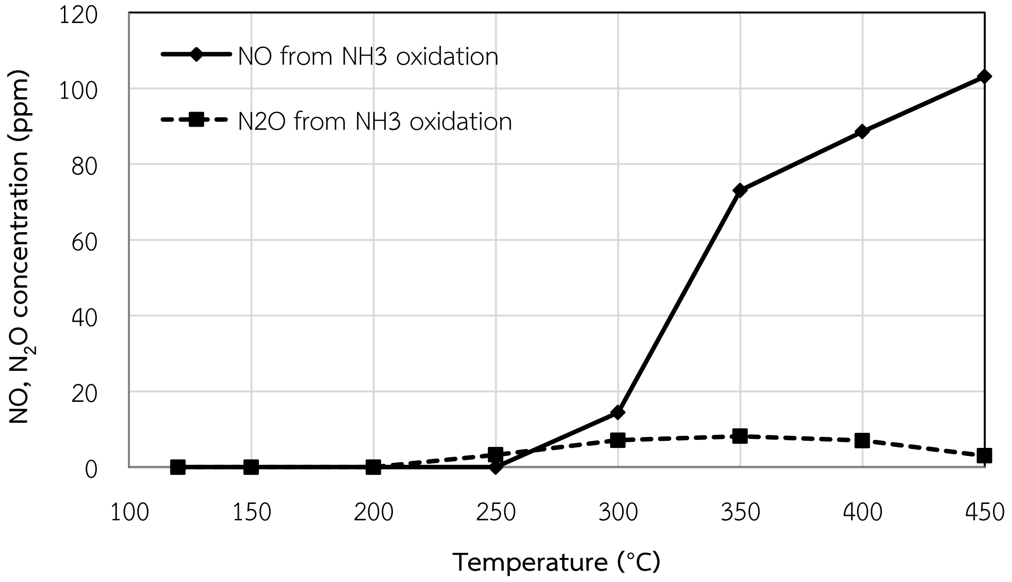
ในการอภิปรายในส่วนของการเกิด N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้น จะขออภิปรายผลการทดสอบทีละตัวเร่งปฏิกิริยา

4.2.2.1 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ V_2O_5/TiO_2

เมื่อทำการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาเพื่อหาปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้น ผลการทดสอบที่ได้แสดงในรูปที่ 4.10 ซึ่งจะเห็นว่ามี N_2O เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR โดย N_2O จะเริ่มเกิดขึ้นตั้งแต่อุณหภูมิ 250 °C จนถึง 400°C ซึ่งยังไม่สามารถระบุได้ว่า N_2O ที่เกิดขึ้นนี้มาจากปฏิกิริยาใดตามที่ได้ตั้งสมมติฐาน จึงต้องใช้ข้อมูลจากการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 มีช่วยในการอธิบาย

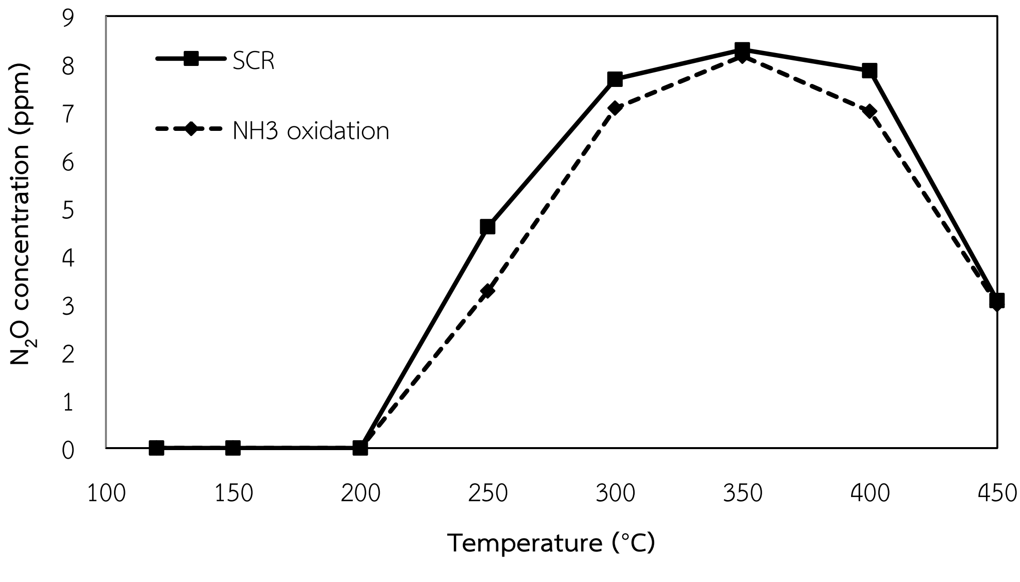


รูปที่ 4. 10 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR



รูปที่ 4. 11 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3

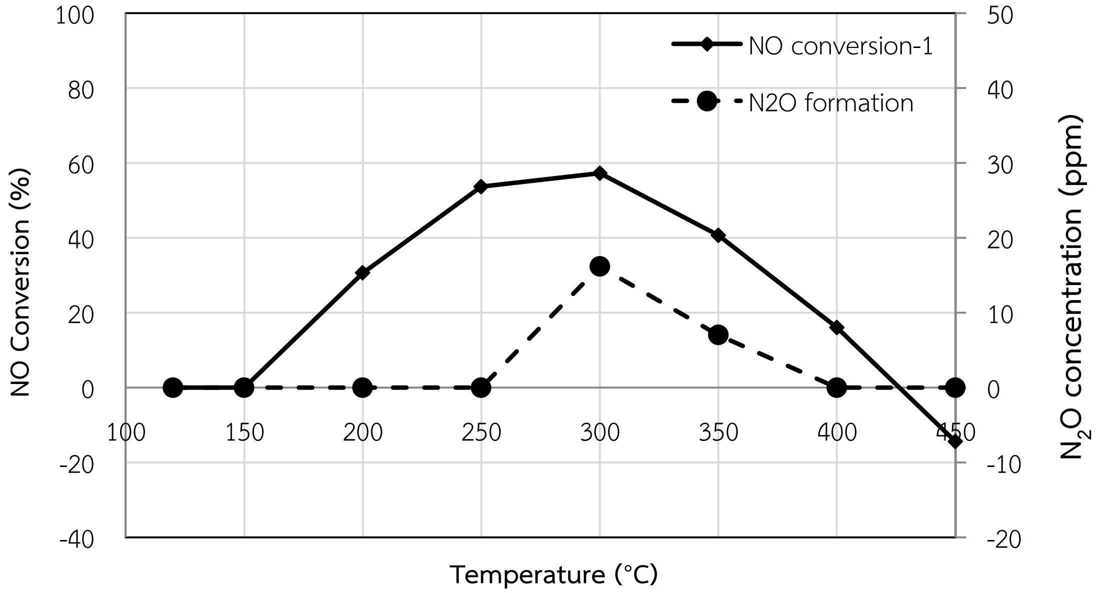
จากผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 (รูปที่ 4.11) จะเห็นว่า N_2O นั้นเริ่มเกิดขึ้นที่ก่อนที่อุณหภูมิ 250°C ในขณะที่ NO นั้นเกิดขึ้นหลังจากนั้นที่อุณหภูมิ 300°C จึงเป็นไปได้ว่า N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้นมาจากปฏิกิริยาระหว่าง NH_3 กับ O_2 เพียงอย่างเดียว ไม่อาจเกิดขึ้นได้จากปฏิกิริยาระหว่าง NH_3 กับ NO ทั้งนี้เพราะถ้า N_2O เกิดขึ้นจากปฏิกิริยาหลัง ปริมาณ NO ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 จะต้องเกิดขึ้นก่อนหรือเกิดขึ้นไปพร้อมๆกับการเกิด N_2O อีกทั้งอุณหภูมิที่เริ่มเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH3 นั้นตรงกับอุณหภูมิที่เริ่มเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ดังนั้นจากข้อมูลส่วนนี้ทำให้สามารถอธิบายได้ว่า N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 นั้นมาจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 ไปเป็น N_2O ซึ่งข้อมูลอีกส่วนหนึ่งที่ช่วยยืนยันได้นั้นมาจากผลการเปรียบเทียบปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 ของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ดังรูปที่ 4.12 ซึ่งจากรูปนี้จะเห็นว่า N_2O ที่เกิดขึ้นจากทั้ง 2 ปฏิกิริยานั้นมีปริมาณใกล้เคียงกันในทุกๆอุณหภูมิที่มีการเกิด N_2O (ความคลาดเคลื่อนอยู่ที่ประมาณ 1-2 ppm) ดังนั้นจึงเป็นได้ว่า N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้นมาจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3



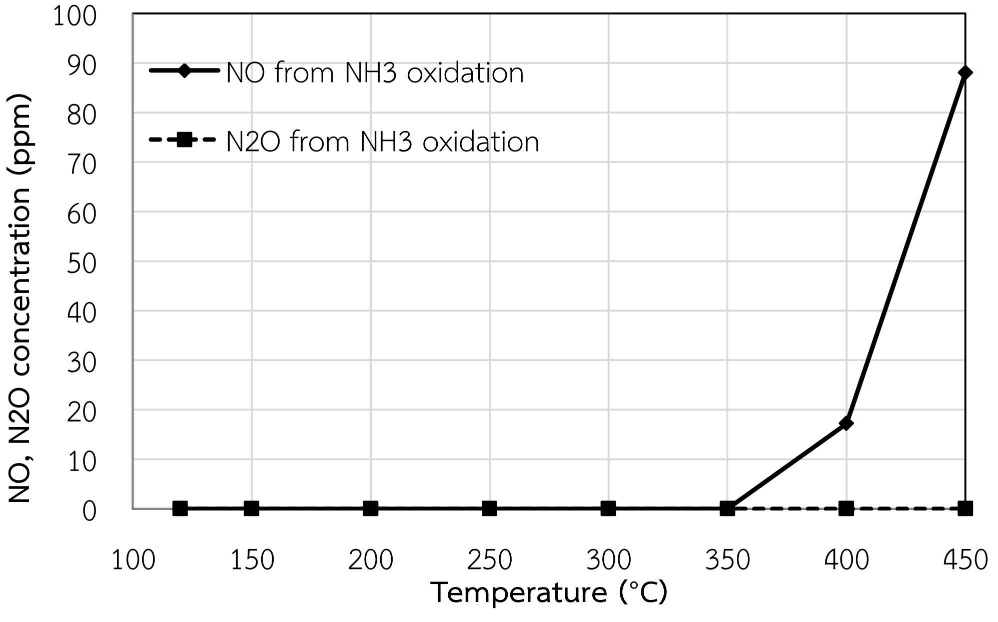
รูปที่ 4. 12 ผลการเปรียบเทียบปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR และปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 ของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2

4.2.2.2 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ WO_3/TiO_2

สำหรับการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 นั้น ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR แสดงในรูปที่ 4.13 และในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 แสดงในรูปที่ 4.14



รูปที่ 4. 13 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR



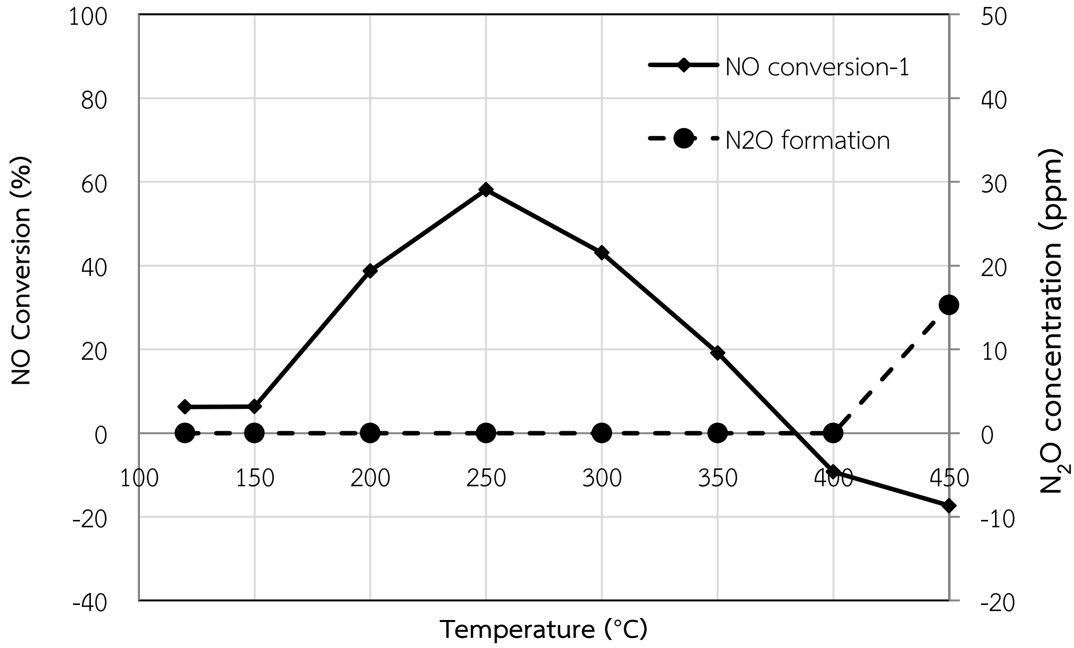
รูปที่ 4.14 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3

เมื่อทำการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาเพื่อหาปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้น จะเห็นว่ามี N_2O เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR ที่อุณหภูมิ 250-400 °C แต่เมื่อพิจารณาปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 ไปเป็น N_2O แล้วจะพบว่าไม่มี N_2O เกิดขึ้น ดังนั้นอาจเป็นไปได้ว่าในกรณีของตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 N_2O ที่เกิดขึ้นอาจมาจากปฏิกิริยาระหว่าง NH_3 และ NO

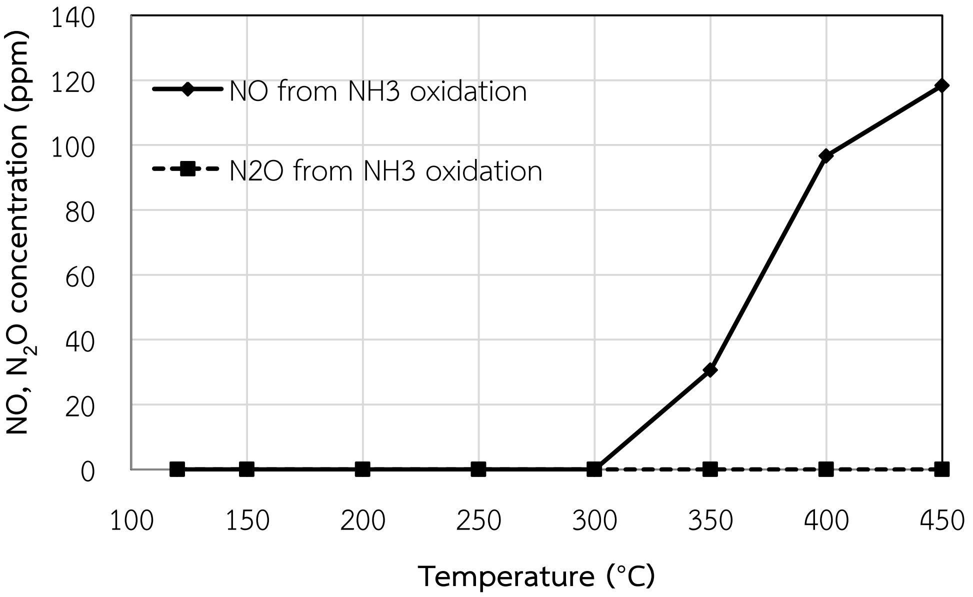
4.2.2.3 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ MoO_3/TiO_2

สำหรับการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 นั้น ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ที่ได้แสดงในรูปที่ 4.15 และในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 แสดงในรูปที่ 4.16

เมื่อพิจารณาการเกิด N_2O ในผลการทดสอบระหว่างปฏิกิริยา SCR จะเห็นว่ามี N_2O เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR ที่อุณหภูมิ 450 °C แต่เมื่อพิจารณาปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 แล้วจะพบว่าไม่มี N_2O เกิดขึ้น ดังนั้นตามสมมติฐานที่กล่าวมาในตอนต้น ในกรณีของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 นั้นอาจสรุปได้ว่า N_2O ที่เกิดขึ้นนั้นอาจมาจากปฏิกิริยาระหว่าง NH_3 กับ NO



รูปที่ 4.15 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR



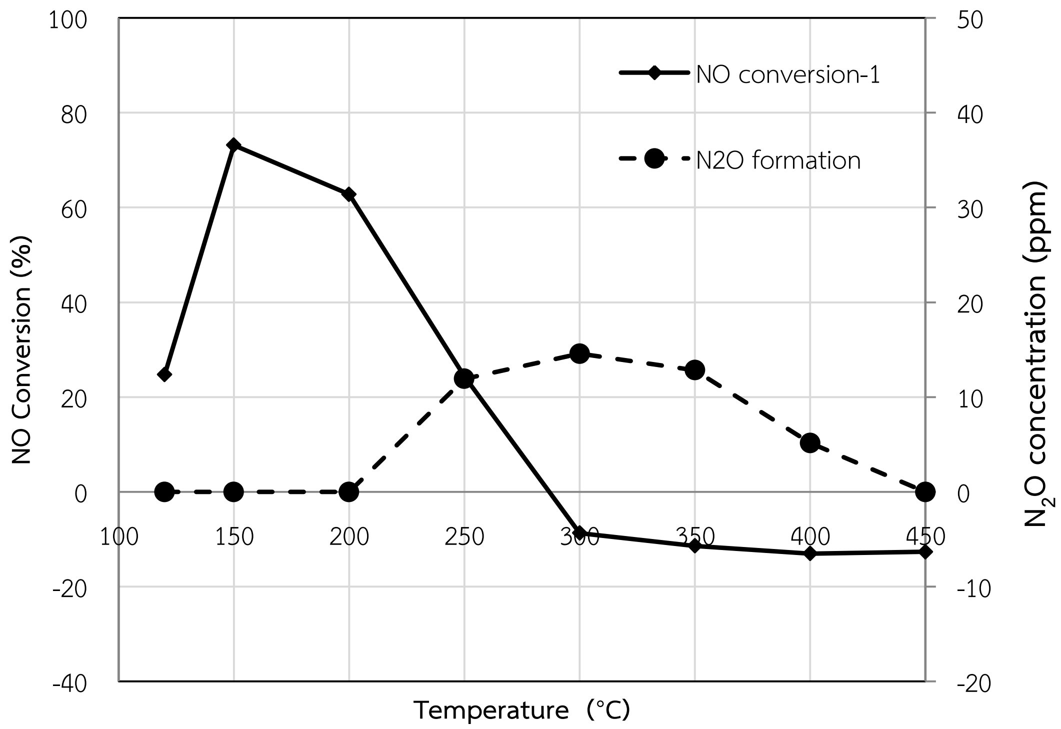
รูปที่ 4.16 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3

4.2.2.4 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ V_2O_5-WO_3/TiO_2

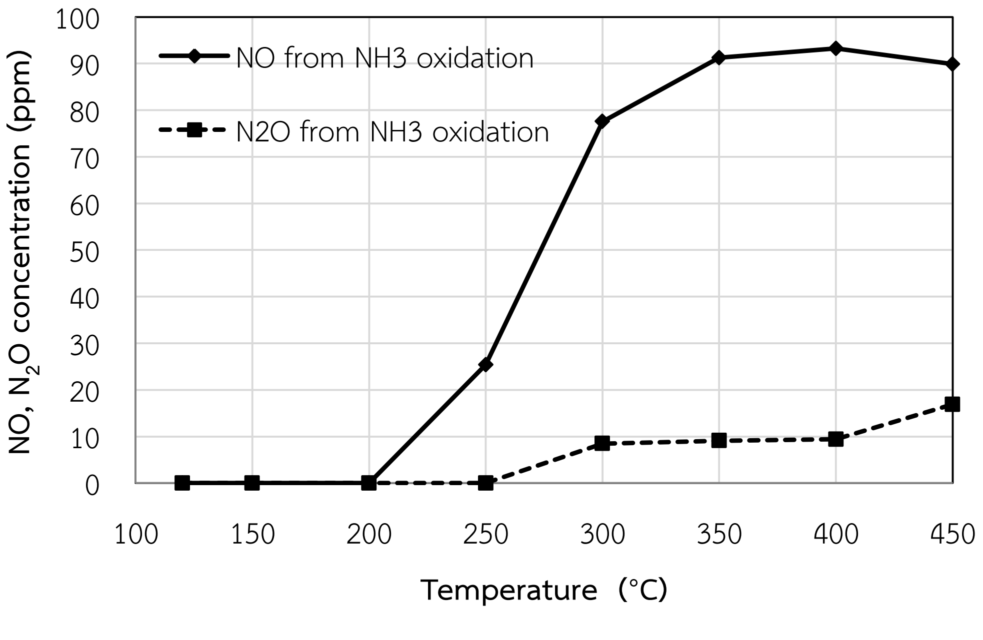
สำหรับการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 นั้น ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR แสดงในรูปที่ 4.17 และในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 แสดงในรูปที่ 4.18

จากผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR จะเห็นว่ามี N_2O เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR เริ่มต้นที่อุณหภูมิตั้ง 250°C แต่ยังไม่สามารถบอกได้ว่า N_2O ที่เกิดขึ้นนี้มาจากปฏิกิริยาที่ได้ตั้งสมมติฐานใด จึงต้องใช้ข้อมูลเพิ่มเติมจากการทดสอบในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3

จากการทดสอบในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 เมื่อพิจารณาที่อุณหภูมิ 250°C จะเห็นว่ายังไม่พบ N_2O เกิดขึ้นจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 แต่ที่อุณหภูมินี้กลับพบ N_2O เกิดขึ้นแล้วในปฏิกิริยา SCR ดังนั้นจึงอาจเป็นไปได้ว่า N_2O ที่เริ่มเกิดขึ้นนี้มาจากปฏิกิริยาระหว่าง NO กับ NH_3 ก่อน ซึ่งหลังจากอุณหภูมิ 250°C ไปแล้ว N_2O จากปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 จึงเริ่มเกิดตามมาทีหลังที่อุณหภูมิ 300 °C ดังนั้นจึงอาจสรุปได้ว่า N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR มาจากทั้งปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 และปฏิกิริยาระหว่าง NO กับ NH_3



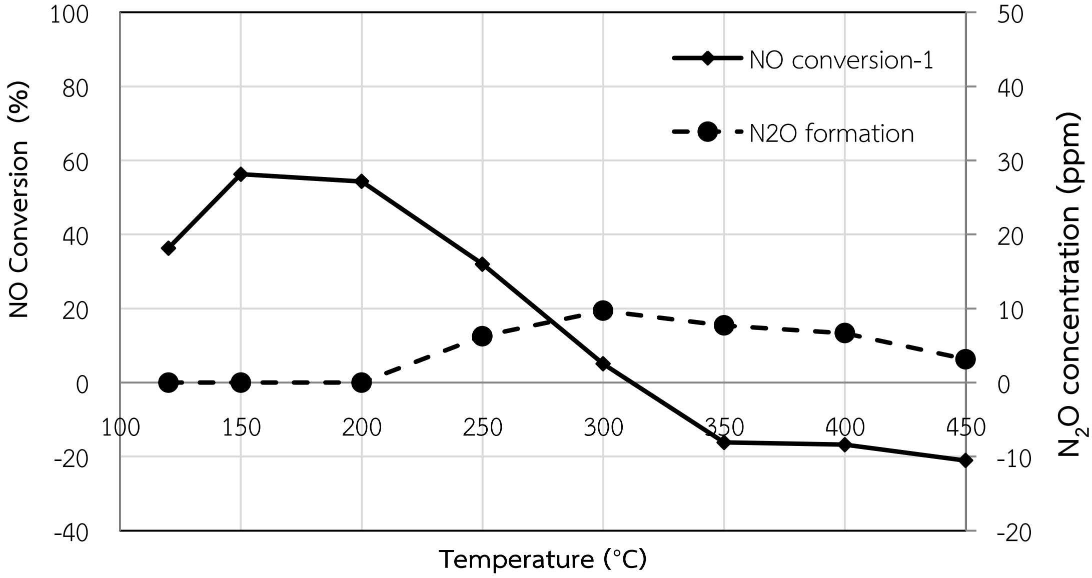
รูปที่ 4.17 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR



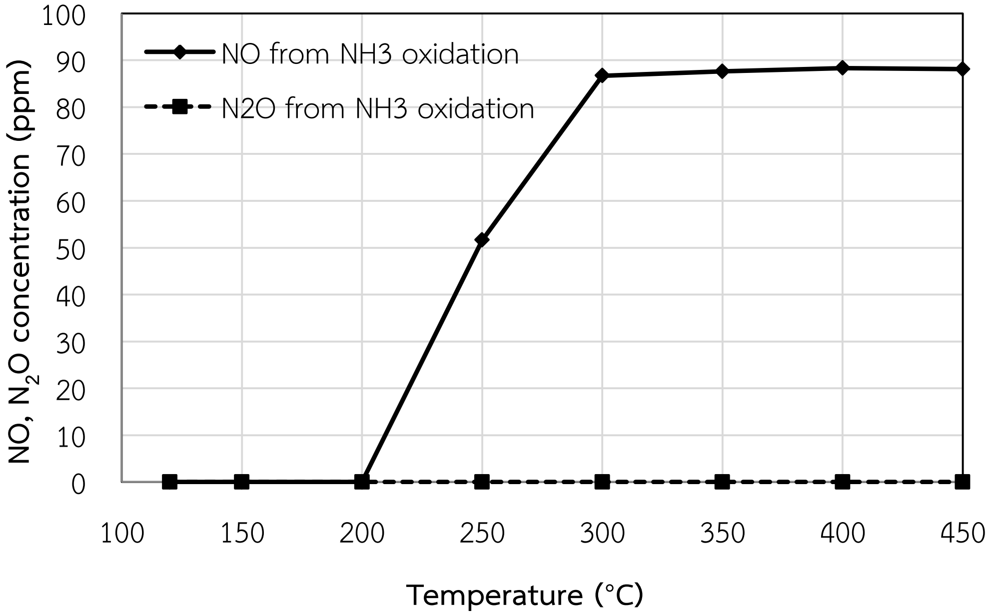
รูปที่ 4.18 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3

4.2.2.5 การเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของ V_2O_5-MoO_3/TiO_2

สำหรับผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้นแสดงในรูปที่ 4.19 และในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 แสดงในรูปที่ 4.20



รูปที่ 4.19 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยา SCR



รูปที่ 4.20 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3

เมื่อทำการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาเพื่อหาที่มาของ N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้น พบว่าปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นจากปฏิกิริยา SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2 ไม่ได้มาจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 เนื่องจากไม่ตรวจพบการเกิด N_2O ดังนั้นจึงอาจเป็นไปได้ว่า N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้นมาจากปฏิกิริยาระหว่าง NO กับ NH_3 แม้ว่าที่อุณหภูมิที่เกิด N_2O นั้นจะเกิดปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 แล้วก็ตามแต่เป็นปฏิกิริยาออกซิเดชันไปเป็น NO

จากการอภิปรายการเกิด N_2O ที่เกิดขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยาทุกตัวที่เตรียมได้นั้น ทำให้ได้ข้อสรุปที่ว่าการเกิด N_2O นั้นขึ้นอยู่กับพฤติกรรมของตัวเร่งปฏิกิริยาแต่ละตัว ดังจะเห็นได้จากการที่การเกิด N_2O ของตัวเร่งปฏิกิริยาแต่ละตัวเกิดผ่านปฏิกิริยา (ตามสมมติฐาน) ที่ไม่เหมือนกัน ดังนั้นข้อมูลในส่วนนี้จึงอาจเป็นแนวทางให้งานวิจัยถัดไปใช้ในการเลือกตัวเร่งปฏิกิริยาไปใช้ในระดับอุตสาหกรรม

4.2.3 การวิเคราะห์การเกิด SO_3 ในระหว่างปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2

สำหรับผลการทดสอบการเกิดปฏิกิริยาออกซเดชันของ SO_2 ไปเป็น SO_3 นั้น จากการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ทั้งหมดในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 ไปเป็น SO_3 โดยใช้เครื่องก๊าซโครมาโทกราฟ Shimadzu GC-2014 ใช้ตัวตรวจวัดชนิด Flame Photometric Detector (FPD) ผลการตรวจวัดไม่พบการปรากฏพีคของ SO_3 เกิดขึ้นในระหว่างทำการทดสอบ พบแต่เพียงพีคของ SO_2 ซึ่งอาจเป็นไปได้ว่าไม่เกิดปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 ไปเป็น SO_3 หรือการที่ไม่พบพีคของ SO_3 นั้นเพราะพีค SO_3 นั้นเกิดซ้อนทับกับพีคของ SO_2 เพื่อยืนยันว่าไม่เกิด SO_3 ขึ้นนั้น จึงได้ทำการทดลองเพิ่มโดยการผ่านก๊าซขาออกจากเครื่องปฏิกรณ์ลงไปในสารละลาย $BaCl_2$ ซึ่งพบว่าเกิดตะกอนขาวแขวนลอยอยู่ในปริมาณน้อยมาก ซึ่งคาดว่าตะกอนขาวที่เกิดขึ้นนี้น่าจะเป็นตะกอนของแบเรียมซัลไฟต์ ($BaSO_3$) มากกว่าตะกอนของแบเรียมซัลเฟต ($BaSO_4$) ทั้งนี้เพราะได้ทดลองทำการผ่านก๊าซ SO_2 ลงไปในสารละลาย $BaCl_2$ โดยตรงแล้วพบตะกอนขาวเกิดขึ้นเช่นเดียวกับตะกอนที่ได้จากการผ่านก๊าซขาออกจากเครื่องปฏิกรณ์ลงไปในสารละลาย $BaCl_2$

4.2.4 การเปรียบเทียบค่า %NO conversion และ %NO_x conversion ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้

