A COMBINED MULTISTAGE PLASMA AND PHOTOCATALYTIC SYSTEM FOR VOC REMOVAL



Mr. Witan Kiatubolpaiboon

A Thesis Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Master of Science

The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with

Case Western Reserve University, The University of Michigan,
The University of Oklahoma, and Institut Français Pétrole

2004

ISBN 974-9651-46-4

Thesis Title:

A Combined Multistage Plasma and Photocatalytic

System for VOC Removal

By:

Mr. Witan Kiatubolpaiboon

Program:

Petrochemical Technology

Thesis Advisors:

Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej

Asst. Prof. Pramoch Rangsunvigit

Prof. Lance L. Lobban

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

K. Bunyahint.

(Assoc. Prof. Kunchana Bunyakiat)

Thesis Committee:

(Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej)

(Assoc. Prof. Thirasak Risksomboon)

(Asst. Prof. Pramoch Rangsunvigit)

Tramoul R.

(Dr. Sirirat Jikarnka)

(Prof. Lance L. Lobban)

Lance Lobbar

ABSTRACT

4571030063: PETROCHEMICAL TECHNOLOGY PROGRAM

Witan Kiatubolpaiboon: A Combined Multistage Plasma and

Photocatalytic System for VOC Removal.

Thesis Advisors: Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej,

Asst. Prof. Pramoch Rungsanvigit, and Prof. Lance L. Lobban,

48 pp. ISBN 974-9651-46-4

Keywords: Non-thermal plasma/ Photocatalysis/ Benzene oxidation/

Plasma reactor/ TiO₂

One of the major air pollutants is volatile organic compounds (VOCs). A number of techniques for removing air pollutants are available such as adsorption, biofiltration and incineration. However, these techniques require further treatment and/or are energy-intensive leading to high treatment costs. Both plasma and photocatalysis are capable and economical alternatives since these two techniques can be operated at ambient conditions resulting in low energy consumption compared to the conventional methods. The main purpose of this work was to apply a combined plasma and photocatalytic system for VOC removal. A four-stage plasma and photocatalytic reactor system was setup to investigate the oxidation of benzene. An increase in either applied voltage or stage number of the plasma reactors enhanced benzene conversion and CO₂ selectivity, which is in contrast with the effects of frequency and feed flow rate The commercial TiO₂ (Degussa P25), sol-gel TiO₂, and 1%Pt/sol-gel TiO₂ were used as photocatalysts. The presence of all studied photocatalysts increased the benzene conversion as well as the CO₂ selectivity. The synergistic effect of photocatalysts presented in the plasma reactor was resulted from the activation of TiO₂ by the energy generated from the plasma

บทคัดย่อ

วิธาน เกียรติอุบลไพบูล : การกำจัดมลสารระเหยง่ายด้วยระบบพลาสมาและโฟโตคะ ตาไลติกร่วมกัน (A Combined Multistage Plasma Reactor and Photocatalytic System for VOC Removal) อ. ที่ปรึกษา : รศ.คร. สุเมธ ชวเคช ผศ. คร. ปราโมช รังสรรค์วิจิตร และ ศ. แลนซ์ แอล ลอบแบน 48 หน้า ISBN 974-9651-46-4

