บทที่ 4

ผลการทดลองและอภิปรายผลการทดลอง

บทนี้จะกล่าวถึงผลการทดลองและการอภิปรายผลการทดลองของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะผสมคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ โดยทำการศึกษาแบ่งออกเป็น 2 ส่วนคือ ส่วนของคุณสมบัติของโลหะออกไซด์ และส่วนของความสามารถในการเร่งปฏิกิริยา ปัจจัยที่ต้องการศึกษา ได้แก่ ปริมาณของโคบอลต์ออกไซด์ต่อความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน โดยมีรายละเอียดดังต่อไปนี้

4.1 คุณสมบัติของตัวเร่งปฏิกิริยา

ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ทั้งหมดจะถูกนำมาวิเคราะห์คุณสมบัติทางกายภาพ ได้แก่ พื้นที่ผิวจำเพาะของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้เครื่อง Gas Sorption Analyzer NOVA-1200 Ver.3.70 และขนาดผลึกและโครงสร้างทางเคมีของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยใช้เครื่องเอ็กซ์เรย์ดิฟแฟรคชั่น (X-ray Diffraction, XRD) รายละเอียดแสดงดังนี้

4.1.1 ผลการวิเคราะห์พื้นที่ผิวจำเพาะของตัวเร่งปฏิกิริยา

ตัวเร่งปฏิกิริยาประเภทโลหะผสมคอปเปอร์ออกไซด์และซีเรียมออกไซด์ที่มีการใช้โคบอลต์ออกไซด์เป็นสารโปรโมทร่วม ที่อัตราส่วนร้อยละโดยน้ำหนักของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์ต่างกัน เตรียมโดยวิธีการตกตะกอนร่วม และหลังจากล้างตะกอนสะอาด ตะกอนถูกอบที่อุณหภูมิ 100 องศาเซลเซียส และเผาที่อุณหภูมิ 500 องศาเซลเซียส จากนั้นนำมาวิเคราะห์พื้นที่ผิวจำเพาะโดยใช้เครื่อง Gas Sorption Analyzer NOVA-1200 ผลการทดลองแสดงได้ดังตารางที่ 4.1

ตารางที่ 4.1 พื้นที่ผิวจำเพาะและขนาดรูพรุนเฉลี่ยของตัวเร่งปฏิกิริยาที่อัตราส่วนร้อยละโดยน้ำหนักของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์ต่างกัน

สารตัวอย่าง	สารประกอบ (ร้อยละโดยน้ำหนัก)			ค่าพื้นที่ผิวจำเพาะ (ตารางเมตร /กรัม)	ขนาดรูพรุนเฉลี่ย (นาโนเมตร)
	CuO	CeO_2	Co_3O_4		
1	20	80	0	97.1	13.7
2	20	76	4	160.4	35.6
3	20	72	8	132.9	14.1
4	20	68	12	95.4	9.4
5	20	64	16	82.5	14.2
6	20	0	80	32.9	46.2
7	0	0	100	29.9	40.9

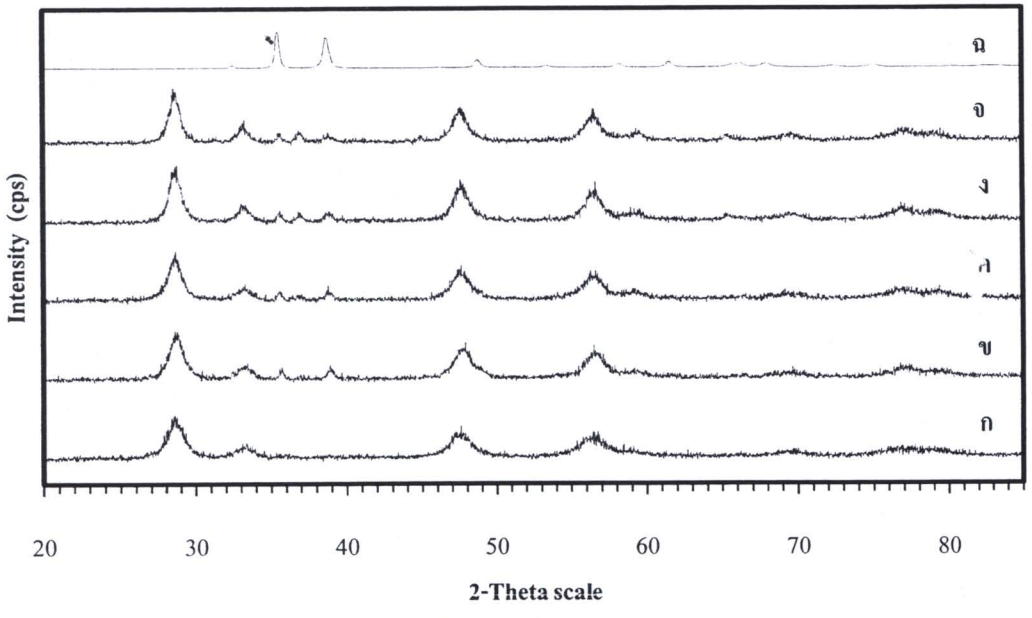
ตารางที่ 4.1 แสดงผลการวิเคราะห์พื้นที่ผิวจำเพาะของสารตัวอย่าง โดยศึกษาปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์ต่อซีเรียมออกไซด์ที่มีโคบอลต์ออกไซด์เป็นสารโปรโมทร่วมในเทอมสัดส่วนโดยน้ำหนัก โดยให้ปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์คงที่ ที่ร้อยละ 20 โดยน้ำหนัก และสารตัวอย่างทั้งหมดถูกเผาที่อุณหภูมิ 500 องศาเซลเซียส พบว่าพื้นที่ผิวจำเพาะของสารตัวอย่างที่สัดส่วนโดยน้ำหนักของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์ต่างกัน จะได้พื้นที่ผิวจำเพาะแตกต่างกัน เมื่อปริมาณของสารโปรโมทโคบอลต์ออกไซด์ในสารประกอบออกไซด์ผสมมีปริมาณเพิ่มขึ้น ส่งผลกระทบให้พื้นที่ผิวจำเพาะของออกไซด์โลหะผสมลดลง ดังนี้ ที่สัดส่วนโดยน้ำหนักระหว่างของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์เป็นร้อยละ 20:80:0 ร้อยละ 20:76:4 ร้อยละ 20:72:8 ร้อยละ 20:68:12 ร้อยละ 20:64:16 มีพื้นที่ผิวจำเพาะ 97.1 ตารางเมตรต่อกรัม 160.4 ตารางเมตรต่อกรัม 132.9 ตารางเมตรต่อกรัม 95.4 ตารางเมตรต่อกรัม และ 82.5 ตารางเมตรต่อกรัม ตามลำดับ ส่วนสารตัวอย่างที่ 6 ประกอบด้วยคอปเปอร์ออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์ร้อยละ 20:80 มีพื้นที่ผิวจำเพาะลดลงเหลือเพียง 32.9 ตารางเมตรต่อกรัม และสารตัวอย่างที่ 7 อัตราส่วนโคบอลต์ออกไซด์ร้อยละ 100 มีพื้นที่ผิวจำเพาะเพียง 29.9 ตารางเมตรต่อกรัม ซึ่งเป็นอัตราส่วนที่ให้พื้นที่ผิว