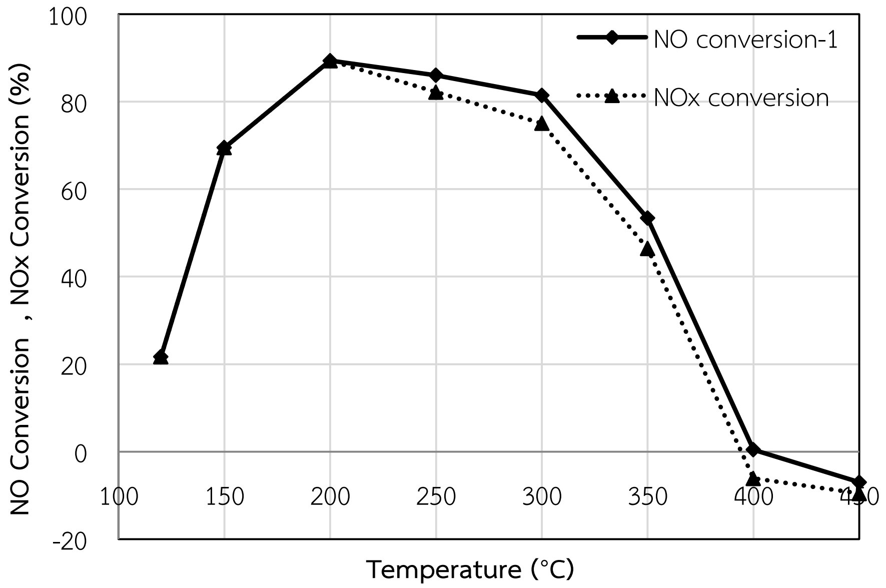
เมื่อพิจารณาผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาดังแสดงในหัวข้อที่ 4.2.2 จะเห็นว่าในขณะเกิดปฏิกิริยา SCR นั้น มักมีการปรากฏของ N_2O เกิดขึ้นด้วย ซึ่ง N_2O ที่เกิดขึ้นนี้เป็นผลิตภัณฑ์

ข้างเคียงที่เราไม่ต้องการ ดังนั้นผลของการทดสอบนี้จึงชี้ให้เห็นแล้วว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้นั้น แม้จะให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO แต่ก็ทำให้เกิด N_2O ขึ้นด้วยเช่นกัน

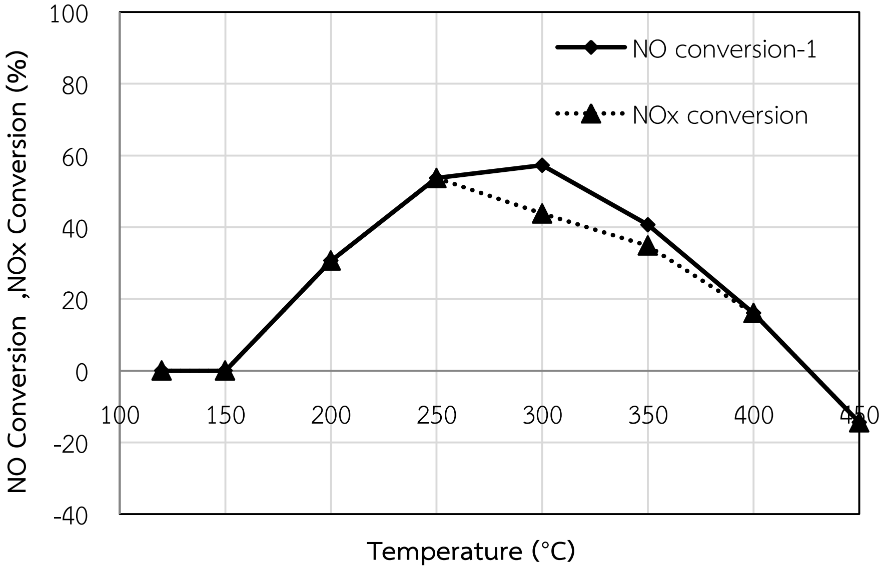
จากการคำนวณค่า %NO conversion ตามสมการที่ 3.1 จะเห็นว่าสมการนี้เป็นสมการที่คิดเฉพาะปริมาณ NO ไม่ได้มีการนำ N_2O ที่เกิดขึ้นมาคิดในสมการ conversion ด้วย ดังนั้นสมการ %NO conversion ที่ได้จึงยังไม่สามารถบอกประสิทธิภาพที่แท้จริงของตัวเร่งปฏิกิริยาเหล่านั้นได้ งานวิจัยนี้จึงได้ทำการคิดคำนวณใหม่โดยมีการนำเอาปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นมาคำนวณในสมการ %NO conversion ด้วย ผลการคำนวณที่ได้นี้จะถูกเรียกว่า “%NO_x conversion” ซึ่งสมการในการคำนวณเป็นไปตามสมการที่ 4.2

$$NO_x \text{ conversion } (\%) = \frac{NO_{\text{เข้า}} - (NO_{\text{ออก}} - N_2O_{\text{ที่เกิดขึ้น}})}{NO_{\text{เข้า}}} \times 100 \qquad \text{(สมการที่ 4.2)}$$

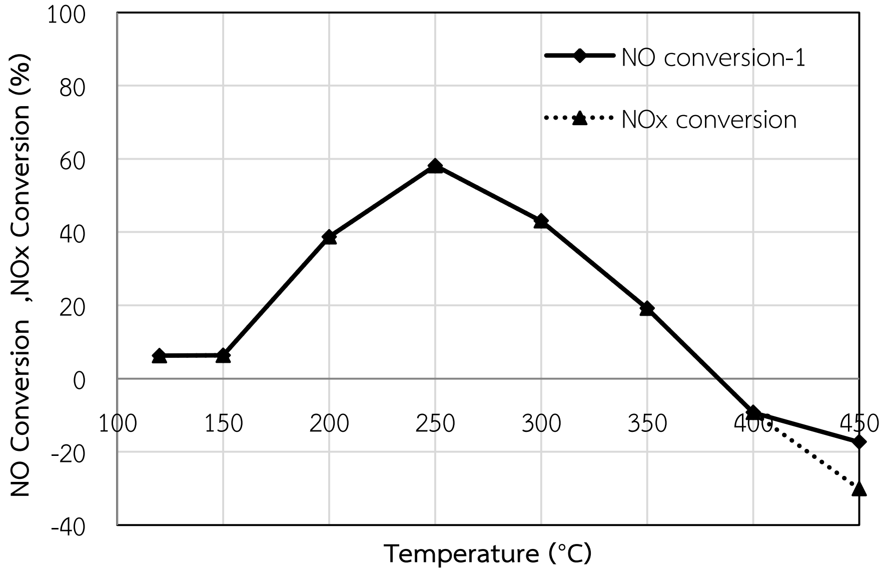
เมื่อทำการคำนวณค่า % NO_x conversion ของทำกตัวเร่งปฏิกิริยา แล้วนำค่าที่ได้มาเปรียบเทียบกับค่า %NO conversion ผลการเปรียบเทียบที่ได้แสดงไว้ในรูปที่ 4.21-4.25



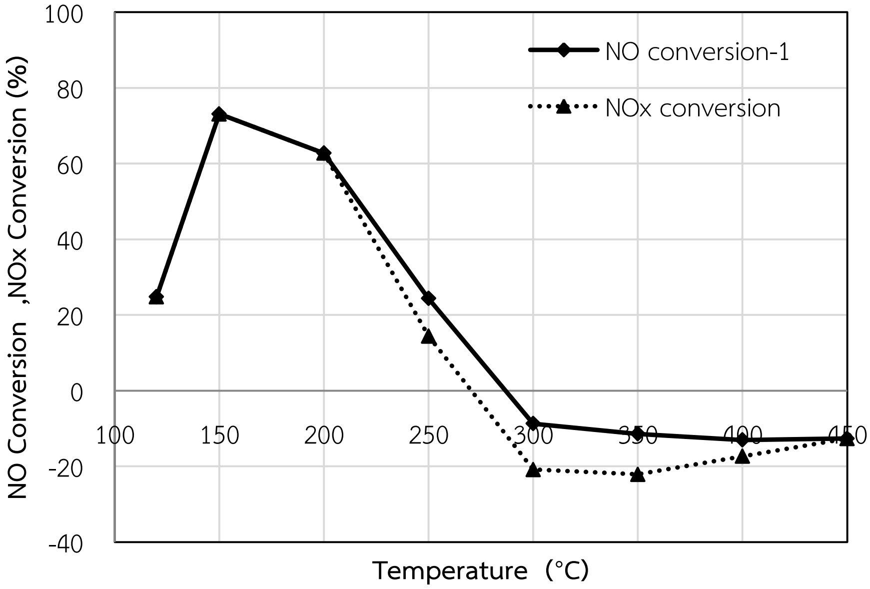
รูปที่ 4.21 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ %NO_X conversion ของ V_2O_5/TiO_2



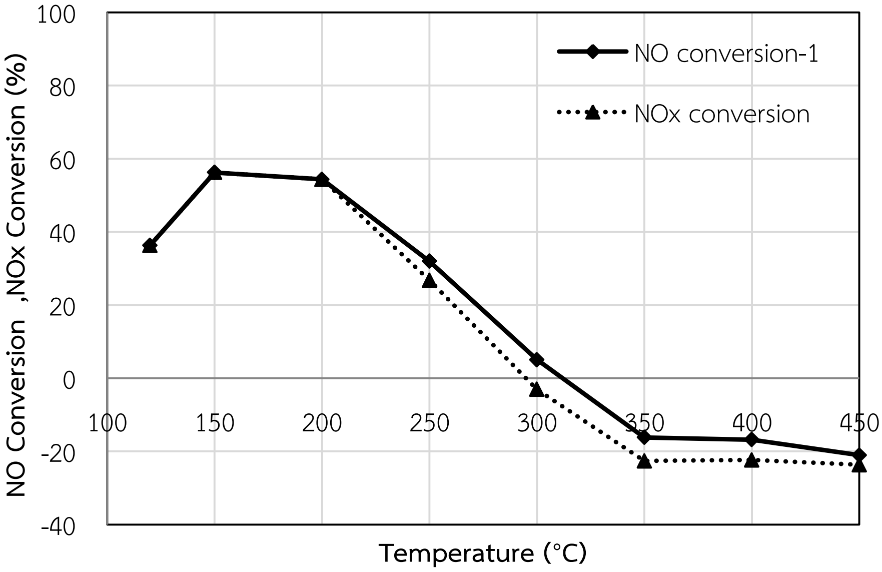
รูปที่ 4.22 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ %NO_X conversion ของ WO_3/TiO_2



รูปที่ 4.23 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ %NO_X conversion ของ MoO_3/TiO_2



รูปที่ 4.24 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ %NO_X conversion ของ V_2O_5-WO_3/TiO_2



รูปที่ 4.25 ผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ %NO_X conversion ของ V_2O_5-MoO_3/TiO_2

จากการเปรียบเทียบกับค่า %NO conversion และค่า $\%NO_x$ conversion ของตัวเร่งปฏิกิริยาทุกตัว พบว่าค่า $\%NO_x$ conversion ที่ได้นั้นมีค่าน้อยกว่า ค่า %NO conversion ที่ช่วงอุณหภูมิสูงซึ่งเป็นช่วงที่เกิดปฏิกิริยาข้างเคียง ซึ่งค่า $\%NO_x$ conversion ทำให้เห็นได้ชัดเจนว่าการใช้ %NO conversion ในการบอกถึงประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยานั้น อาจจะได้ค่าที่ไม่ถูกต้อง การใช้ค่า $\%NO_x$ conversion จะเป็นการบอกประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่คลอบคลุมถึงผลิตภัณฑ์ข้างเคียงที่เกิดขึ้นมากกว่า ทำให้สามารถเลือกช่วงอุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา SCR ของตัวเร่งปฏิกิริยาได้ดีกว่า

เมื่อพิจารณาค่า $\%NO_x$ conversion ของตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 จะเห็นว่าช่วงอุณหภูมิในการทำปฏิกิริยาที่เหมาะสมของตัวเร่งปฏิกิริยานี้จะอยู่ในช่วง 150-200 °C ซึ่งเป็นช่วงอุณหภูมิต่ำ

เมื่อพิจารณาตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 นั้นจะเห็นได้ว่าถ้าใช้ค่า %NO conversion ในการเลือกช่วงอุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา ที่ช่วงอุณหภูมิ 250-350 °C จะเป็นช่วงที่เหมาะสมในการกำจัด NO แต่เมื่อพิจารณาค่า $\%NO_x$ conversion แล้วจะเห็นได้ชัดเจนเลยว่าที่ช่วงอุณหภูมินี้เป็นช่วงที่ไม่เหมาะสมในการกำจัด NO เพราะในช่วงอุณหภูมินี้แม้ว่าจะให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO สูง แต่ก็ก่อให้เกิด N_2O ด้วยเช่นกัน ดังนั้นหากมีการใช้งานตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 ที่เตรียมได้นั้น ช่วงอุณหภูมิในการทำปฏิกิริยาที่เหมาะสมควรเป็นที่ 200-250 °C เพราะช่วงอุณหภูมินี้ไม่ก่อให้เกิด N_2O ขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR

เมื่อพิจารณาผลการเปรียบเทียบค่า %NO conversion กับ $\%NO_X$ conversion ของตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 จะเห็นว่าค่า %NO conversion และ $\%NO_X$ conversion ไม่แตกต่างกันยกเว้นที่อุณหภูมิ 450 °C ซึ่งเกิด N_2O ขึ้น ดังนั้นหากมีการเลือกใช้ตัวเร่งปฏิกิริยานี้ในการกำจัด NO ช่วงอุณหภูมิที่เหมาะสมควรจะเป็นช่วง 200-300 °C

ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมทั้งสองชนิดที่เตรียมได้นั้น เมื่อพิจารณาค่า $\%NO_X$ conversion แล้วจะพบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองตัวนี้มีช่วงอุณหภูมิที่เหมาะสมในการกำจัด NO อยู่ที่ 150-200 °C ซึ่งช่วงอุณหภูมินี้ให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO ที่สูงและยังไม่ก่อให้เกิด N_2O ขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR อีกด้วย

บทที่ 5

สรุปผลการวิจัยและข้อเสนอแนะ

5.1 สรุปผลการวิจัย

จากการศึกษาการเกิด N_2O และ SO_3 บนตัวเร่งปฏิกิริยา SCR ประเภทวานาเดียม โดยเลือกเอาออกไซด์ของโลหะวานาเดียม ทังสเตนและโมลิบดินัม มาทำการศึกษาในองค์ประกอบของก๊าซที่มี O_2 และ H_2O สูงถึง 15 %vol. นั้นพบว่า

- ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ทั้งหมดนั้นมีเสถียรภาพในระหว่างการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา

- การเกิด N_2O ของตัวเร่งปฏิกิริยาแต่ละตัวเกิดผ่านปฏิกิริยาที่ไม่เหมือนกัน โดย
  - ตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5 /TiO_2 นั้น N_2O เกิดขึ้นจากปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3
  - ตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 MoO_3/TiO_2 และ V_2O_5-MoO_3/TiO_2 นั้น N_2O เกิดขึ้นเนื่องจากปฏิกิริยาระหว่าง NO กับ NH_3 และ
  - ตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2 นั้น N_2O เกิดขึ้นจากทั้งปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3 และปฏิกิริยาระหว่าง NO กับ NH_3

- ไม่พบการเกิดปฏิกิริยาออกซิเดชันของ SO_2 ไปเป็น SO_3

- ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ให้ประสิทธิภาพในการกำจัด NO สูงที่สุด คือ ตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5 /TiO_2 โดยตัวเร่งปฏิกิริยานี้สามารถกำจัด NO ได้ดีที่อุณหภูมิ 150-200 °C อีกทั้งในช่วงอุณหภูมินี้ยังไม่ก่อให้เกิด N_2O ขึ้นในระหว่างปฏิกิริยา SCR

5.2 ข้อเสนอแนะ

เนื่องจากในการทดสอบการเกิด N_2O ในงานวิจัยนี้ใช้การวัดปริมาณ NO ที่เกิดขึ้นหรือหายไปในระหว่างปฏิกิริยา ยังขาดข้อมูลในส่วนของปริมาณ NH_3 ที่หายไปในระหว่างปฏิกิริยา SCR ซึ่งข้อมูล NH_3 นี้อาจจะช่วยยืนยันว่าการเกิด N_2O ในระหว่างปฏิกิริยา SCR นั้นเป็นไปตามสมมติฐานจากงานวิจัยนี้หรือไม่ ซึ่งหากได้ข้อมูลในส่วนนี้จะทำให้สามารถอธิบายได้อย่างชัดเจนขึ้นถึงที่มาของ N_2O ได้ดียิ่งขึ้น

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

รายการอ้างอิง

[1] Busca, G., Lietti, L., Ramis, G., and Berti, F. Chemical and mechanistic aspects of the selective catalytic reduction of NO_x by ammonia over oxide catalysts: A review. Applied Catalysis B: Environmental 18(1–2) (1998): 1-36.