หนึ่งในมลสารอากาศที่สำคัญ คือ มลสารระเหยง่าย มีเทคนิคอยู่หลายแบบที่ใช้ในการ กำจัดบำบัดมลสารอากาศ ได้แก่ การคูดซับ การกรองทางชีวภาพและการเผาที่อุณหภูมิสูง อย่างไร ก็ตามวิธีการเหล่านี้ จำเป็นที่จะต้องมีการบำบัคขั้นต่อไปและ/หรือต้องใช้พลังงานสูง ซึ่งทำให้ ค่าใช้จ่ายในการบำบัดสูง การใช้พลาสมาและโฟโตคะตาไลติกเป็นทางเลือกหนึ่ง เนื่องจากทั้งสอง เทคนิคสามารถคำเนินการที่สภาวะบรรยากาศ ซึ่งส่งผลให้ความต้องการพลังงานลดต่ำลง เมื่อ เปรียบเทียบกับวิธีคั้งเดิมต่างๆ วัตถุประสงค์หลักในงานวิจัยนี้ คือการประยุกต์ระบบพลาสมา และโฟโตคะตาไลติกร่วมกันในการกำจัดมลสารระเหยง่าย เครื่องปฏิกรณ์พลาสมาแบบ 4 ขั้นตอน ถูกสร้างขึ้นเพื่อทำการศึกษาการออกซิเคชั่นของก๊าซเบนซีน ซึ่งถูกใช้เป็นตัวแทนมลสาร การเพิ่ม ค่าความต่างศักย์และจำนวนขั้นตอนของเครื่องปฏิกรณ์พลาสมา ช่วยเพิ่มค่าการเปลี่ยนรูปของก๊าซ เบนซีน และการเลือกเกิดก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ ซึ่งแตกต่างกับผลกระทบที่เกิดจากการเพิ่ม ค่าความถี่และอัตราการใหลของสารตั้งต้น ใททาเนียมใดออกใชด์ทางการค้า (Degussa P25) ไท ทาเนียมใดออกไซด์โซล-เจล และ 1 เปอร์เซ็นต์แพลทินัมบนไททาเนียมใดออกไซด์โซล-เจล ถูก การใช้โฟโตคะตาไลซิสท์ทั้งหมดที่ศึกษาเพิ่มค่าการเปลี่ยนรูปของ ใช้เป็นโฟโตคะตาไลซิสท์ ก๊าซเบนซีนพร้อมทั้งการเลือกเกิดการ์บอนไดออกไซด์ ผลการเสริมของการทำงานร่วมกันของ โฟโตคะตาไลซิสท์ในเครื่องปฏิกรณ์พลาสมา เป็นผลมาจากการกระตุ้นโฟโตคะตาไลซิสท์ด้วย พลังงาน ซึ่งกำเนิดบาจากพลาสบา

ACKNOWLEDGEMENTS

This work has been memorable, interesting and enjoyable experience. This thesis would have not been successful without the participation of the following individuals and organization.

I would like to express the deepest gratitude to my thesis advisors, Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej, Asst. Prof. Pramoch Rangsunvigit, and Prof. Lance L Lobban, who have tendered invaluable guidance, constructive advice, and intensive attention throughout this research work. Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej has not only taught me about theoretical knowledge but also made me realize in myself that this research is very challenging. He taught me in the better way of working life and working style as well. Asst. Prof. Pramoch Rangsunvigit has taught me the skill to do the research and how to solve problems in PPC laboratory. Prof. Lance L Lobban provided valuable suggestion throughout this research work.

I also would like to thank Ms. Kanokwan Saktrakool, Ms. Korada Supat, and Ms. Boonyarat Harndumrongsak, for giving encouragement and invaluable suggestions.

I would like to thank CPO Poon Arjpru, who helped me to set up experimental instrument and for all electronic piecework. For PPC staff, Chaturong Tiamsiri gave me a helpful hand constantly especially about mechanical pieceworks.

This thesis work is partially funded by Postgraduate Education and Research Programs in Petroleum and Petrochemical Technology (PPC Consortium).

I also acknowledged Ratchadapiseksompoch Fund provided by Chulalongkorn University for partial support of this project.

Finally, I sincerely appreciate my parents, brothers, and friends for their encouragement, love, and understanding in myself.