จำเพาะน้อยที่สุด สาเหตุของการมีพื้นที่ผิวน้อย อาจเป็นเพราะไม่มีซีเรียมออกไซด์ผสมอยู่ จึงทำให้ผนังของตัวเร่งปฏิกิริยาไม่แข็งแรงเกิดการพังทลายของผนังในขณะทำการเผา หรือกล่าวได้ว่า ซีเรียมออกไซด์ช่วยทำให้ผนังโครงสร้างของโลหะผสมออกไซด์มีความเสถียรในระหว่างการเผานั่นเอง (Varma และคณะ, 1991) จากผลการทดลองพบว่า ที่ปริมาณโคบอลต์ออกไซด์ที่อัตราส่วนร้อยละ 4 และร้อยละ 8 แสดงการทนทานต่ออุณหภูมิได้มากกว่าอัตราส่วนอื่นๆ จึงทำให้พื้นที่ผิวจำเพาะมีค่ามาก โดยทั้ง 2 อัตราส่วนให้พื้นที่ผิวจำเพาะใกล้เคียงกัน นอกจากวิเคราะห์ผลจากพื้นที่ผิวจำเพาะแล้ว การทดลองนี้ยังให้ค่าขนาดรูพรุนเฉลี่ยด้วย ซึ่งจากตารางที่ 4.1 จะเห็นได้ว่า ขนาดรูพรุนเฉลี่ยมีความสัมพันธ์กับพื้นที่ผิวจำเพาะ สารตัวอย่างที่มีขนาดรูพรุนเฉลี่ยขนาดเล็กจะมีพื้นที่ผิวจำเพาะมาก ในทางตรงกันข้ามถ้าสารตัวอย่างมีรูพรุนขนาดใหญ่ พื้นที่ผิวจำเพาะจะน้อย และจากการทดลองยังพบว่า เมื่อปริมาณของสารโปรโมทโคบอลต์ออกไซด์ในสารประกอบออกไซด์ผสมมีปริมาณเพิ่มขึ้น ส่งผลกระทบให้ขนาดรูพรุนเฉลี่ยของสารตัวอย่างเพิ่มขึ้น ดังนี้ ที่สัดส่วนโดยน้ำหนักระหว่างของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์เป็นร้อยละ 20:80:0 ร้อยละ 20:72:8 ร้อยละ 20:68:12 ร้อยละ 20:64:16 ร้อยละ 20:0:80 และร้อยละ 0:0:100 มีขนาดรูพรุนเฉลี่ย 13.7 นาโนเมตร 14.1 นาโนเมตร 9.4 นาโนเมตร 14.2 นาโนเมตร 46.2 นาโนเมตร และ 40.9 นาโนเมตร ตามลำดับ สำหรับสารตัวอย่างที่ประกอบด้วยคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์เป็นร้อยละ 20:72:4 มีขนาดรูพรุนเฉลี่ยใหญ่ที่สุดคือ 356.2 นาโนเมตร จากผลการวิเคราะห์พื้นที่ผิวจำเพาะของตัวเร่งปฏิกิริยา เมื่อปริมาณของสารโปรโมทโคบอลต์ออกไซด์ในออกไซด์ผสมมีปริมาณเพิ่มขึ้นส่งผลให้ขนาดรูพรุนเฉลี่ยของสารตัวอย่างมีขนาดใหญ่ขึ้น มีผลทำให้พื้นที่ผิวจำเพาะของออกไซด์โลหะผสมลดลง ยกเว้นในกรณีของสารตัวอย่างที่ 2 ที่มีปริมาณของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์เป็นร้อยละ 20:72:4 มีขนาดรูพรุนเฉลี่ยใหญ่ที่สุด แต่กลับมีค่าพื้นที่ผิวจำเพาะของออกไซด์โลหะผสมมากที่สุด สาเหตุอาจเกิดจากขนาดอนุภาคของโลหะออกไซด์แต่ละชนิดในสารตัวอย่าง ซึ่งต้องมีการวิเคราะห์เพิ่มเติมจากเครื่องมือวิเคราะห์อื่น และจากการศึกษาของ Radwan และคณะ(2004) เรื่องผลกระทบของปริมาณโคบอลต์ต่อความสามารถในการเร่งปฏิกิริยามี Cordierite ($2MgO–2Al_2O_3–5SiO_2$) เป็นตัวรองรับ เตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยวิธีอิมเพรกเนชั่น โดยใช้ปริมาณโคบอลต์ร้อยละ 5 ถึงร้อยละ 20 โดยน้ำหนัก พบว่า เมื่อเพิ่มปริมาณของโคบอลต์ทำให้พื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยาเพิ่มขึ้นด้วย

สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย

4.1.2 ผลของการวิเคราะห์ขนาดผลึกและโครงสร้างทางเคมีของตัวเร่งปฏิกิริยา

การทดลองในส่วนนี้เป็นการศึกษาผลกระทบของปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ ในตัวเร่งปฏิกิริยาต่อขนาดผลึกและโครงสร้างทางเคมี โดยตัวเร่งปฏิกิริยาถูกเตรียมด้วยวิธีการตกตะกอนร่วม เผาที่อุณหภูมิ 500 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 5 ชั่วโมง เหมือนกันทั้ง 7 สัดส่วน จากนั้นนำไปวิเคราะห์ขนาดผลึกของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ ด้วยเครื่องเอ็กซ์เรย์ดิฟแฟรคชัน (X-ray Diffraction, XRD) Bruker AXS, Germany Model D8 Advance แสดงผลการวิเคราะห์ขนาดผลึกแสดงดังรูป 4.1-4.3 และตาราง 4.2

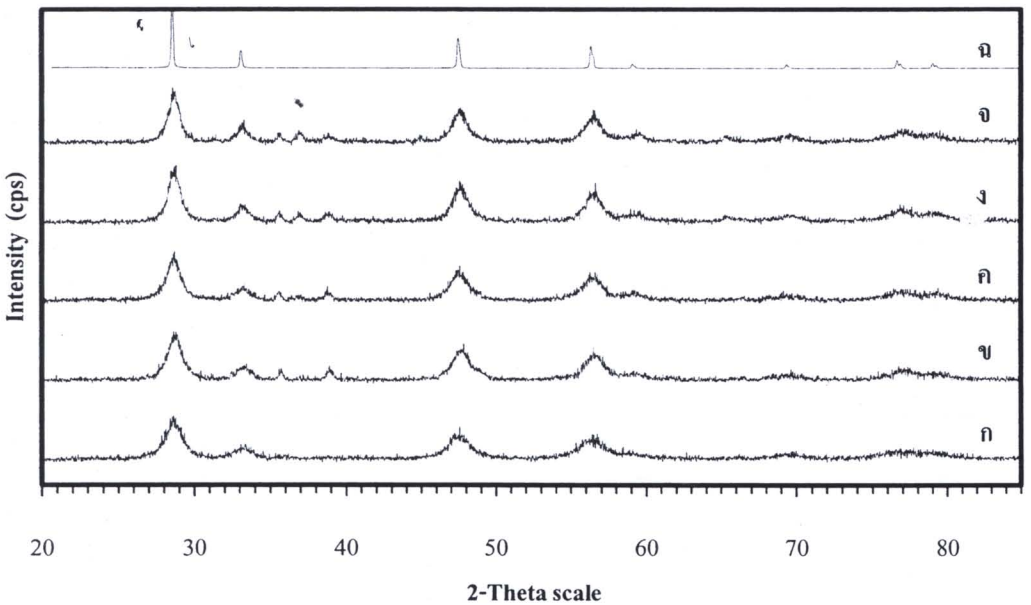


รูปที่ 4.1 รูปแบบ XRD ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์อัตราส่วนทั้ง 5 สัดส่วน เทียบกับตำแหน่งพีคมาตรฐานของคอปเปอร์ออกไซด์ (CuO) (ก) CuO/CeO_2 (20:80) (ข) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:76:4) (ค) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:72:8) (ง) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:68:12) (จ) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:64:16) (ฉ) CuO 100%

จากรูป 4.1 แสดงผลการวิเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์ อัตราส่วนทั้ง 5 สัดส่วน โดยแกนแนวนอน แสดงมุม 2-Theta และแกนแนวตั้ง แสดงค่าความเข้มของสัญญาณจาก XRD (Intensity) ที่ตำแหน่งยอดพีคที่มุม 2-Theta เท่ากับ 32.5, 35.6, 38.9,

58.3, 65.8, 68.1, 72.4 และ 82.4 ซึ่งเป็นพีคมาตรฐานของสารประกอบคอปเปอร์ออกไซด์ ที่มีรูปแบบโครงสร้างแบบ Monoclinic ดังรูปที่ 4.1 ฉ. ทั้งนี้ตัวเร่งปฏิกิริยาทั้ง 5 อัตราส่วน มีการเติมคอปเปอร์ออกไซด์ในปริมาณที่เท่ากันคือ 20 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก พบว่าตำแหน่งของยอดพีคที่เกิดขึ้นตรงกับตำแหน่งพีคมาตรฐานของคอปเปอร์ออกไซด์ (CuO) ที่มีรูปแบบโครงสร้างแบบ Monoclinic ดังรูป 4.1 ก-จ.