[2] Dunn, J.P., Koppula, P.R., G. Stenger, H., and Wachs, I.E. Oxidation of sulfur dioxide to sulfur trioxide over supported vanadia catalysts. Applied Catalysis B: Environmental 19(2) (1998): 103-117.

[3] Dunn, J.P., Stenger Jr, H.G., and Wachs, I.E. Oxidation of SO_2over Supported Metal Oxide Catalysts. Journal of Catalysis 181(2) (1999): 233-243.

[4] Yates, M., Martín, J.A., Martín-Luengo, M.Á., Suárez, S., and Blanco, J. N_2O formation in the ammonia oxidation and in the SCR process with V_2O_5-WO_3 catalysts. Catalysis Today 107–108(0) (2005): 120-125.

[5] Martín, J.A., Yates, M., Ávila, P., Suárez, S., and Blanco, J. Nitrous oxide formation in low temperature selective catalytic reduction of nitrogen oxides with V_2O_5/TiO_2 catalysts. Applied Catalysis B: Environmental 70(1–4) (2007): 330-334.

[6] T., M. and C., K. Selective Catalytic Reduction of NO in Gas Turbine Exhaust Gas with NH3. Pathumwan Academic Journal 2(5) (2012): 1-9.

[7] T., M. and B., T. V_2O_5-MoO_3/TiO_2 Catalysts for the Selective Catalytic Reduction of NO in Gas Turbine Exhaust Gas with NH3. Pathumwan Academic Journal 3(8) (2013): 1-10.

[8] Heck, R.M. Catalytic abatement of nitrogen oxides–stationary applications. Catalysis Today 53(4) (1999): 519-523.

[9] Sultana, A., Sasaki, M., Suzuki, K., and Hamada, H. Tuning the NO_x conversion of Cu-Fe/ZSM-5 catalyst in NH3-SCR. Catalysis Communications 41(0) (2013): 21-25.

[10] Ayari, F., Mhamdi, M., Álvarez-Rodríguez, J., Ruiz, A.R.G., Delahay, G., and Ghorbel, A. Selective catalytic reduction of NO with NH_3 over Cr-ZSM-5 catalysts: General characterization and catalysts screening. Applied Catalysis B: Environmental 134–135(0) (2013): 367-380.

[11] Pereda-Ayo, B., De La Torre, U., Romero-Sáez, M., Aranzabal, A., González-Marcos, J.A., and González-Velasco, J.R. Influence of the washcoat characteristics on NH_3-SCR behavior of Cu-zeolite monoliths. Catalysis Today 216(0) (2013): 82-89.

[12] Meng, B., Zhao, Z., Wang, X., Liang, J., and Qiu, J. Selective catalytic reduction of nitrogen oxides by ammonia over Co_3O_4 nanocrystals with different shapes. Applied Catalysis B: Environmental 129(0) (2013): 491-500.

[13] Jiang, B., Li, Z., and Lee, S.-c. Mechanism study of the promotional effect of O_2 on low-temperature SCR reaction on Fe–Mn/TiO_2 by DRIFT. Chemical Engineering Journal 225(0) (2013): 52-58.

[14] Liu, C., et al. Characterization of CeO_2–WO_3 catalysts prepared by different methods for selective catalytic reduction of NO_x with NH_3. Catalysis Communications 40(0) (2013): 145-148.

[15] Wang, C., Yang, S., Chang, H., Peng, Y., and Li, J. Dispersion of tungsten oxide on SCR performance of $V_2O_5WO_3/TiO_2$: Acidity, surface species and catalytic activity. Chemical Engineering Journal 225(0) (2013): 520-527.

[16] Liu, F., Asakura, K., Xie, P., Wang, J., and He, H. An XAFS study on the specific microstructure of active species in iron titanate catalyst for NH_3-SCR of NO_x. Catalysis Today 201(0) (2013): 131-138.

[17] Liu, F., et al. Highly dispersed iron vanadate catalyst supported on TiO_2 for the selective catalytic reduction of NO_x with NH_3. Journal of Catalysis 307(0) (2013): 340-351.

[18] Huang, H.-f., Jin, L.-l., Lu, H.-F., Yu, H., and Chen, Y.-j. Monolithic Cr–V/TiO_2/cordierite catalysts prepared by in-situ precipitation and impregnation for low-temperature NH_3-SCR reactions. Catalysis Communications 34(0) (2013): 1-4.

[19] Chang, H., et al. Ge, Mn-doped CeO_2–WO_3 catalysts for NH_3–SCR of NO_x: Effects of SO_2 and H_2 regeneration. Catalysis Today 201(0) (2013): 139-144.

[20] Koh, H.-L. and Park, H.-K. Characterization of MoO_3–V_2O_5/Al_2O_3 catalysts for selective catalytic reduction of NO by NH_3. Journal of Industrial and Engineering Chemistry 19(1) (2013): 73-79.

[21] Mejía-Centeno, I., Castillo, S., Camposeco, R., and Fuentes, G.A. SCR of NO_x by NH_3 over model catalysts: The kinetic data-linear free energy relation. Catalysis Communications 31(0) (2013): 11-15.

[22] Lee, K.J., Kumar, P.A., Maqbool, M.S., Rao, K.N., Song, K.H., and Ha, H.P. Ceria added Sb-V_2O_5/TiO_2 catalysts for low temperature NH_3 SCR: Physico-chemical properties and catalytic activity. Applied Catalysis B: Environmental 142–143(0) (2013): 705-717.

[23] Panahi, P.N., Salari, D., Niaei, A., and Mousavi, S.M. NO reduction over nanostructure M-Cu/ZSM-5 (M: Cr, Mn, Co and Fe) bimetallic catalysts and

optimization of catalyst preparation by RSM. Journal of Industrial and Engineering Chemistry 19(6) (2013): 1793-1799.

[24] Metkar, P.S., Harold, M.P., and Balakotaiah, V. Experimental and kinetic modeling study of NH_3-SCR of NO_x on Fe-ZSM-5, Cu-chabazite and combined Fe- and Cu-zeolite monolithic catalysts. Chemical Engineering Science 87(0) (2013): 51-66.

[25] Baran, R., Onfroy, T., Grzybek, T., and Dzwigaj, S. Influence of the nature and environment of vanadium in VSiBEA zeolite on selective catalytic reduction of NO with ammonia. Applied Catalysis B: Environmental 136–137(0) (2013): 186-192.

[26] Guo, R.-t., et al. Effect of preparation methods on the performance of CeO_2/Al_2O_3 catalysts for selective catalytic reduction of NO with NH_3. Journal of Industrial and Engineering Chemistry 19(6) (2013): 2022-2025.

[27] Qu, R., Gao, X., Cen, K., and Li, J. Relationship between structure and performance of a novel cerium-niobium binary oxide catalyst for selective catalytic reduction of NO with NH_3. Applied Catalysis B: Environmental 142–143(0) (2013): 290-297.

[28] Yang, S., et al. Novel effect of SO_2 on the SCR reaction over CeO_2: Mechanism and significance. Applied Catalysis B: Environmental 136–137(0) (2013): 19-28.

[29] Boningari, T., Koirala, R., and Smirniotis, P.G. Low-temperature catalytic reduction of NO by NH_3 over vanadia-based nanoparticles prepared by flame-assisted spray pyrolysis: Influence of various supports. Applied Catalysis B: Environmental 140–141(0) (2013): 289-298.

[30] Gu, T., Jin, R., Liu, Y., Liu, H., Weng, X., and Wu, Z. Promoting effect of calcium doping on the performances of MnO_x/TiO_2 catalysts for NO reduction with NH_3 at low temperature. Applied Catalysis B: Environmental 129(0) (2013): 30-38.

[31] Zhao, W., Zhong, Q., Pan, Y., and Zhang, R. Systematic effects of S-doping on the activity of V_2O_5/TiO_2 catalyst for low-temperature NH_3-SCR. Chemical Engineering Journal 228(0) (2013): 815-823.

[32] Li, X., Li, Y., Deng, S., and A. Rong, T. A Ce–Sn–O_x catalyst for the selective catalytic reduction of NO_x with NH_3. Catalysis Communications 40(0) (2013): 47-50.

[33] Zhang, X., Shen, B., Wang, K., and Chen, J. A contrastive study of the introduction of cobalt as a modifier for active components and supports of

catalysts for NH_3-SCR. Journal of Industrial and Engineering Chemistry 19(4) (2013): 1272-1279.

[34] Wang, X., Zheng, Y., and Lin, J. Highly dispersed Mn–Ce mixed oxides supported on carbon nanotubes for low-temperature NO reduction with NH_3. Catalysis Communications 37(0) (2013): 96-99.

[35] Shi, Y., Chen, S., Sun, H., Shu, Y., and Quan, X. Low-temperature selective catalytic reduction of NOx with NH3 over hierarchically macro-mesoporous Mn/TiO_2. Catalysis Communications 42(0) (2013): 10-13.

[36] Su, Y., et al. MnOx supported on carbon nanotubes by different methods for the SCR of NO with NH_3. Catalysis Today 201(0) (2013): 115-121.

[37] Peng, Y., Liu, C., Zhang, X., and Li, J. The effect of SiO_2 on a novel CeO_2–WO_3/TiO_2 catalyst for the selective catalytic reduction of NO with NH_3. Applied Catalysis B: Environmental 140–141(0) (2013): 276-282.

[38] Ma, Z., Yang, H., Liu, F., and Zhang, X. Interaction between SO_2 and Fe–Cu–O_x/CNTs–TiO_2 catalyst and its influence on NO reduction with NH_3. Applied Catalysis A: General 467(0) (2013): 450-455.

[39] Si, Z., Weng, D., Wu, X., Ma, Z., Ma, J., and Ran, R. Lattice oxygen mobility and acidity improvements of NiO–CeO_2–ZrO_2 catalyst by sulfation for NO_x reduction by ammonia. Catalysis Today 201(0) (2013): 122-130.

[40] Lei, Z., Han, B., Yang, K., and Chen, B. Influence of H_2O on the low-temperature NH_3-SCR of NO over V_2O_5/AC catalyst: An experimental and modeling study. Chemical Engineering Journal 215–216(0) (2013): 651-657.

[41] Liu, Z., Yi, Y., Zhang, S., Zhu, T., Zhu, J., and Wang, J. Selective catalytic reduction of NO_x with NH_3 over Mn-Ce mixed oxide catalyst at low temperatures. Catalysis Today 216(0) (2013): 76-81.

[42] Karami, A. and Salehi, V. The influence of chromium substitution on an iron–titanium catalyst used in the selective catalytic reduction of NO. Journal of Catalysis 292(0) (2012): 32-43.

[43] Sultana, A., Sasaki, M., and Hamada, H. Influence of support on the activity of Mn supported catalysts for SCR of NO with ammonia. Catalysis Today 185(1) (2012): 284-289.

[44] Guan, B., Lin, H., Zhu, L., Tian, B., and Huang, Z. Effect of ignition temperature for combustion synthesis on the selective catalytic reduction of NO_x with NH_3 over $Ti_{0.9}Ce_{0.05}V_{0.05}O_{2-\delta}$ nanocomposites catalysts prepared by solution combustion route. Chemical Engineering Journal 181–182(0) (2012): 307-322.

[45] Thirupathi, B. and Smirniotis, P.G. Nickel-doped Mn/TiO_2 as an efficient catalyst for the low-temperature SCR of NO with NH_3: Catalytic evaluation and characterizations. Journal of Catalysis 288(0) (2012): 74-83.

[46] Xu, H., Zhang, Q., Qiu, C., Lin, T., Gong, M., and Chen, Y. Tungsten modified MnO_x–CeO_2/ZrO_2 monolith catalysts for selective catalytic reduction of NO_x with ammonia. Chemical Engineering Science 76(0) (2012): 120-128.

[47] Chang, H., et al. Effect of Sn on MnO_x–CeO_2 catalyst for SCR of NO_x by ammonia: Enhancement of activity and remarkable resistance to SO_2. Catalysis Communications 27(0) (2012): 54-57.

[48] Ko, J.H., et al. Low temperature selective catalytic reduction of NO with NH_3 over Mn supported on $Ce_{0.65}Zr_{0.35}O_2$ prepared by supercritical method: Effect of Mn precursors on NO reduction. Catalysis Today 185(1) (2012): 290-295.

[49] Jemal, J., et al. NO reduction with NH_3 under oxidizing atmosphere on copper loaded hydroxyapatite. Applied Catalysis B: Environmental 113–114(0) (2012): 255-260.

[50] Xie, J., Fang, D., He, F., Chen, J., Fu, Z., and Chen, X. Performance and mechanism about MnO_x species included in MnO_x/TiO_2 catalysts for SCR at low temperature. Catalysis Communications 28(0) (2012): 77-81.

[51] Ma, L., Li, J., Arandiyan, H., Shi, W., Liu, C., and Fu, L. Influence of calcination temperature on Fe/HBEA catalyst for the selective catalytic reduction of NO_x with NH_3. Catalysis Today 184(1) (2012): 145-152.

[52] Wang, L., Li, W., Qi, G., and Weng, D. Location and nature of Cu species in Cu/SAPO-34 for selective catalytic reduction of NO with NH_3. Journal of Catalysis 289(0) (2012): 21-29.

[53] Wang, L., et al. Manganese oxides supported on multi-walled carbon nanotubes for selective catalytic reduction of NO with NH_3: Catalytic activity and characterization. Chemical Engineering Journal 192(0) (2012): 232-241.

[54] Casanova, M., Schermanz, K., Llorca, J., and Trovarelli, A. Improved high temperature stability of NH_3-SCR catalysts based on rare earth vanadates supported on $TiO_2WO_3SiO_2$. Catalysis Today 184(1) (2012): 227-236.

[55] Ochońska, J., et al. Copper exchanged ultrastable zeolite Y – A catalyst for NH_3-SCR of NOx from stationary biogas engines. Catalysis Today 191(1) (2012): 6-11.

[56] Ettireddy, P.R., Ettireddy, N., Boningari, T., Pardemann, R., and Smirniotis, P.G. Investigation of the selective catalytic reduction of nitric oxide with ammonia

over Mn/TiO_2 catalysts through transient isotopic labeling and in situ FT-IR studies. Journal of Catalysis 292(0) (2012): 53-63.

