

OXIDATION OF ETHYLENE IN A PLASMA ENVIRONMENT



Ms. Boonyarat Harndumrongsak

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

2002

ISBN 974-03-1559-3

Thesis Title : Oxidation of Ethylene in a Plasma Environment
By : Ms. Boonyarat Harndumrongsak
Program : Petrochemical Technology
Thesis Advisors : Asst. Prof. Pramoch Rangsunvigit
Dr. Boonyarach Kitiyanan
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. Bunyakiat

..... College Director
(Assoc. Prof. Kunchana Bunyakiat)

Thesis Committee:

Pramoch R.

.....
(Asst. Prof. Pramoch Rangsunvigit)

Boonyarach Kitiyanan

.....
(Dr. Boonyarach Kitiyanan)

Lance Lobban

.....
(Prof. Lance L. Lobban)

T. Rirksomboon

.....
(Asst. Prof. Thirasak Rirksomboon)

Sirirat Jitkarnka

.....
(Dr. Sirirat Jitkarnka)

ABSTRACT

4371005063 : PETROCHEMICAL TECHNOLOGY PROGRAM
Boonyarat Harndumrongsak: Oxidation of Ethylene in a
Plasma environment.
Thesis advisors: Prof. Lance L. Lobban, Asst. Prof. Pramoch
Rungsanvigit and Dr. Boonyarach Kitiyanan 40 pp.
ISBN 974-03-1559-3

KEY WORDS : Ethylene oxidation / Corona discharge / Photocatalyst / TiO₂
catalyst

The oxidation of ethylene under plasma environment with a corona discharge was investigated in a wire and plate reactor with and without TiO₂. The TiO₂ coated on glass wool was used in this study. All the experiments were carried out under atmospheric pressure and room temperature. The results show that more than 95 % ethylene was converted to CO₂ and CO at the flow rates lower than 40 ml/min. The ethylene conversion and the CO₂ selectivity were significantly increased with increasing the applied power and the gap distance. The combination of TiO₂ and corona discharge resulted in more possibility to convert ethylene to CO₂. In the presence of TiO₂, the ethylene conversion and CO₂ selectivity were increased 4 % and 10 %, respectively. The increase in both ethylene conversion and CO₂ selectivity may be attributed to the activation of TiO₂ by the UV light generated from plasma.

บทคัดย่อ

บุญรัตน์ หาญดำรงศักดิ์ : การออกซิไดซ์เอทิลีนภายใต้สภาวะพลาสมา (Oxidation of Ethylene in a Plasma Environment) อ.ที่ปรึกษา : ศ. แลนซ์ แอล ลอบแบน (Prof. Lance L. Lobban) ผศ. ดร. ปราโมช รังสรรค์วิจิตร และ ดร. บุญยรัชต์ กิตยานันท์ 40 หน้า, ISBN 974-03-1559-3

งานวิจัยนี้เป็นการศึกษาการออกซิไดซ์ของเอทิลีน ภายใต้สภาวะพลาสมาแบบโคโรนาที่ความดันบรรยากาศและอุณหภูมิห้อง โดยใช้และไม่ใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาไททานเนียมไดออกไซด์ด้วยเครื่องปฏิกรณ์แบบลวดและแผ่น ปฏิกิริยาไททานเนียมไดออกไซด์จะถูกเคลือบบนใยแก้วสำหรับใช้งาน ผลการทดลองแสดงให้เห็นว่าเอทิลีนถูกเปลี่ยนไปเป็นคาร์บอนไดออกไซด์และคาร์บอนมอนอกไซด์มากกว่า 95 เปอร์เซ็นต์ที่อัตราเร็วของแก๊สดำกว่า 40 มิลลิลิตรต่อนาที การเปลี่ยนแปลงของเอทิลีนและการเลือกสรรในการเกิดคาร์บอนไดออกไซด์เพิ่มขึ้นอย่างชัดเจนเมื่อกำลังไฟฟ้าที่ให้และระยะระหว่างขั้วเพิ่มขึ้น การใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาไททานเนียมไดออกไซด์ร่วมกับโคโรนาดีสชาร์จสามารถทำให้เกิดการเปลี่ยนของเอทิลีนไปเป็นคาร์บอนไดออกไซด์ได้มากขึ้น ซึ่งตัวเร่งปฏิกิริยาไททานเนียมไดออกไซด์ทำให้การเปลี่ยนแปลงของเอทิลีนและการเลือกสรรในการเกิดคาร์บอนไดออกไซด์เพิ่มขึ้น 4 และ 10 เปอร์เซ็นต์ตามลำดับ การเพิ่มขึ้นของการเปลี่ยนแปลงของเอทิลีนและการเลือกสรรในการเกิดคาร์บอนไดออกไซด์นี้เกิดขึ้นเนื่องจากการกระตุ้นตัวเร่งปฏิกิริยาไททานเนียมไดออกไซด์ด้วยแสงยูวีที่เกิดจากพลาสมา

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.

First of all, I sincerely thank Asst. Prof. Pramoch Rangsunvigit, my great advisor who always gives me not only meaningful guidance, continuous support but also open-mindedness, patience and politeness. It has been a privilege and a pleasure for me to work with him.

I would like to express my deep application to Prof. Lance L. Lobban, my special US Advisor, who gave me creative discussions and suggestions. Next, I would like to thank Dr. Boonyarach Kitiyanan, my co-advisor, for his guidance and assistance. I further give my sincere thanks to Assoc. Prof. Sumeath Chavadej for suggesting and providing all instruments used in this work.