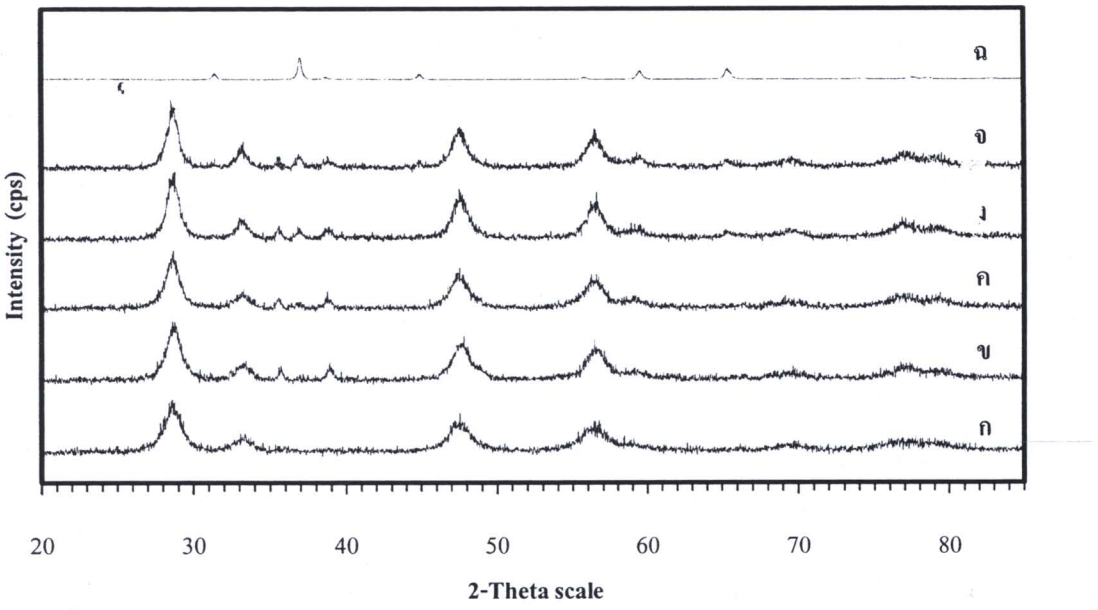
ในตัวเร่งปฏิกิริยายังมีออกไซด์อื่นเจือปน ได้แก่ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์ ผลการวิเคราะห์ด้วยเครื่อง XRD เพื่อหาโครงสร้างของซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ แสดงดังรูปที่ 4.2 และ 4.3 ตามลำดับ



รูปที่ 4.2 รูปแบบ XRD ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์อัตราส่วนทั้ง 5 สัดส่วน เทียบกับตำแหน่งพีคมาตรฐานของซีเรียมออกไซด์ (CeO_2) (ก) CuO/CeO_2 (20:80) (ข) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:76:4) (ค) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:72:8) (ง) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:68:12) (จ) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:64:16) (ฉ) CeO_2 100%

รูปที่ 4.2 แสดงผลการวิเคราะห์โครงสร้างของตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์ อัตราส่วนทั้ง 5 สัดส่วน ที่ตำแหน่งยอดพีคที่มุม 2-Theta เท่ากับ 28.6, 33.1,

47.5, 56.4, 59.1, 69.4 และ 76.7 เป็นพีคมาตรฐานของสารประกอบซีเรียมออกไซด์ ที่มีรูปแบบโครงสร้างผลึกแบบ Cubic แสดงดังรูปที่ 4.1 ฉ. ทั้งนี้ตัวเร่งปฏิกิริยาทั้ง 5 อัตราส่วน มีการเติมซีเรียมออกไซด์ในสัดส่วนที่ต่างกัน พบว่าตำแหน่งของยอดพีคที่เกิดขึ้นตรงกับตำแหน่งพีคมาตรฐานของซีเรียมออกไซด์ (CeO_2) ที่มีรูปแบบโครงสร้างแบบ Cubic และพีคจะเห็นได้เด่นชัดเมื่อปริมาณของซีเรียมออกไซด์เพิ่มขึ้น



รูปที่ 4.3 รูปแบบ XRD ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์อัตราส่วนทั้ง 5 สัดส่วน เทียบกับตำแหน่งพีคมาตรฐานของโคบอลต์ออกไซด์ (Co_3O_4) (ก) CuO/CeO_2 (20:80) (ข) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:76:4) (ค) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:72:8) (ง) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:68:12) (จ) $CuO:CeO_2:Co_3O_4$ (20:64:16) (ฉ) Co_3O_4 100%