[57] Kompio, P.G.W.A., Brückner, A., Hipler, F., Auer, G., Löffler, E., and Grünert, W. A new view on the relations between tungsten and vanadium in $V_2O_5WO_3/TiO_2$ catalysts for the selective reduction of NO with NH_3. Journal of Catalysis 286(0) (2012): 237-247.

[58] Hu, P., Huang, Z., Hua, W., Gu, X., and Tang, X. Effect of H_2O on catalytic performance of manganese oxides in NO reduction by NH_3. Applied Catalysis A: General 437–438(0) (2012): 139-148.

[59] Forzatti, P., Nova, I., Tronconi, E., Kustov, A., and Thøgersen, J.R. Effect of operating variables on the enhanced SCR reaction over a commercial V_2O_5–WO_3/TiO_2 catalyst for stationary applications. Catalysis Today 184(1) (2012): 153-159.

[60] Metkar, P.S., Harold, M.P., and Balakotaiah, V. Selective catalytic reduction of NO_x on combined Fe- and Cu-zeolite monolithic catalysts: Sequential and dual layer configurations. Applied Catalysis B: Environmental 111–112(0) (2012): 67-80.

[61] Li, Q., Yang, H., Ma, Z., and Zhang, X. Selective catalytic reduction of NO with NH_3 over CuO_X-carbonaceous materials. Catalysis Communications 17(0) (2012): 8-12.

[62] Lee, S.M., Park, K.H., and Hong, S.C. MnO_x/CeO_2–TiO_2 mixed oxide catalysts for the selective catalytic reduction of NO with NH_3 at low temperature. Chemical Engineering Journal 195–196(0) (2012): 323-331.

[63] Moon Lee, S., Su Kim, S., and Chang Hong, S. Systematic mechanism study of the high temperature SCR of NO_X by NH_3 over a W/TiO_2 catalyst. Chemical Engineering Science 79(0) (2012): 177-185.

[64] Yang, S., et al. Fe–Ti spinel for the selective catalytic reduction of NO with NH_3: Mechanism and structure–activity relationship. Applied Catalysis B: Environmental 117–118(0) (2012): 73-80.

[65] Zhang, S., Li, H., and Zhong, Q. Promotional effect of F-doped V_2O_5–WO_3/TiO_2 catalyst for NH_3-SCR of NO at low-temperature. Applied Catalysis A: General 435–436(0) (2012): 156-162.

[66] Zhang, S., Liu, X., Zhong, Q., and Yao, Y. Effect of Y doping on oxygen vacancies of TiO_2 supported MnO_X for selective catalytic reduction of NO with NH_3 at low temperature. Catalysis Communications 25(0) (2012): 7-11.

[67] Stanciulescu, M., et al. Low-temperature selective catalytic reduction of NOx with NH3 over Mn-containing catalysts. Applied Catalysis B: Environmental 123–124(0) (2012): 229-240.

[68] Boningari, T., Koirala, R., and Smirniotis, P.G. Low-temperature selective catalytic reduction of NO with NH_3 over V/ZrO_2 prepared by flame-assisted spray pyrolysis: Structural and catalytic properties. Applied Catalysis B: Environmental 127(0) (2012): 255-264.

[69] Shan, W., Liu, F., He, H., Shi, X., and Zhang, C. A superior Ce-W-Ti mixed oxide catalyst for the selective catalytic reduction of NOx with NH3. Applied Catalysis B: Environmental 115–116(0) (2012): 100-106.

[70] Chen, X., Cao, S., Weng, X., Wang, H., and Wu, Z. Effects of morphology and structure of titanate supports on the performance of ceria in selective catalytic reduction of NO. Catalysis Communications 26(0) (2012): 178-182.

[71] Peng, Y., et al. Manganese doped CeO2–WO3 catalysts for the selective catalytic reduction of NOx with NH3: An experimental and theoretical study. Catalysis Communications 19(0) (2012): 127-131.

[72] Liu, Y., Gu, T., Wang, Y., Weng, X., and Wu, Z. Influence of Ca doping on MnOx/TiO2 catalysts for low-temperature selective catalytic reduction of NOx by NH3. Catalysis Communications 18(0) (2012): 106-109.

[73] Ma, Z., Yang, H., Li, Q., Zheng, J., and Zhang, X. Catalytic reduction of NO by NH3 over Fe–Cu–OX/CNTs-TiO2 composites at low temperature. Applied Catalysis A: General 427–428(0) (2012): 43-48.

[74] Si, Z., Weng, D., Wu, X., Ran, R., and Ma, Z. NH3-SCR activity, hydrothermal stability, sulfur resistance and regeneration of $Ce_{0.75}Zr_{0.25}O_2$–PO_4^{3-};–catalyst. Catalysis Communications 17(0) (2012): 146-149.

[75] Ma, Z., Weng, D., Wu, X., Si, Z., and Wang, B. A novel Nb–Ce/WOx–TiO2 catalyst with high NH3-SCR activity and stability. Catalysis Communications 27(0) (2012): 97-100.

[76] Shi, A., Wang, X., Yu, T., and Shen, M. The effect of zirconia additive on the activity and structure stability of V2O5/WO3-TiO2 ammonia SCR catalysts. Applied Catalysis B: Environmental 106(3–4) (2011): 359-369.

[77] Sultana, A., Nanba, T., Haneda, M., Sasaki, M., and Hamada, H. Influence of co-cations on the formation of Cu+ species in Cu/ZSM-5 and its effect on selective catalytic reduction of NOx with NH3. Applied Catalysis B: Environmental 101(1–2) (2010): 61-67.

[78] Thirupathi, B. and Smirniotis, P.G. Co-doping a metal (Cr, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ce, and Zr) on Mn/TiO2 catalyst and its effect on the selective reduction of NO with NH3 at low-temperatures. Applied Catalysis B: Environmental 110(0) (2011): 195-206.

[79] Wang, C., Sun, L., Cao, Q., Hu, B., Huang, Z., and Tang, X. Surface structure sensitivity of manganese oxides for low-temperature selective catalytic reduction of NO with NH3. Applied Catalysis B: Environmental 101(3–4) (2011): 598-605.

[80] Fickel, D.W., D'Addio, E., Lauterbach, J.A., and Lobo, R.F. The ammonia selective catalytic reduction activity of copper-exchanged small-pore zeolites. Applied Catalysis B: Environmental 102(3–4) (2011): 441-448.

[81] Liu, F., Asakura, K., He, H., Shan, W., Shi, X., and Zhang, C. Influence of sulfation on iron titanate catalyst for the selective catalytic reduction of NOx with NH3. Applied Catalysis B: Environmental 103(3–4) (2011): 369-377.

[82] Zhou, G., et al. In situ DRIFTS study of NO reduction by NH3 over Fe–Ce–Mn/ZSM-5 catalysts. Catalysis Today 175(1) (2011): 157-163.

[83] Wang, H., Chen, X., Weng, X., Liu, Y., Gao, S., and Wu, Z. Enhanced catalytic activity for selective catalytic reduction of NO over titanium nanotube-confined CeO2 catalyst. Catalysis Communications 12(11) (2011): 1042-1045.

[84] Tounsi, H., Djemal, S., Petitto, C., and Delahay, G. Copper loaded hydroxyapatite catalyst for selective catalytic reduction of nitric oxide with ammonia. Applied Catalysis B: Environmental 107(1–2) (2011): 158-163.

[85] Luo, J.-Y., Hou, X., Wijayakoon, P., Schmieg, S.J., Li, W., and Epling, W.S. Spatially resolving SCR reactions over a Fe/zeolite catalyst. Applied Catalysis B: Environmental 102(1–2) (2011): 110-119.

[86] Chen, L., Li, J., and Ge, M. The poisoning effect of alkali metals doping over nano V2O5–WO3/TiO2 catalysts on selective catalytic reduction of NOx by NH3. Chemical Engineering Journal 170(2–3) (2011): 531-537.

[87] Zhu, L., Huang, B., Wang, W., Wei, Z., and Ye, D. Low-temperature SCR of NO with NH3 over CeO2 supported on modified activated carbon fibers. Catalysis Communications 12(6) (2011): 394-398.

[88] Metkar, P.S., Salazar, N., Muncrief, R., Balakotaiah, V., and Harold, M.P. Selective catalytic reduction of NO with NH3 on iron zeolite monolithic catalysts: Steady-state and transient kinetics. Applied Catalysis B: Environmental 104(1–2) (2011): 110-126.

[89] Zhang, Q., Qiu, C., Xu, H., Lin, T., Gong, M., and Chen, Y. Novel promoting effects of tungsten on the selective catalytic reduction of NO by NH3 over MnOx–CeO2 monolith catalyst. Catalysis Communications 16(1) (2011): 20-24.

[90] Zhang, Q., et al. Low-temperature selective catalytic reduction of NO with NH3 over monolith catalyst of MnOx/CeO2–ZrO2–Al2O3. Catalysis Today 175(1) (2011): 171-176.

[91] Yang, S., Wang, C., Li, J., Yan, N., Ma, L., and Chang, H. Low temperature selective catalytic reduction of NO with NH3 over Mn–Fe spinel: Performance, mechanism and kinetic study. Applied Catalysis B: Environmental 110(0) (2011): 71-80.

[92] Kristensen, S.B., Kunov-Kruse, A.J., Riisager, A., Rasmussen, S.B., and Fehrmann, R. High performance vanadia–anatase nanoparticle catalysts for the Selective Catalytic Reduction of NO by ammonia. Journal of Catalysis 284(1) (2011): 60-67.

[93] Gao, X., Liu, S., Zhang, Y., Du, X., Luo, Z., and Cen, K. Low temperature selective catalytic reduction of NO and NO2 with NH3 over activated carbon-supported vanadium oxide catalyst. Catalysis Today 175(1) (2011): 164-170.

[94] Fan, X., Qiu, F., Yang, H., Tian, W., Hou, T., and Zhang, X. Selective catalytic reduction of NOX with ammonia over Mn–Ce–OX/TiO2-carbon nanotube composites. Catalysis Communications 12(14) (2011): 1298-1301.

[95] Chen, X., Gao, S., Wang, H., Liu, Y., and Wu, Z. Selective catalytic reduction of NO over carbon nanotubes supported CeO2. Catalysis Communications 14(1) (2011): 1-5.

[96] Liu, F., et al. Selective catalytic reduction of NO with NH3 over iron titanate catalyst: Catalytic performance and characterization. Applied Catalysis B: Environmental 96(3–4) (2010): 408-420.

[97] Liu, F. and He, H. Selective catalytic reduction of NO with NH3 over manganese substituted iron titanate catalyst: Reaction mechanism and H2O/SO2 inhibition mechanism study. Catalysis Today 153(3–4) (2010): 70-76.

[98] Liu, H., Wei, L., Yue, R., and Chen, Y. CrOx–CeO2 binary oxide as a superior catalyst for NO reduction with NH3 at low temperature in presence of CO. Catalysis Communications 11(9) (2010): 829-833.

[99] Sun, H., Shu, Y., Quan, X., Chen, S., Pang, B., and Liu, Z. Experimental and modeling study of selective catalytic reduction of NOx with NH3 over wire mesh honeycomb catalysts. Chemical Engineering Journal 165(3) (2010): 769-775.

[100] Kwak, J.H., Tonkyn, R.G., Kim, D.H., Szanyi, J., and Peden, C.H.F. Excellent activity and selectivity of Cu-SSZ-13 in the selective catalytic reduction of NOx with NH3. Journal of Catalysis 275(2) (2010): 187-190.

[101] Yu, J., et al. Sulfur poisoning resistant mesoporous Mn-base catalyst for low-temperature SCR of NO with NH3. Applied Catalysis B: Environmental 95(1–2) (2010): 160-168.

[102] Zhu, J., et al. Studies on surface structure of MxOy/MoO3/CeO2 system (M = Ni, Cu, Fe) and its influence on SCR of NO by NH3. Applied Catalysis B: Environmental 95(1–2) (2010): 144-152.

[103] Cha, J.S., et al. The low-temperature SCR of NO over rice straw and sewage sludge derived char. Chemical Engineering Journal 156(2) (2010): 321-327.

[104] Fedeyko, J.M., Chen, B., and Chen, H.-Y. Mechanistic study of the low temperature activity of transition metal exchanged zeolite SCR catalysts. Catalysis Today 151(3–4) (2010): 231-236.

[105] Kern, P., Klimczak, M., Heinzelmann, T., Lucas, M., and Claus, P. High-throughput study of the effects of inorganic additives and poisons on NH3-SCR catalysts. Part II: Fe–zeolite catalysts. Applied Catalysis B: Environmental 95(1–2) (2010): 48-56.

[106] Klimczak, M., Kern, P., Heinzelmann, T., Lucas, M., and Claus, P. High-throughput study of the effects of inorganic additives and poisons on NH3-SCR catalysts—Part I: V2O5–WO3/TiO2 catalysts. Applied Catalysis B: Environmental 95(1–2) (2010): 39-47.

[107] Chen, L., Li, J., Ge, M., and Zhu, R. Enhanced activity of tungsten modified CeO2/TiO2 for selective catalytic reduction of NOx with ammonia. Catalysis Today 153(3–4) (2010): 77-83.

[108] Bukhtiyarova, M.V., Ivanova, A.S., Slavinskaya, E.M., Plyasova, L.M., Kaichev, V.V., and Kuznetsov, P.A. Selective catalytic reduction of nitrogen oxide by ammonia on substituted strontium ferrites. Applied Catalysis A: General 384(1–2) (2010): 230-240.

[109] Colombo, M., Nova, I., and Tronconi, E. A comparative study of the NH3-SCR reactions over a Cu-zeolite and a Fe-zeolite catalyst. Catalysis Today 151(3–4) (2010): 223-230.

[110] Kim, M.H., Ham, S.-W., and Lee, J.-B. Oxidation of gaseous elemental mercury by hydrochloric acid over CuCl2/TiO2-based catalysts in SCR process. Applied Catalysis B: Environmental 99(1–2) (2010): 272-278.

[111] Lin, Q., Li, J., Ma, L., and Hao, J. Selective catalytic reduction of NO with NH3 over Mn–Fe/USY under lean burn conditions. Catalysis Today 151(3–4) (2010): 251-256.

[112] Liu, Q., Liu, Z., and Su, J. Al2O3-coated cordierite honeycomb supported CuO catalyst for selective catalytic reduction of NO by NH3: Surface properties and reaction mechanism. Catalysis Today 158(3–4) (2010): 370-376.

[113] Jin, R., Liu, Y., Wu, Z., Wang, H., and Gu, T. Relationship between SO2 poisoning effects and reaction temperature for selective catalytic reduction of NO over Mn–Ce/TiO2 catalyst. Catalysis Today 153(3–4) (2010): 84-89.

[114] Brandenberger, S., Kröcher, O., Tissler, A., and Althoff, R. The determination of the activities of different iron species in Fe-ZSM-5 for SCR of NO by NH3. Applied Catalysis B: Environmental 95(3–4) (2010): 348-357.

[115] Bai, S., Zhao, J., Wang, L., and Zhu, Z. SO2-promoted reduction of NO with NH3 over vanadium molecularly anchored on the surface of carbon nanotubes. Catalysis Today 158(3–4) (2010): 393-400.