TABLE OF CONTENTS

		PAGE	
Tit	tle Page	i	
At	Abstract (in English)		
At	ostract (in Thai)	iv	
Ac	Acknowledgements		
Та	vi		
Lis	List of Tables		
Lis	st of Figures	ix	
	T I		
CHAPTE	CR		
I	INTRODUCTION	1	
II	BACKGROUND AND LITERATURRE SURVEY	3	
	2.1 Basic Principles of Plasma	3	
	2.2 Generation of Plasma	3	
	2.3 Basic Principle of Photocatalysis	5	
	2.4 Types of Semiconductors	8	
	2.5 Related Research Works	9	
	2.5.1 Plasma	9	
	2.5.2 Photocatalysis	11	
III	EXPERIMENTAL	13	
	3.1 Materials	13	
	3.1.1 Catalyst Preparation Materials	13	
	3.1.2 Reactant Gases	13	
	3.2 Catalyst Preparation	13	
	3.3 Catalyst Characterization	14	
	3.4 Oxidation Experiment	15	

CHAPTER		PAGE
	3.5 Studied Conditions	18
IV	RESULTS AND DISCUSSION	19
	4.1 Catalyst Characterization	19
	4.2 Effects of Frequency	19
	4.3 Effects of Applied Voltage	25
	4.4 Effects of Feed Flow Rate	29
	4.5 Effects of the Presence of Different Photocatalyst	31
V	CONCLUSIONS AND RECOMMENDATIONS	34
	REFERENCES	35
	APPENDICES	38
	Appendix A Assumptions, definitions, and calculations.	38
	Appendix B Experimental data.	41
	CURRICULUM VITAE	48

LIST OF TABLES

T A	ABLI	E	PAGE
	2.1	Collision mechanisms in the plasma	5
	2.2	Band positions of some common semiconductor photocatalysts	9
	3.1	Experimental conditions	18
	4.1	Effect of Photocatalyst coated on glass wool at flow rate 60 ml/min,	
		500 Hz, 15,000 V, and a gap distance of 1 cm	33

LIST OF FIGURES

F	FIGURE		PAGE
	2.1	Mechanism of photocatalytic process of a semiconductor.	6
	3.1	Schematic diagram of the experimental setup.	16
	3.2	Schematic diagram of power supply.	17
	3.3	Schematic diagram of each reactor.	17
	4.1	(a) XRD patterns of Degussa P25	20
		(b) XRD patterns of sol-gel TiO ₂	20
		(c) XRD patterns of 1% Pt/ sol-gel TiO ₂	21
	4.2	SEM micrographs of (a) Degussa P25, (b) sol-gel TiO ₂ , and	
		(c) 1%Pt/ sol-gel TiO ₂ coated on glass wool sheet.	21
	4.3	Effect of frequency on benzene conversion at a feed flow rate of	
		500 ml/min, 21,000 V, and a gap distance of 1 cm.	22
	4.4	Effect of frequency on current at a feed flow rate of 500 ml/min,	
		21,000 V, and a gap distance of 1 cm.	22
	4.5	Effect of frequency on CO selectivity at a feed flow rate of	
		500 ml/min, 21,000 V, and a gap distance of 1 cm.	23
	4.6	Effect of frequency on CO ₂ selectivity at a feed flow rate of	
		500 ml/min, 21,000 V, and a gap distance of 1 cm.	24
	4.7	Effect of frequency on power consumption of benzene at a feed	
		flow rate of 500 ml/min, 21,000 V, and a gap distance of 1 cm.	25
	4.8	Effect of applied voltage on benzene conversion at a feed	
		flow rate of 500 ml/min, 300 Hz, and a gap distance of 1 cm.	26
	4.9	Effect of applied voltage on current at a feed flow rate of	
		500 ml/min, 300 Hz, and a gap distance of 1 cm.	27
	4.10	Effect of applied voltage on CO selectivity at a feed flow rate of	
		500 ml/min, 300 Hz, and a gap distance of 1 cm.	28

FIGUR	E	PAGE
4.11	Effect of applied voltage on CO ₂ selectivity at a feed flow rate of	
	500 ml/min, 300 Hz, and a gap distance of 1 cm.	28
4.12	Effect of feed flow rate on the benzene conversion at 15 kV,	
	500 Hz, and a gap distance of 1 cm.	29
4.13	Effect of feed flow rate on CO selectivity at 15 kV,	
	500 Hz, and a gap distance of 1 cm.	30
4.13	Effect of feed flow rate on CO ₂ selectivity at 15 kV,	
	500 Hz, and a gap distance of 1 cm.	31

...