รูปที่ 4.3 แสดงผลการวิเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์และซีเรียมออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์ อัตราส่วนทั้ง 5 สัดส่วน ที่ตำแหน่งยอดพีคที่มุม 2-Theta เท่ากับ 31.4, 36.9, 44.9, 55.8, 59.5, 65.4, 68.8, 69.9, 74.3, 77.6, 78.6, และ 82.9 เป็นพีคมาตรฐานของสารประกอบโคบอลต์ออกไซด์

(Co_3O_4) และมีรูปแบบโครงสร้างผลึกแบบ Cubic แสดงดังรูปที่ 4.1 ฉ. ทั้งนี้ตัวเร่งปฏิกิริยาทั้ง 5 อัตราส่วน มีการเติมโคบอลต์ออกไซด์ในสัดส่วนที่ต่างกัน พบว่า มีตำแหน่งของยอดพีคที่เกิดขึ้นตรงกับตำแหน่งพีคมาตรฐานของโคบอลต์ออกไซด์ (Co_3O_4) ที่มีรูปแบบโครงสร้างแบบ Cubic และพีคจะเห็นได้เด่นชัดเมื่อปริมาณของโคบอลต์ออกไซด์เพิ่มขึ้น

การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยวิธีการตกตะกอนร่วม จะได้คอปเปอร์ออกไซด์ (CuO) มีรูปแบบโครงสร้างแบบ Monoclinic ซึ่งตรงกับงานวิจัยของ Porta และคณะ (1988) ซีเรียมออกไซด์(CeO_2) มีรูปแบบโครงสร้างผลึกแบบ Cubic ตรงกับงานวิจัยของ Gidinho และคณะ (2007) และโคบอลต์ออกไซด์ (Co_3O_4) มีรูปแบบโครงสร้างแบบ Cubic ตรงกับงานวิจัยของ Mirzaei และคณะ (2006) จากการวิเคราะห์ขนาดผลึกและโครงสร้างทางเคมีของตัวเร่งปฏิกิริยา จะเห็นว่า ปริมาณของโลหะออกไซด์ที่แตกต่างกันในแต่ละอัตราส่วน ไม่ส่งผลกระทบต่อโครงสร้างผลึกคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ แต่อัตราส่วนของปริมาณโลหะออกไซด์ส่งผลต่อขนาดของผลึก และนอกจากนี้ โลหะทั้ง 3 ชนิดไม่มีการสร้างพันธะระหว่างกันขึ้น

รูปที่ 4.3 แสดงให้เห็นว่าเมื่อลดปริมาณซีเรียมออกไซด์และเพิ่มปริมาณโคบอลต์ออกไซด์ความกว้างของพีคจะแคบลง จึงสรุปได้ว่า ปริมาณของโคบอลต์ออกไซด์และซีเรียมออกไซด์ที่เติมลงในตัวเร่งปฏิกิริยา มีผลต่อขนาดผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยา โดยพิจารณาจากสมการของ Sherer คือ $d_{B(hkl)} = \frac{K\lambda}{B_d \cos\theta}$ ซึ่งใช้ในการคำนวณขนาดของผลึก มีตัวแปรสำคัญที่มีผลต่อขนาดผลึกคือ ค่าความกว้างที่ครึ่งหนึ่งของความสูงจุดสัญญาณ (B_d) เมื่อขนาดความกว้างของพีคแคบลงจะส่งผลให้ค่าความกว้างที่ได้ครึ่งหนึ่งของความสูงจุดสัญญาณมีค่าน้อยลงไปด้วย และค่าขนาดผลึกเฉลี่ยจะมีค่าเพิ่มขึ้น ซึ่งจากกราฟ พบว่าค่าความกว้างของพีคแคบลงตามปริมาณของโคบอลต์ออกไซด์และปริมาณซีเรียมออกไซด์ที่เปลี่ยนไป เมื่อปริมาณอัตราส่วนของซีเรียมออกไซด์ลดลงปริมาณอัตราส่วนของโคบอลต์ออกไซด์สูงขึ้น ส่งผลให้ผลึกมีขนาดใหญ่ขึ้น แสดงดังตาราง 4.2

ตารางที่ 4.2 ขนาดผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์ต่อปริมาณซีเรียมออกไซด์ ที่มีโคบอลต์ออกไซด์เป็นสารโปรโมทร่วมที่อัตราส่วนร้อยละโดยน้ำหนักต่างกัน

สารประกอบ (ร้อยละโดยปริมาตร)			ขนาดผลึก (นาโนเมตร)		
CuO	CeO_2	Co_3O_4	CuO	CeO_2	Co_3O_4
20	80	0	13.4	3.8	-
20	76	4	13.9	4.5	< 3
20	72	8	15.1	5.0	11.9
20	68	12	11.5	5.3	10.8
20	64	16	14.9	5.5	12.4
20	0	80	12.8	-	13.8
0	0	100	-	-	16.6