[116] Gu, T., Liu, Y., Weng, X., Wang, H., and Wu, Z. The enhanced performance of ceria with surface sulfation for selective catalytic reduction of NO by NH3. Catalysis Communications 12(4) (2010): 310-313.

[117] Gao, X., Du, X.-s., Cui, L.-w., Fu, Y.-c., Luo, Z.-y., and Cen, K.-f. A Ce–Cu–Ti oxide catalyst for the selective catalytic reduction of NO with NH3. Catalysis Communications 12(4) (2010): 255-258.

[118] Gao, X., Jiang, Y., Fu, Y., Zhong, Y., Luo, Z., and Cen, K. Preparation and characterization of CeO2/TiO2 catalysts for selective catalytic reduction of NO with NH3. Catalysis Communications 11(5) (2010): 465-469.

[119] Tang, X., Li, J., Sun, L., and Hao, J. Origination of N2O from NO reduction by NH3 over β-MnO2 and α-Mn2O3. Applied Catalysis B: Environmental 99(1–2) (2010): 156-162.

[120] Kim, Y.J., et al. High deNOx performance of Mn/TiO2 catalyst by NH3. Catalysis Today 151(3–4) (2010): 244-250.

[121] Si, Z., Weng, D., Wu, X., Yang, J., and Wang, B. Modifications of CeO2–ZrO2 solid solutions by nickel and sulfate as catalysts for NO reduction with ammonia in excess O2. Catalysis Communications 11(13) (2010): 1045-1048.

[122] Si, Z., Weng, D., Wu, X., Li, J., and Li, G. Structure, acidity and activity of CuOx/WOx–ZrO2 catalyst for selective catalytic reduction of NO by NH3. Journal of Catalysis 271(1) (2010): 43-51.

[123] Chen, Z., Yang, Q., Li, H., Li, X., Wang, L., and Chi Tsang, S. Cr–MnOx mixed-oxide catalysts for selective catalytic reduction of NOx with NH3 at low temperature. Journal of Catalysis 276(1) (2010): 56-65.

[124] Arfaoui, J., Boudali, L.K., Ghorbel, A., and Delahay, G. Effect of vanadium on the behaviour of unsulfated and sulfated Ti-pillared clay catalysts in the SCR of NO by NH3. Catalysis Today 142(3–4) (2009): 234-238.

[125] Boyano, A., Lázaro, M.J., Cristiani, C., Maldonado-Hodar, F.J., Forzatti, P., and Moliner, R. A comparative study of V2O5/AC and V2O5/Al2O3 catalysts for the selective catalytic reduction of NO by NH3. Chemical Engineering Journal 149(1–3) (2009): 173-182.

[126] He, C., Wang, Y., Cheng, Y., Lambert, C.K., and Yang, R.T. Activity, stability and hydrocarbon deactivation of Fe/Beta catalyst for SCR of NO with ammonia. Applied Catalysis A: General 368(1–2) (2009): 121-126.

[127] Pietrogiacomi, D., Magliano, A., Ciambelli, P., Sannino, D., Campa, M.C., and Indovina, V. The effect of sulphation on the catalytic activity of CoOx/ZrO2 for NO reduction with NH3 in the presence of O2. Applied Catalysis B: Environmental 89(1–2) (2009): 33-40.

[128] Liu, F., He, H., Ding, Y., and Zhang, C. Effect of manganese substitution on the structure and activity of iron titanate catalyst for the selective catalytic reduction of NO with NH3. Applied Catalysis B: Environmental 93(1–2) (2009): 194-204.

[129] Sjövall, H., Blint, R.J., and Olsson, L. Detailed kinetic modeling of NH3 SCR over Cu-ZSM-5. Applied Catalysis B: Environmental 92(1–2) (2009): 138-153.

[130] Casapu, M., Kröcher, O., and Elsener, M. Screening of doped MnOx–CeO2 catalysts for low-temperature NO-SCR. Applied Catalysis B: Environmental 88(3–4) (2009): 413-419.

[131] Bukhtiyarova, M.V., et al. Selective catalytic reduction of nitrogen oxide by ammonia on Mn(Fe)-substituted Sr(La) aluminates. Applied Catalysis A: General 357(2) (2009): 193-205.

[132] Iwasaki, M., Yamazaki, K., and Shinjoh, H. Transient reaction analysis and steady-state kinetic study of selective catalytic reduction of NO and NO + NO2 by NH3 over Fe/ZSM-5. Applied Catalysis A: General 366(1) (2009): 84-92.

[133] Balle, P., et al. Study of the selective catalytic reduction of NOx on an efficient Fe/HBEA zeolite catalyst for heavy duty diesel engines. Applied Catalysis B: Environmental 91(3–4) (2009): 587-595.

[134] Balle, P., Geiger, B., and Kureti, S. Selective catalytic reduction of NOx by NH3 on Fe/HBEA zeolite catalysts in oxygen-rich exhaust. Applied Catalysis B: Environmental 85(3–4) (2009): 109-119.

[135] Liu, Q., Liu, Z., and Wu, W. Effect of V2O5 additive on simultaneous SO2 and NO removal from flue gas over a monolithic cordierite-based CuO/Al2O3 catalyst. Catalysis Today 147, Supplement(0) (2009): S285-S289.

[136] Hou, Y., Huang, Z., and Guo, S. Effect of SO2 on V2O5/ACF catalysts for NO reduction with NH3 at low temperature. Catalysis Communications 10(11) (2009): 1538-1541.

[137] Shen, Y., Zhu, S., Qiu, T., and Shen, S. A novel catalyst of CeO2/Al2O3 for selective catalytic reduction of NO by NH3. Catalysis Communications 11(1) (2009): 20-23.

[138] Wu, Z., Jin, R., Wang, H., and Liu, Y. Effect of ceria doping on SO2 resistance of Mn/TiO2 for selective catalytic reduction of NO with NH3 at low temperature. Catalysis Communications 10(6) (2009): 935-939.

[139] Boyano, A., et al. Vanadium-loaded carbon-based monoliths for on-board NO reduction: Influence of nature and concentration of the oxidation agent on activity. Catalysis Today 137(2–4) (2008): 222-227.

[140] Boyano, A., Lombardo, N., Gálvez, M.E., Lázaro, M.J., and Moliner, R. Vanadium-loaded carbon-based monoliths for the on-board NO reduction: Experimental study of operating conditions. Chemical Engineering Journal 144(3) (2008): 343-351.

[141] Gálvez, M.E., Boyano, A., Lázaro, M.J., and Moliner, R. A study of the mechanisms of NO reduction over vanadium loaded activated carbon catalysts. Chemical Engineering Journal 144(1) (2008): 10-20.

[142] Grzybek, T., Klinik, J., Samojeden, B., Suprun, V., and Papp, H. Nitrogen-promoted active carbons as DeNOx catalysts: 1. The influence of modification parameters on the structure and catalytic properties. Catalysis Today 137(2–4) (2008): 228-234.

[143] Grzybek, T., Klinik, J., Motak, M., and Papp, H. Nitrogen-promoted active carbons as catalytic supports: 2. The influence of Mn promotion on the structure and catalytic properties in SCR. Catalysis Today 137(2–4) (2008): 235-241.

[144] Phil, H.H., Reddy, M.P., Kumar, P.A., Ju, L.K., and Hyo, J.S. SO2 resistant antimony promoted V2O5/TiO2 catalyst for NH3-SCR of NOx at low temperatures. Applied Catalysis B: Environmental 78(3–4) (2008): 301-308.

[145] Huang, J., Tong, Z., Huang, Y., and Zhang, J. Selective catalytic reduction of NO with NH3 at low temperatures over iron and manganese oxides supported on mesoporous silica. Applied Catalysis B: Environmental 78(3–4) (2008): 309-314.

[146] Ouzzine, M., Cifredo, G.A., Gatica, J.M., Harti, S., Chafik, T., and Vidal, H. Original carbon-based honeycomb monoliths as support of Cu or Mn catalysts for low-temperature SCR of NO: Effects of preparation variables. Applied Catalysis A: General 342(1–2) (2008): 150-158.

[147] Kröcher, O. and Elsener, M. Chemical deactivation of V2O5/WO3–TiO2 SCR catalysts by additives and impurities from fuels, lubrication oils, and urea solution: I. Catalytic studies. Applied Catalysis B: Environmental 77(3–4) (2008): 215-227.

[148] Xu, W., Yu, Y., Zhang, C., and He, H. Selective catalytic reduction of NO by NH3 over a Ce/TiO2 catalyst. Catalysis Communications 9(6) (2008): 1453-1457.

[149] Zhang, X., Huang, Z., and Liu, Z. Effect of KCl on selective catalytic reduction of NO with NH3 over a V2O5/AC catalyst. Catalysis Communications 9(5) (2008): 842-846.

[150] Wu, Z., Jiang, B., and Liu, Y. Effect of transition metals addition on the catalyst of manganese/titania for low-temperature selective catalytic reduction of nitric oxide with ammonia. Applied Catalysis B: Environmental 79(4) (2008): 347-355.

[151] Wu, Z., Jin, R., Liu, Y., and Wang, H. Ceria modified MnOx/TiO2 as a superior catalyst for NO reduction with NH3 at low-temperature. Catalysis Communications 9(13) (2008): 2217-2220.

[152] A., S. Photocatalytic oxidation of ethylene over thin films of titanium dioxide supported on glass rings. Doctoral dissertation, Chemical Engineering University of Wisconsin, 2003.

[153] B., P. Selective Catalytic Reduction of Nitrogen Oxide by Ammonia over V2O5-WO3-MoO3/TiO2 Catalysts. Master Chemical Engineering Chulalongkorn University.

[154] G. Cristallo, E. Roncari, A. Rinaldo, and Trifirò, F. Study of anatase–rutile transition phase in monolithic catalyst V2O5/TiO2 and V2O5–WO3/TiO2. Applied Catalysis A: General 209 (2001): 249–256.

[155] Young Il Pae, Mu Hee Bae, W.C.P., and Sohn, J.R. Characterization of NiO-TiO2 Modified with WO3 and Catalytic Activity for Acid Catalysis. Bulletin of the Korean Chemical Society 25(12) (2004): 1881-1888.

[156] Kassem, M. Phase Relations in the Al2O3–MoO3 and Al–MoO3 Systems, Investigated by X-ray Powder Diffraction, FTIR,and DTA Techniques Inorganic Materials 42(2) (2006): 165–170.

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

ภาคผนวก

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

ภาคผนวก ก

กราฟมาตรฐานของ Mass flow controller

ก.1 กราฟมาตรฐานของ Mass flow controller

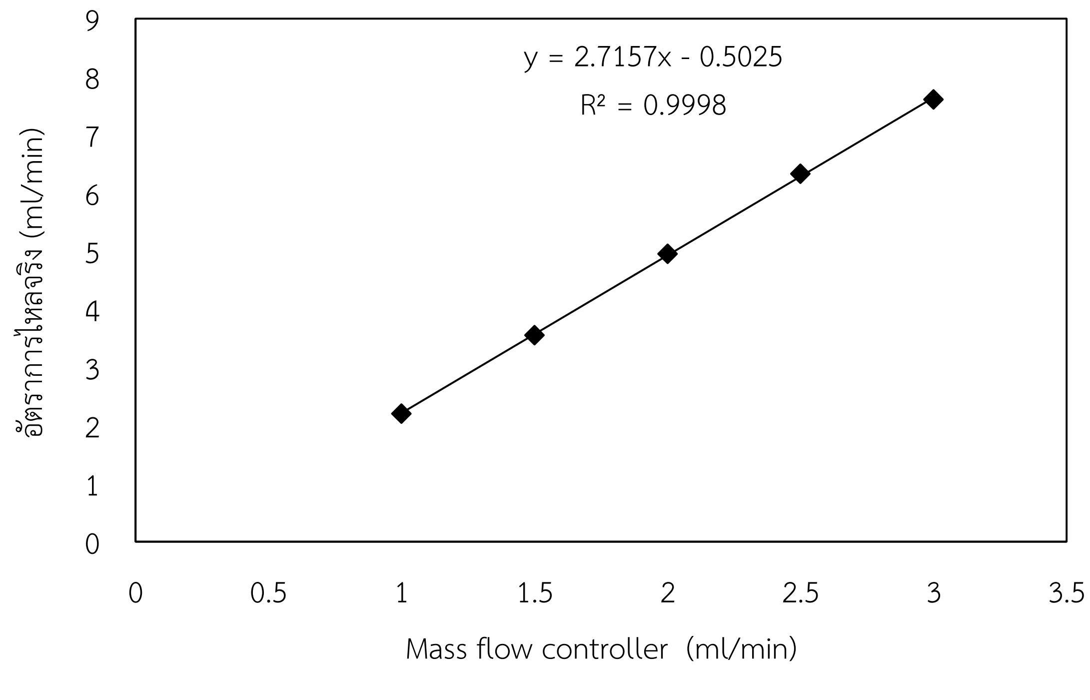
องค์ประกอบของแก๊ส คือ NH_3 NO SO_2 O_2 และN_2 ทำการทดลองโดยวัดด้วย Bubble flow แล้วจับเวลาการไหล

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

ก.1.1 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ NH_3

ตารางที่ ก. 1 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ NH_3 ตั้งแต่ 0-9 ml

Mass flow controller (ml/min)	เวลา (min)			เวลาเฉลี่ย (min)	อัตราการไหลจริง (ml/min)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2	ครั้งที่ 3		
1	4.083	4.083	4.083	4.083	2.204
1.5	2.533	2.533	2.533	2.533	3.553
2	1.817	1.817	1.817	1.817	4.954
2.5	1.433	1.417	1.417	1.422	6.328
3	1.183	1.183	1.183	1.183	7.606

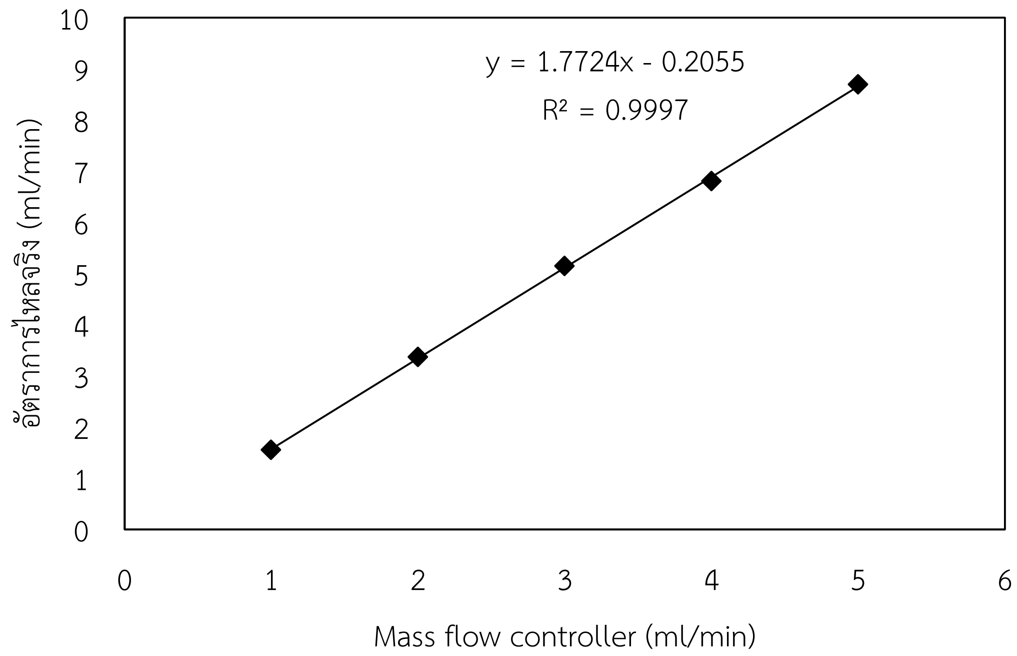


รูปที่ ก. 1 กราฟมาตรฐานของ NH_3

ก.1.2 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ NO

ตารางที่ ก. 2 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ NO ตั้งแต่ 0-2 ml