I personally thank Ms. Korada Supat and Ms. Siripron Jongpatiwut, Ph.D. Students, for their most welcome help, support and soothingness on different occasions.

Thanks are also expressed to Asst. Prof. Tawan Sooknoi, J.J. Degussa Hüls (T) Co. Ltd. and National Petrochemical (Public) Co., Ltd. for their material support in this thesis.

Last but not least, I would like to acknowledge to all friends for their help and cheerfulness. I am also deeply indebted to my parents and my family for their love, understanding and financial support.

TABLE OF CONTENTS

	PAGE
Title Page	i
Abstract (in English)	iii
Abstract (in Thai)	iv
Acknowledgements	v
Table of Contents	vi
List of Table	viii
List of Figures	ix
 CHAPTER	
I	1
INTRODUCTION	
II	3
BACKGROUND	
2.1 Fundamentals of Plasma	3
2.2 Related research in Plasma Applications	6
2.3 Fundamentals of Photocatalysis	9
2.5 Related research in Photocatalytic Applications	11
III	14
EXPERIMENTAL	
3.1 Materials	14
3.1.1 Catalyst Preparation Materials	14
3.1.2 Reactant Gases	14
3.2 Catalyst Preparation	14
3.3 Catalyst Characterization	15
3.4 Experimental Procedure	15
3.5 Studied Conditions	17

CHAPTER		PAGE
IV	RESULTS AND DISCUSSION	19
	4.1 Characteristic of Studied Catalyst	19
	4.2 Effect of the Feed Flow Rate	20
	4.3 Effect of Frequency	22
	4.4 Effect of Applied Power	24
	4.5 Effect of TiO ₂	26
	4.6 Effect of Gap Distance	27
V	CONCLUSIONS AND RECOMMENDATIONS	31
	REFERENCES	32
	APPENDICES	35
	Appendix A	35
	Appendix B	36
	CURRICULUM VITAE	40

LIST OF TABLES

TABLE	PAGE
2.1 Collision mechanisms in the plasma	4
2.2 Time and space scales for the streamer corona for the gap form 1 to 100 cm	6
B.1 Effect of total gas flow rate at power of 3.5 W, frequency of 400 Hz, Gap of 10 mm, and O ₂ : C ₂ H ₄ ratio of 5:1	36
B.2 Effect of frequency at power = 3.5 W, gap of 10 mm, total gas flow rate of 40 ml/min, and O ₂ : C ₂ H ₄ ratio of 5:1	37
B.3 Effect of power at frequency of 200 Hz, gap of 10 mm, total gas flow rate of 40 ml/min, and O ₂ : C ₂ H ₄ ratio of 5:1	37
B.4 Effect of TiO ₂ loading on glass wool at power of 3.5 and 4.2 W, frequency of 200 Hz, gap of 10 mm, total gas flow rate of 40 ml/min, and O ₂ : C ₂ H ₄ ratio of 5:1	38
B.5 Effect of gap at power of 3.5 W, frequency of 200 Hz, total gas flow rate of 40 ml/min, and O ₂ : C ₂ H ₄ ration of 5:1	39

LIST OF FIGURES

FIGURE	PAGE
2.1 The form of discharge according to their temporal behavior, pressure range and appearance	6
2.2 The schematic of diagram of photocatalytic process over TiO ₂	11
3.1 The schematic diagram of the experimental set-up	16
4.1 XRD Patterns of raw TiO ₂ , TiO ₂ coated on glass wool and TiO ₂ treated by plasma	19
4.2 The morphology of glass wool after dewaxing and TiO ₂ coated on glass wool	20
4.3 Effect of the feed flow rate on ethylene and oxygen conversion at 3.5 W, and 400 Hz	21
4.4 Effect of the feed flow rate the product selectivity at 3.5 W and 400 Hz	22
4.5 Effect of frequency on the ethylene and oxygen conversion at 3.5 W, and the total gas flow rate of 40 ml/min	23
4.6 Effect of frequency on the current generated at 3.5 w	23
4.7 Effect of frequency on the product selectivity at 3.5 W, and the total gas flow rate of 40 ml/min	24
4.8 Effect of the applied power on the ethylene and oxygen conversion at 200 Hz and the total gas flow rate of 40 ml/min	25
4.9 Effect of the applied power on the product selectivity at 200 Hz and the total gas flow rate of 40 ml/min	26
4.10 Effect of the TiO ₂ loading on the ethylene and oxygen conversion at 3.5 and 4.2 W, 400 Hz and the total gas flow rate of 40 ml/min	27
4.11 Effect of the TiO ₂ loading on the product selectivity at 3.5 and 4.2 W, 400 Hz and the total gas flow rate of 40 ml/min	28
4.12 Effect of the gap distance on the ethylene and oxygen conversion at 3.5 W, 400 Hz and the total gas flow rate of 40 ml/min	29

FIGURE	PAGE
4.13 Effect of the gap distance on the current at 3.5 W 200 Hz with and without the TiO ₂ coated on glass wool	29
4.14 Effect of the gap on the CO ₂ selectivity with and without TiO ₂ at 3.5 W, 200 Hz, and the total gas flow rate of 40 ml/min	28
4.15 Effect of the gap on the CO selectivity with and without TiO ₂ at 3.5 W, 200 Hz, and the total gas flow rate of 40 ml/min	30