ตารางที่ 4.2 พบว่า ขนาดผลึกของซีเรียมออกไซด์ที่มีอัตราส่วนร้อยละโดยน้ำหนักของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ ร้อยละ 20:80 คือ 3.8 นาโนเมตร เมื่อลดปริมาณของซีเรียมออกไซด์ลง เพิ่มปริมาณโคบอลต์ออกไซด์ โดยปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์คงเดิม ที่อัตราส่วนร้อยละโดยน้ำหนักของ คอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ ร้อยละ 20:76:4 ขนาดผลึกของคอปเปอร์ออกไซด์เป็น 13.9 นาโนเมตร ซีเรียมออกไซด์ 4.5 นาโนเมตร และโคบอลต์ออกไซด์ น้อยกว่า 3 นาโนเมตร ที่อัตราส่วนร้อยละ 20:72:8 ขนาดผลึกของคอปเปอร์ออกไซด์เพิ่มขึ้นเป็น 15.1 นาโนเมตร ขนาดผลึกซีเรียมเพิ่มขึ้นเป็น 5.0 นาโนเมตร และขนาดผลึกของโคบอลต์ออกไซด์เพิ่มขึ้นเป็น 11.9 นาโนเมตร เมื่ออัตราส่วนร้อยละโดยน้ำหนักของ คอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ เป็นร้อยละ 20:68:12 ร้อยละ 20:64:16 มีขนาดผลึกของคอปเปอร์ออกไซด์เท่ากับ 11.5, 14.9 นาโนเมตร ตามลำดับ ขนาดผลึกของซีเรียมออกไซด์เพิ่มขึ้นตามลำดับดังนี้ 5.3 นาโนเมตรและ 5.5 นาโนเมตร ขนาดผลึกของโคบอลต์ออกไซด์เพิ่มขึ้นตามปริมาณโคบอลต์ออกไซด์ที่เติมลงไปคือ 10.8, 12.4 นาโนเมตร ตามลำดับ ที่อัตราส่วนร้อยละโดยน้ำหนักของคอป

เปอร์ออกไซด์และโคบอลต์ออกไซด์เป็น 20:80 ทำให้ขนาดผลึกของคอปเปอร์ออกไซด์เป็น 12.8 นาโนเมตร และขนาดผลึกของโคบอลต์ออกไซด์เป็น 13.8 นาโนเมตร เมื่อปริมาณโคบอลต์ออกไซด์เป็นหนึ่งร้อยเปอร์เซ็นต์ ขนาดผลึกของโคบอลต์ออกไซด์ใหญ่ที่สุดคือ 16.6 นาโนเมตร จากการศึกษาพบว่าปริมาณของโลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ ส่งผลกระทบต่อขนาดผลึก และพบว่าขนาดผลึกมีความสัมพันธ์กับพื้นที่ผิวจำเพาะ ดังแสดงไว้ในตารางที่ 4.1 เมื่อผลึกมีขนาดเล็กจะส่งผลให้ตัวเร่งปฏิกิริยามีพื้นที่ผิวจำเพาะสูงสุด เช่น ที่อัตราส่วนร้อยละโดยน้ำหนักของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ ร้อยละ 20:76:4 มีขนาดผลึกที่เล็กที่สุดในจำนวนอัตราส่วนทั้งหมด และพบว่ามีพื้นที่ผิวจำเพาะสูงที่สุดด้วย

4.2 การทดสอบความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน

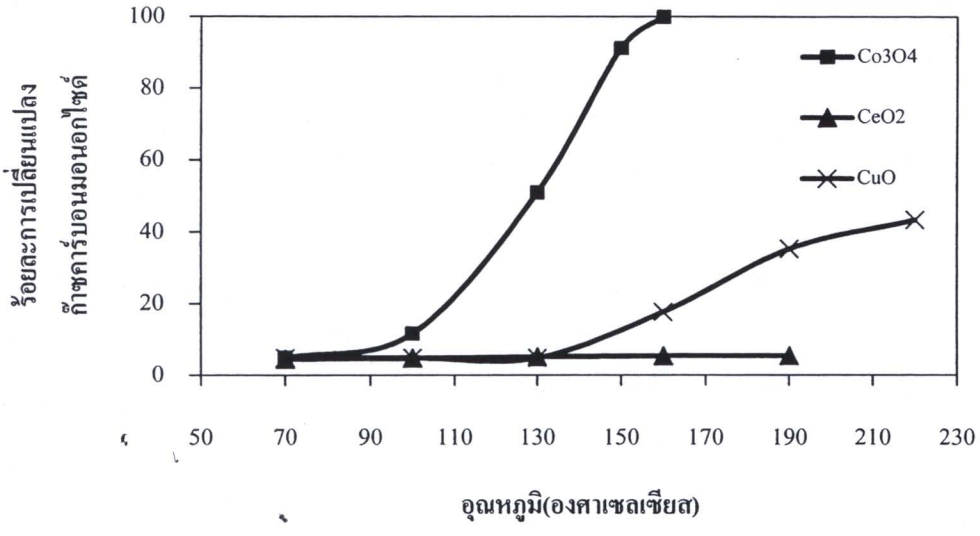
ในการทดลองนี้เป็นการศึกษาความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันของสารประกอบโลหะออกไซด์ผสมที่เตรียมได้ โดยการทดสอบที่สภาวะก๊าซผสมในสายป้อน ประกอบด้วย ก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ร้อยละ 1 โดยปริมาตร ก๊าซออกซิเจนร้อยละ 1 โดยปริมาตร และก๊าซฮีเลียมร้อยละ 98 โดยปริมาตร ความเร็วสเปซที่ใช้คือ 75,000 ลูกบาศก์เซนติเมตรต่อกรัมต่อชั่วโมง ปัจจัยที่ศึกษาได้แก่

- ชนิดของโลหะออกไซด์
- ผลของโคบอลต์ออกไซด์ในโลหะออกไซด์ผสม
- ปริมาณของโคบอลต์ออกไซด์ในโลหะออกไซด์ผสม