Mass flow controller (ml/min)	เวลา (min)			เวลาเฉลี่ย (min)	อัตราการไหลจริง (ml/min)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2	ครั้งที่ 3		
1	1.26	1.34	1.27	1.29	1.55
2	0.57	0.58	0.63	0.59	3.37
3	0.38	0.40	0.39	0.39	5.15
4	0.29	0.29	0.30	0.29	6.80
5	0.23	0.22	0.24	0.23	8.69

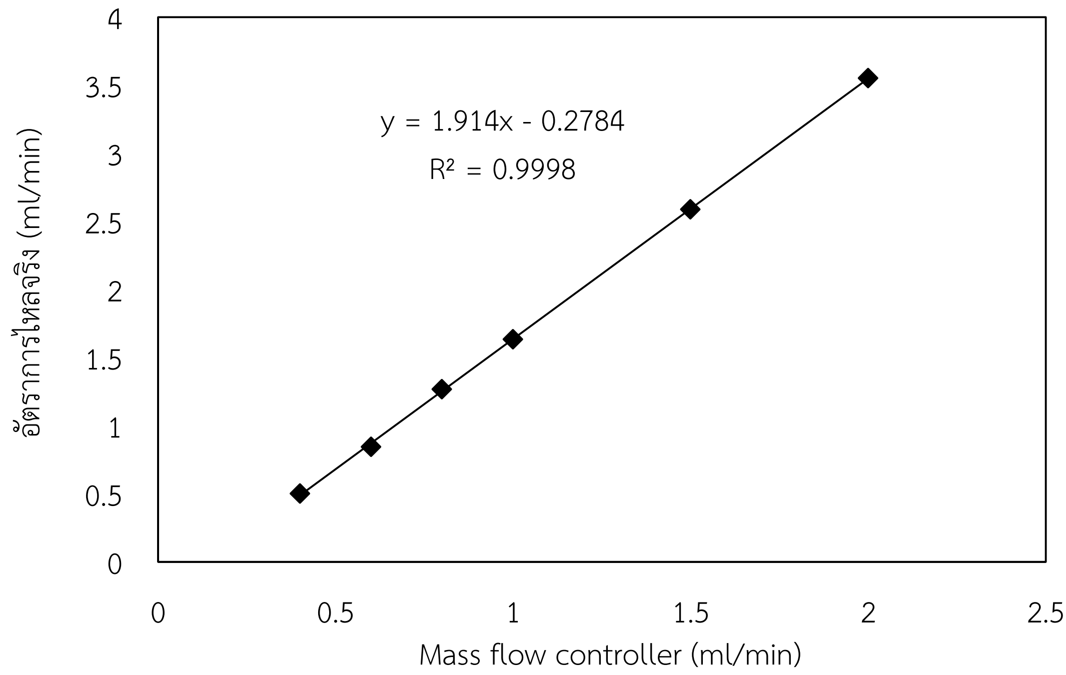


รูปที่ ก. 2 กราฟมาตรฐานของ NO

ก.1.3 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ SO_2

ตารางที่ ก. 3 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ SO_2

Mass flow controller (ml/min)	ปริมาตรของ Bubble flow (ml)	เวลา (min)			เวลาเฉลี่ย (min)	อัตราการไหลจริง (ml/min)
		ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2	ครั้งที่ 3		
0.4	1	2	2.02	1.98	2	0.50
0.6	2	2.37	2.37	2.37	2.37	0.85
0.8	3	2.37	2.37	2.37	2.37	1.27
1	9	5.5	5.2	5.5	5.51	1.63
1.5	9	3.45	3.48	3.5	3.48	2.59
2	9	2.52	2.57	2.52	2.53	3.55

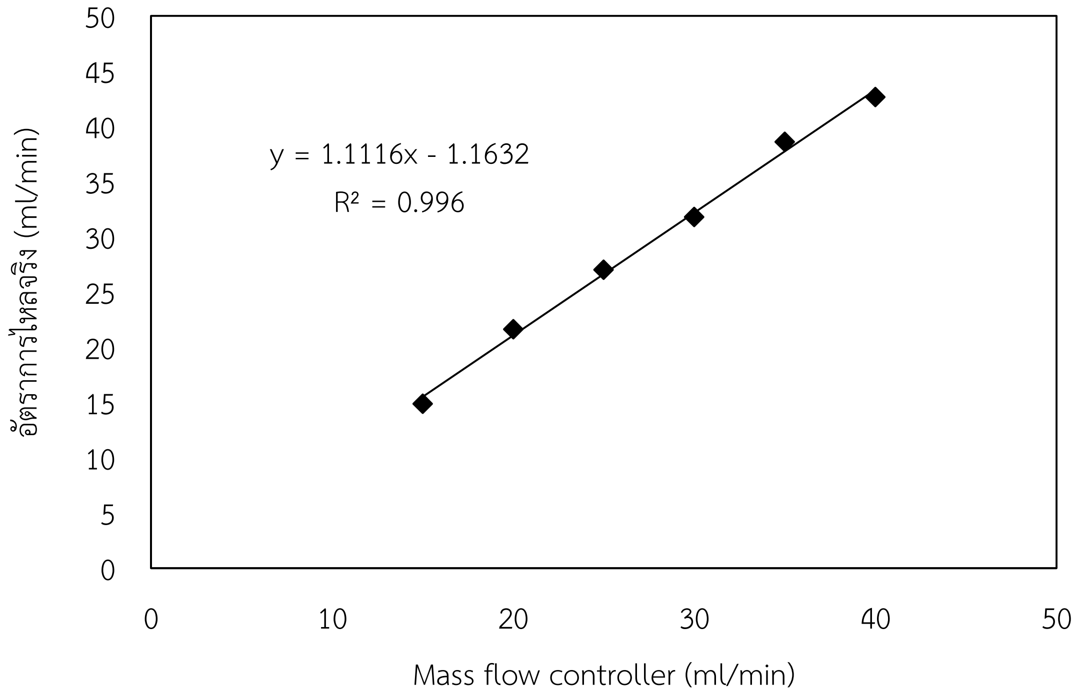


รูปที่ ก. 3 กราฟมาตรฐานของ SO_2

ก.1.4 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ O_2

ตารางที่ ก. 4 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ O_2 ตั้งแต่ 0-9 ml

Mass flow controller (ml/min)	เวลา (min)			เวลาเฉลี่ย (min)	อัตราการไหลจริง (ml/min)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2	ครั้งที่ 3		
15	0.62	0.60	0.60	0.61	14.86
20	0.42	0.42	0.42	0.42	21.6
25	0.33	0.33	0.33	0.33	27.00
30	0.28	0.28	0.28	0.28	31.76
35	0.23	0.23	0.23	0.23	38.57
40	0.21	0.20	0.21	0.21	42.63

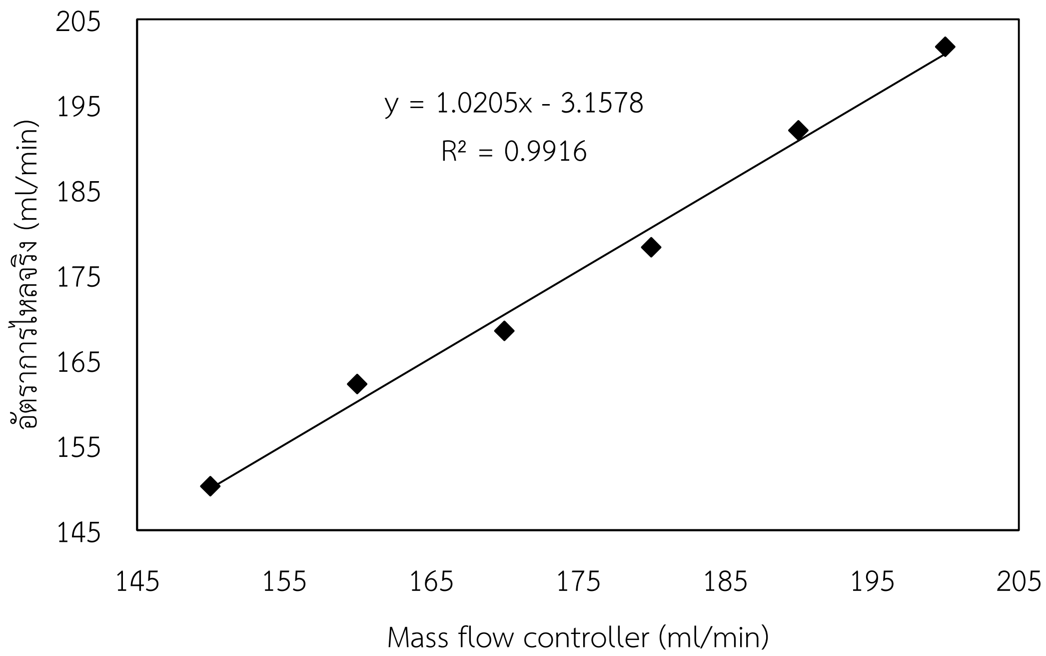


รูปที่ ก. 4 กราฟมาตรฐานของ O_2

ก.1.5 กราฟมาตรฐาน Mass flow controller ของ N_2

ตารางที่ ก. 5 ข้อมูลการวัดอัตราการไหลด้วย Bubble flow ของ N_2 ตั้งแต่ 0-9 ml

Mass flow controller (ml/min)	เวลา (min)			เวลาเฉลี่ย (min)	อัตราการไหลจริง (ml/min)
	ครั้งที่ 1	ครั้งที่ 2	ครั้งที่ 3		
150	0.059	0.060	0.060	0.060	150.14
160	0.056	0.056	0.055	0.056	162.16
170	0.053	0.054	0.054	0.054	168.40
180	0.051	0.051	0.050	0.051	178.22
190	0.046	0.046	0.048	0.047	191.94
200	0.045	0.044	0.045	0.045	201.74



รูปที่ ก. 5 กราฟมาตรฐานของ N_2

ภาคผนวก ข

การคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

ข.1 สารเคมีสาหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้ในการทดลอง

สารตั้งต้น - ผง TiO_2 ที่เตรียมจากวิธีโซลเจล

- Ammonium metavanadate 99.999%, NH_4VO_3 (Aldrich)
- Ammonium metatungsten hydrate 99.99% $(NH_4)_6H_2W_{12}O_{40}.xH_2O$ (Aldrich)
- Ammonium heptamolybdate $(NH_4)_6Mo_7O_{24}.4H_2O$ (Aldrich)
- Oxalic acid hydrate (Fluka)

ข.2 การคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว

ตัวอย่างการคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์เดี่ยว ในที่ยกตัวอย่างการคำนวณเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 น้ำหนัก 2 g โดยให้ปริมาณโลหะ W เท่ากับปริมาณโลหะ V ในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ที่มีปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.% นั่นคือ จำนวนโมลของโลหะ W บนตัวเร่งปฏิกิริยาจะเท่ากับจำนวนโมลของโลหะ V

1. การคำนวณจำนวนโมลของ V ในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ที่มีปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.%

<u>วิธีการคำนวณ</u>

ในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 100 g จะมี V_2O_5 อยู่ 3 g

ดังนั้นในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 2 g จะมี V_2O_5 อยู่ $= \frac{2\ g \times 3\ g}{100\ g} = 0.06\ g$

ในสารประกอบ V_2O_5 181.88 g/mol มีโลหะ V อยู่ 101.884 g

ถ้ามีสารประกอบ V_2O_5 อยู่ 0.06 g จะมีโลหะ V อยู่ $= \frac{0.06\ g \times 101.884\ g}{181.88\ g/mol} = 1.6805\ g$

นั่นคือ จะมีโลหะ V ทั้งสิ้น $\frac{1.6805\ g}{50942\ g/mol} = 0.033\ mol$

2. การคำนวณเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 น้ำหนัก 2 g โดยให้ปริมาณโลหะ W เท่ากับปริมาณโลหะ V ในตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2 ที่มีปริมาณโลหะออกไซด์คิดในรูป V_2O_5 3.0 wt.%

วิธีการคำนวณ

ให้จำนวนโมลของโลหะ W เท่ากับจำนวนโมลของโลหะ V :

$$\text{mol W} = \text{mol V}$$

$$\frac{\text{g of W}}{\text{MW of W}} = \text{mol V}$$

ดังนั้นจะได้ว่า $\text{g of W} = \text{mol V} \times \text{MW of W}$

$$= 0.033 \text{ mol} \times 183.84 \text{ g/mol} = 6.0646 \text{ g}$$

มีโลหะ W อยู่ 183.84 g/mol ในสารประกอบ WO_3 231.84 g/mol

ถ้ามีโลหะ W อยู่ 0.06 g จะมีสารประกอบ WO_3 อยู่ = $\frac{6.0646 \text{ g} \times 231.84 \text{ g/mol}}{183.84 \text{ g/mol}}$ = 7.648 g

ตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 100 g จะมี WO_3 อยู่ 7.648 g

ถ้าเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 2 g จะมี WO_3 อยู่ $\frac{2 \text{ g} \times 7.648 \text{ g}}{100 \text{ g}}$ = 0.153 g

ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2 จะใช้ $(NH_4)_6H_2W_{12}O_{40}.xH_2O$ (MW = 2956.3 g/mol) เป็น precursor

$$(NH4)_6H_2W_{12}O_{40}.xH_2O \text{ ที่ต้องการ} = \frac{\text{MW of } (NH_4)_6H_2W_{12}O_{40}.xH_2O \times \text{ น้ำหนักของ } WO_3 \text{ ที่ต้องการ}}{(12 \times \text{MW of } WO_3)}$$

$$= \frac{2956.3 \text{ g/mol} \times 0.153 \text{ g}}{12 \times 231.84 \text{ g/mol}} = 0.1625 \text{ g}$$

ดังนั้นจะต้องใช้ Ammonium metatungsten hydrate 99.99% ทั้งสิ้น 0.1625 g

ข.3 การคำนวณสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่มีวานาเดียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบ

จากตัวอย่างการคำนวณการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาในหัวข้อก่อนหน้า จะได้ว่าเมื่อทำการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสม V_2O_5-WO_3/TiO_2 2 กรัม จะต้องมี V_2O_5 และ WO_3 เป็นองค์ประกอบอยู่ 0.06 และ 0.153 g ดังนั้นจะต้องใช้น้ำหนักของ TiO_2 1.787 g ส่วนการคำนวณน้ำหนักของ precursor ที่ใช้นั้นกระทำเหมือนตัวอย่างการคำนวณดังที่ได้กล่าวมาแล้ว