ผลการทดลองของแต่ละกรณีแสดงดังต่อไปนี้

- ชนิดของโลหะออกไซด์

ในการทดลองนี้สารประกอบโลหะออกไซด์ 3 ชนิด ได้แก่ คอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ ถูกนำมาทดสอบการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน ผลการทดลองแสดงดังรูปที่ 4.4



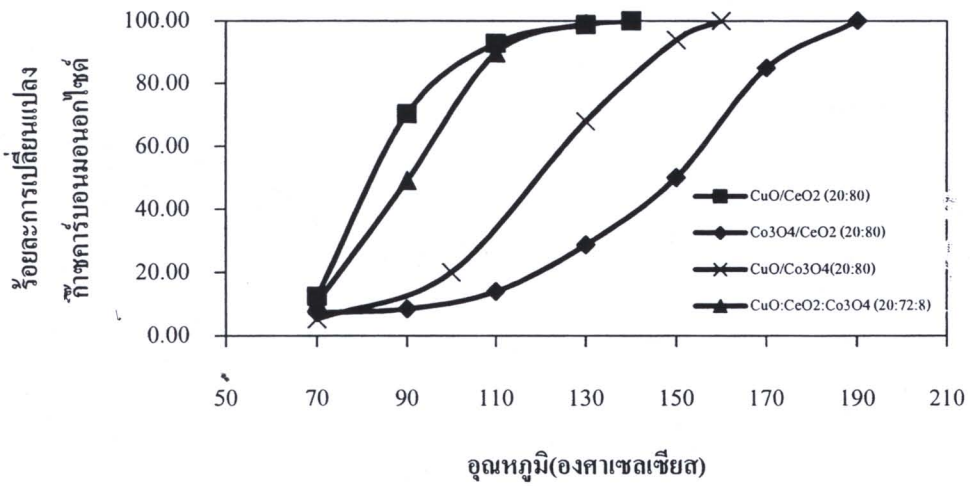
รูปที่ 4.4 ความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันของโลหะออกไซด์ต่างๆ

รูปที่ 4.4 แสดงผลการเร่งปฏิกิริยาของโลหะออกไซด์ทั้ง 3 ชนิด ที่อุณหภูมิต่างๆโดยแกนนอนแสดงค่าอุณหภูมิในการเกิดปฏิกิริยา และแกนตั้งแสดงค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ พบว่าที่อุณหภูมิสูงขึ้น การเกิดปฏิกิริยาเกิดได้ดีขึ้น กล่าวคือ ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์มีค่าเพิ่มขึ้น อย่างไรก็ตามซีเรียมออกไซด์ไม่แสดงการเร่งปฏิกิริยานี้เลย ขณะที่โคบอลต์ออกไซด์เร่งปฏิกิริยาได้ที่สุด โดยให้ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ 100 ที่อุณหภูมิ 160 องศาเซลเซียส ที่อุณหภูมิเดียวกันนี้ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงคาร์บอนมอนอกไซด์เป็นร้อยละ 20 และน้อยกว่าร้อยละ 5 สำหรับคอปเปอร์ออกไซด์และซีเรียมออกไซด์ ตามลำดับ ดังนั้นอาจกล่าวได้ว่า โคบอลต์ออกไซด์เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันได้ดีกว่าคอปเปอร์ออกไซด์ ส่วนซีเรียมออกไซด์ไม่สามารถเร่งปฏิกิริยานี้ได้เลยในช่วงอุณหภูมิ 70-190 องศาเซลเซียส

- ผลของโคบอลต์ในโลหะออกไซด์ผสม

ในการทดลองนี้สารประกอบโลหะออกไซด์ผสม 4 ชนิด ได้แก่ คอปเปอร์ออกไซด์ซีเรียมออกไซด์, โคบอลต์ออกไซด์ซีเรียมออกไซด์ คอปเปอร์ออกไซด์โคบอลต์ออกไซด์ และคอปเปอร์ออกไซด์ซีเรียมออกไซด์ที่

เติมโคบอลต์ออกไซด์เป็นสารโปรโมทร่วม ถูกนำมาทดสอบการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน ผลการทดลองแสดงดังรูปที่ 4.5



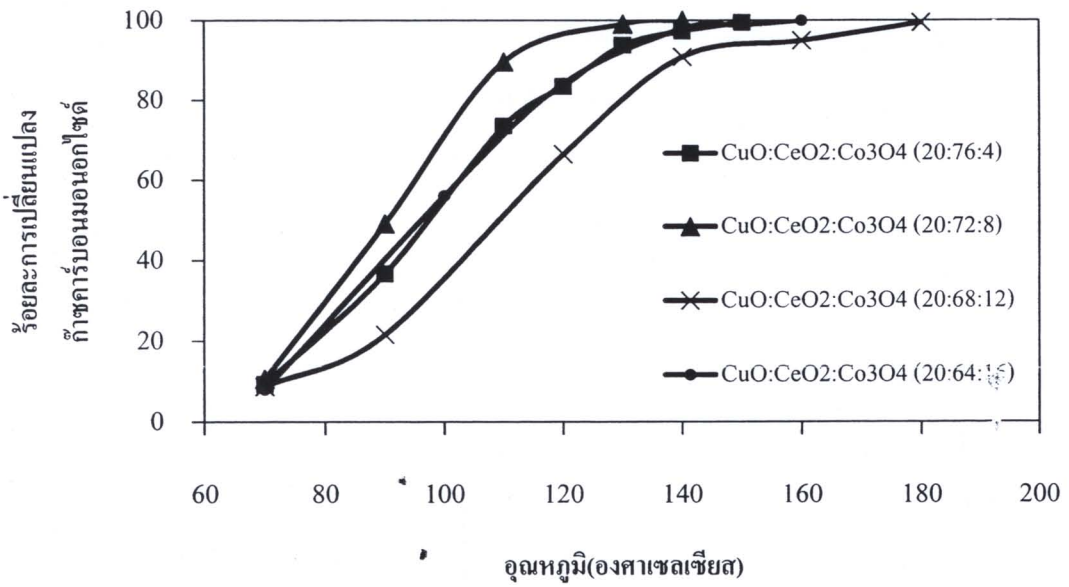
รูปที่ 4.5 ความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันของโลหะออกไซด์ผสมที่มีโคบอลต์เป็นองค์ประกอบ