ภาคผนวก ค

ข้อมูลผลการทดลอง

ค.1 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา

ตารางที่ ค. 1 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5/TiO_2

อุณหภูมิที่ใช้ในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา	%NO conversion ในการทดสอบที่ 1	%NO conversion ในการทดสอบที่ 2	$\%NO_X$ conversion	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยา SCR	ปริมาณ NO ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3
120	21.70	16.64	21.70	0	0	0
150	69.48	64.16	69.48	0	0	0
200	89.40	83.20	89.40	0	0	0
250	86.05	80.57	82.20	4.61	0	3.27
300	81.48	72.75	75.08	7.68	14.40	7.08
350	53.38	44.51	46.46	8.3	73.06	8.16
400	0.43	-5.87	-6.12	7.86	88.56	7.02
450	-7.00	-12.11	-9.56	3.07	103.11	2.99

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

ตารางที่ ค. 2 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา WO_3/TiO_2

อุณหภูมิที่ใช้ในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา	%NO conversion ในการทดสอบที่ 1	%NO conversion ในการทดสอบที่ 2	$\%NO_X$ conversion	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยา SCR	ปริมาณ NO ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3
120	0	0	0	0	0	0
150	0	0	0	0	0	0
200	30.65	29.64	30.65	0	0	0
250	53.69	47.74	53.69	0	0	0
300	57.28	53.04	43.80	16.17	0	0
350	40.68	40.68	34.83	7.02	0	0
400	16.04	16.04	16.04	0	17.19	0
450	-14.44	-14.44	-14.44	0	88.02	0

ตารางที่ ค. 3 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2

อุณหภูมิที่ใช้ในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา	%NO conversion ในการทดสอบที่ 1	%NO conversion ในการทดสอบที่ 2	$\%NO_X$ conversion	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยา SCR	ปริมาณ NO ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3
120	6.24	1.04	6.24	0	0	0
150	6.32	6.32	6.32	0	0	0
200	38.71	40.75	38.71	0	0	0
250	58.12	59.61	58.12	0	0	0
300	43.05	36.22	43.05	0	0	0
350	19.15	17.94	19.15	0	30.58	0
400	-9.28	-5.72	-9.28	0	96.66	0
450	-17.36	-12.61	-30.11	15.3	118.4	0

หมายเหตุ: ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา MoO_3/TiO_2 อ้างอิงจากผลการทดลองของนางสาวลภัสลดา ชื่นกลิ่น

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
Chulalongkorn University

ตารางที่ ค. 4 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-WO_3/TiO_2

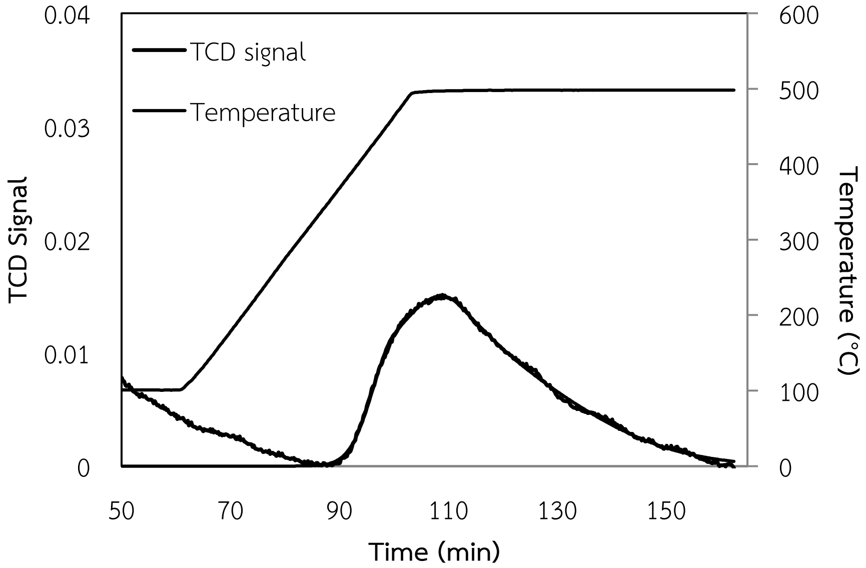
อุณหภูมิที่ใช้ในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา	%NO conversion ในการทดสอบที่ 1	%NO conversion ในการทดสอบที่ 2	$\%NO_X$ conversion	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยา SCR	ปริมาณ NO ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3
120	24.78	24.78	24.78	0	0	0
150	73.13	69.71	73.13	0	0	0
200	62.78	61.58	62.78	0	0	0
250	24.38	29.00	14.44	11.92	25.39	0
300	-8.70	-8.70	-20.84	14.57	77.57	8.48
350	-11.40	-11.40	-22.10	12.84	91.24	9.10
400	-13.02	-13.02	-17.32	5.16	93.25	9.41
450	-12.64	-12.64	-12.64	0	89.89	16.89

ตารางที่ ค. 5 ข้อมูลผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา V_2O_5-MoO_3/TiO_2

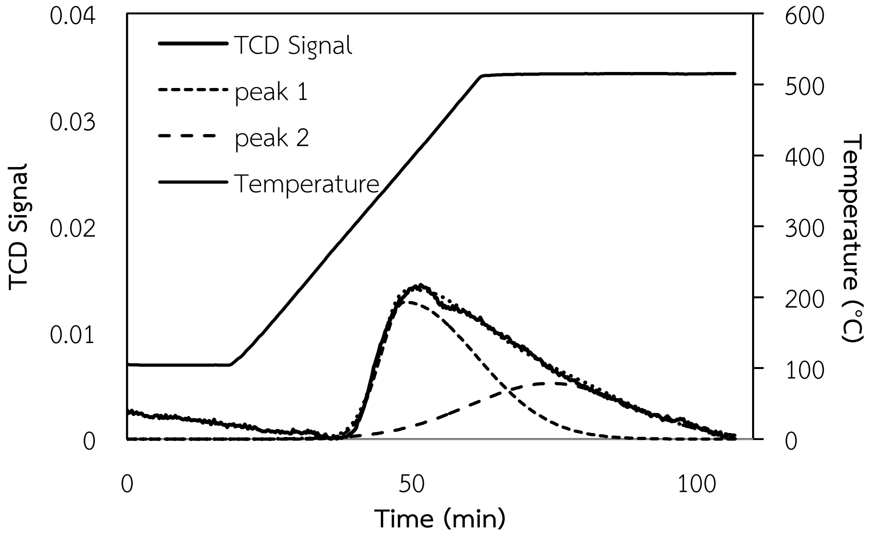
อุณหภูมิที่ใช้ในการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา	%NO conversion ในการทดสอบที่ 1	%NO conversion ในการทดสอบที่ 2	$\%NO_X$ conversion	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยา SCR	ปริมาณ NO ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3	ปริมาณ N_2O ที่เกิดขึ้นในปฏิกิริยาออกซิเดชันของ NH_3
120	36.31	36.31	36.31	0	0	0
150	56.25	51.47	56.25	0	0	0
200	54.33	45.38	54.33	0	0	0
250	31.98	25.27	26.76	6.27	51.62	0
300	5.04	5.04	-3.04	9.7	86.68	0
350	-16.19	-16.19	-22.62	7.71	87.61	0
400	-16.80	-16.80	-22.37	6.68	88.34	0
450	-21.04	-21.04	-23.67	3.15	88.10	0

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY

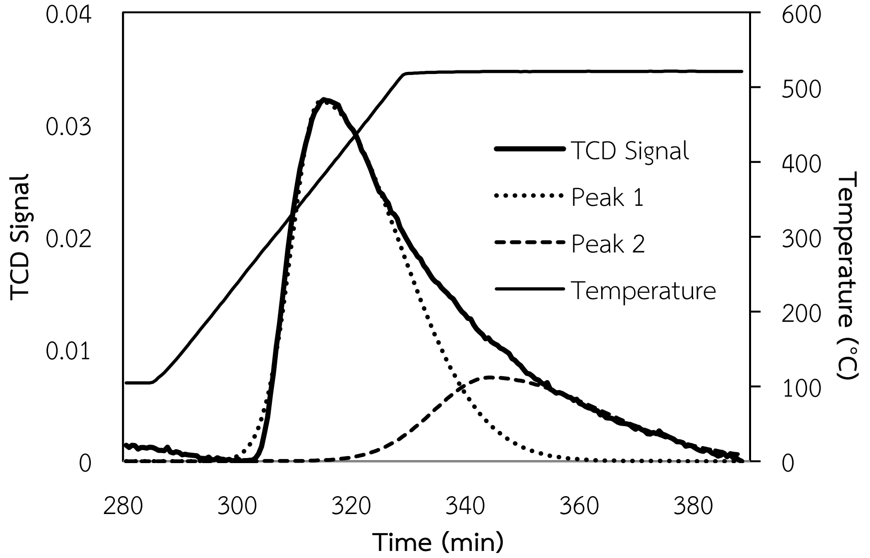
ค.2 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ TiO_2 และตัวเร่งปฏิกิริยา



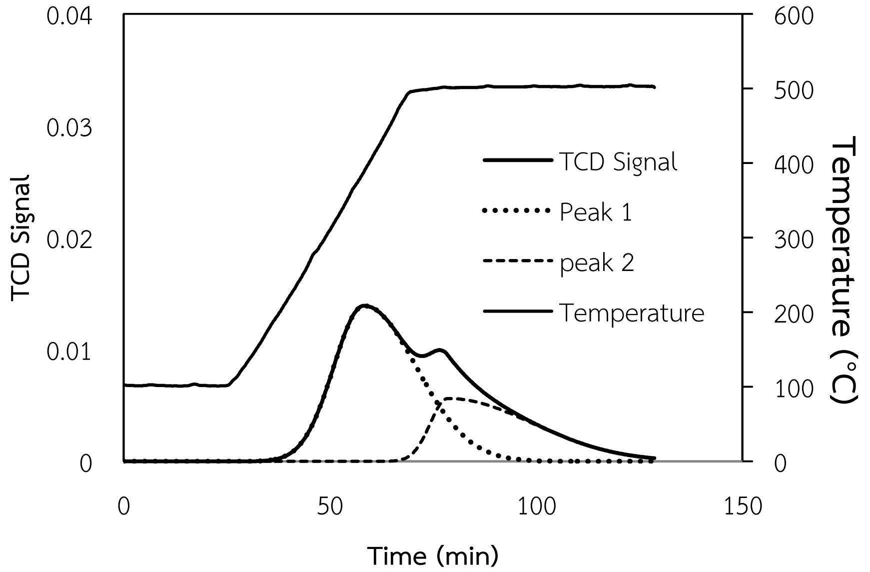
รูปที่ ค. 1 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ TiO_2



รูปที่ ค. 2 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ V_2O_5/TiO_2

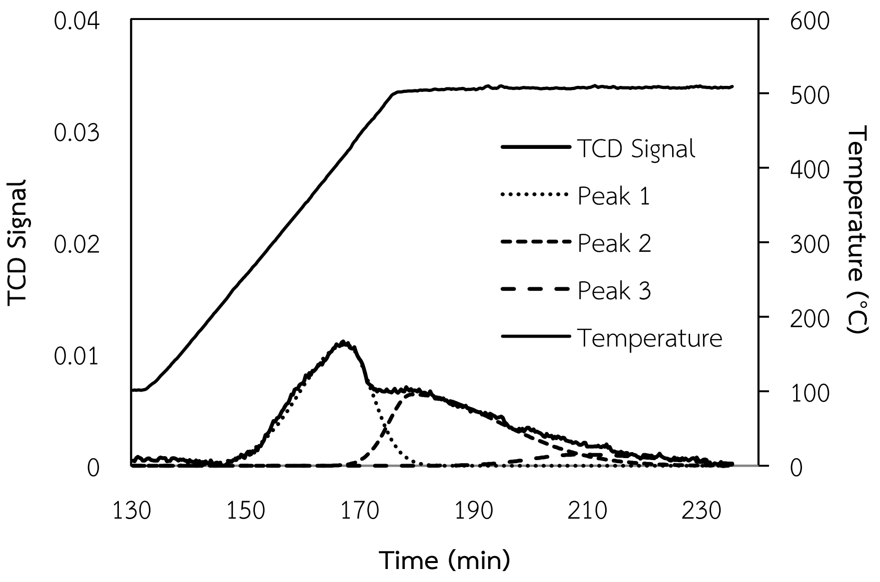


รูปที่ ค. 3 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ WO_3/TiO_2

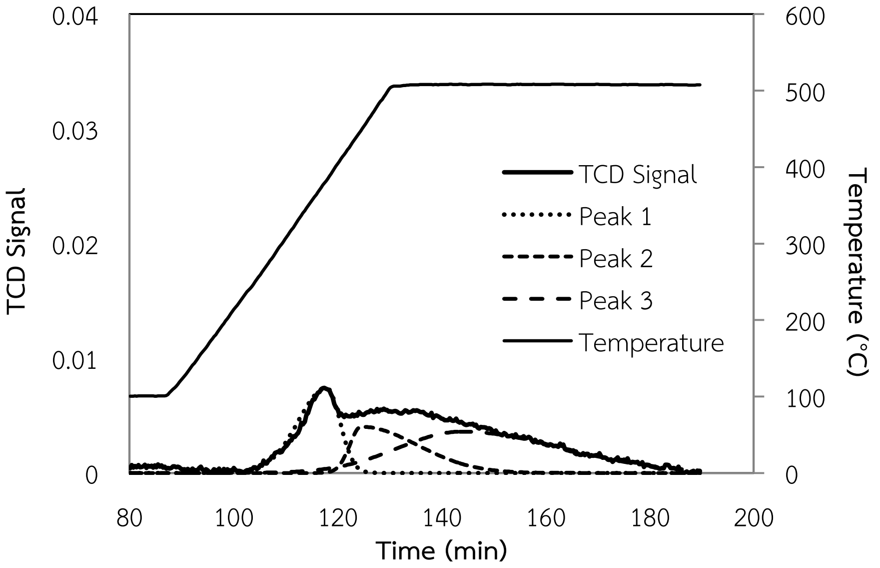


รูปที่ ค. 4 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ MoO_3/TiO_2

หมายเหตุ: ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ MoO_3/TiO_2 อ้างอิงจากผลการทดลองของนางสาวลภัสลดา ชื่นกลิ่น



รูปที่ ค. 5 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ V_2O_5-WO_3/TiO_2



รูปที่ ค. 6 ผลการวัดการคายซับของ NH_3 ที่มีการดูดซับบนผิวของ V_2O_5-MoO_3/TiO_2

ประวัติผู้เขียนวิทยานิพนธ์

นางสาวอัญรัตน์ มโนวรกุล เกิดเมื่อวันที่ 10 มีนาคม พ.ศ. 2533 ในจังหวัดชลบุรี สำเร็จการศึกษาระดับชั้นมัธยมศึกษาตอนปลาย จากโรงเรียนชลราษฎรอำรุง จังหวัดชลบุรี เมื่อปี พ.ศ. 2551 หลังจากนั้นได้เข้าศึกษาที่ภาควิชาเคมีเทคนิค คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย จนได้รับปริญญาวิทยาศาสตรบัณฑิต ในปีการศึกษา พ.ศ. 2554 และได้เข้าศึกษาต่อในหลักสูตรวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต ภาควิชาวิศวกรรมเคมี คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย ในปีการศึกษา พ.ศ. 2555

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
CHULALONGKORN UNIVERSITY