รูปที่ 4.5 โลหะออกไซด์ผสมต่างๆ 4 ตัวอย่าง เมื่อนำมาทดสอบความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน พบว่า การนำโลหะออกไซด์มาใช้ร่วมกันส่งผลให้การเร่งปฏิกิริยาดีขึ้นโดยพิจารณา คอปเปอร์ออกไซด์ซีเรียมออกไซด์ คอปเปอร์ออกไซด์โคบอลต์ออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ซีเรียมออกไซด์ สารประกอบโลหะออกไซด์ผสมทั้ง 3 ตัวอย่างต่างให้ผลการเร่งปฏิกิริยาสูงกว่ากรณีที่ใช้แบบตัวเดียว (รูปที่ 4.4) โดยสามารถกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ได้อย่างสมบูรณ์ที่อุณหภูมิ 140 องศาเซลเซียส, 150 องศาเซลเซียส และ 190 องศาเซลเซียส ตามลำดับ โดยที่คอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ แสดงการเร่งปฏิกิริยาดีที่สุด เพราะกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ได้ที่อุณหภูมิต่ำที่สุดคือ 140 องศาเซลเซียส ทั้งนี้การที่คอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ เร่งปฏิกิริยาได้ดีกว่า โคบอลต์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และคอปเปอร์ออกไซด์ โคบอลต์ออกไซด์ อาจสืบเนื่องมาจากคุณสมบัติการกักเก็บออกซิเจนของซีเรียมออกไซด์และขนาดผลึกของโลหะออกไซด์ โดยผลึกขนาดเล็กของโลหะออกไซด์ นำไปสู่การเพิ่มการกักเก็บก๊าซออกซิเจนของซีเรียมออกไซด์ ทำให้การเร่งปฏิกิริยาดีขึ้น (Zengzan และคณะ, 2006)

นอกจากนี้ยังได้ทำการทดสอบความว่องไวในการเร่งปฏิกิริยาที่มี 3 องค์ประกอบ ซึ่งพบว่าการเติมโคบอลต์ออกไซด์ร้อยละ 8 โดยน้ำหนัก ให้ผลการเร่งปฏิกิริยาใกล้เคียงกับคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ โดยสามารถกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ได้อย่างสมบูรณ์ที่อุณหภูมิ 140 องศาเซลเซียส ทั้งนี้เป็นไปตามงานวิจัยของ Bielun และคณะ (2010) พบว่า Co_3O_4/CeO_2 เป็นการเพิ่มความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาของคอปเปอร์ออกไซด์และยังส่งผลให้พื้นที่ผิวจำเพาะสูง และขนาดของโลหะออกไซด์ผสมมีขนาดเล็ก ซึ่งผลการทดลองนี้ตรงกับใจความสำคัญของงานวิจัยดังกล่าว

- ปริมาณของโคบอลต์ออกไซด์ในโลหะออกไซด์ผสม

เนื่องจากการเติมโคบอลต์ออกไซด์ในโลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ซีเรียมออกไซด์ ทำให้ขนาดผลึกของโลหะเล็กลง ดังนั้นในการทดลองนี้จะศึกษาปริมาณโคบอลต์ออกไซด์ในโลหะออกไซด์ผสมต่อการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน ผลการทดลองแสดงดังรูปที่ 4.6



รูปที่ 4.6 ความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันของตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีอัตราส่วนร้อยละของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ที่อัตราส่วนร้อยละต่างๆ

สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย

รูปที่ 4.6 ตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีอัตราส่วนร้อยละของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์เป็นร้อยละ 20:76:4 โดยน้ำหนัก, ร้อยละ 20:72:8 โดยน้ำหนัก, ร้อยละ 20:68:12 โดยน้ำหนัก และร้อยละ 20:64:16 โดยน้ำหนัก เมื่อนำมาทดสอบความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน พบว่า ตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งหมดมีความสามารถในการเร่งปฏิกิริยา กล่าวคือ สามารถกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ได้อย่างสมบูรณ์ที่อุณหภูมิ 150 องศาเซลเซียส, 140 องศาเซลเซียส, 180 องศาเซลเซียส และ 160 องศาเซลเซียส ตามลำดับ โดยที่ ตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีอัตราส่วนร้อยละของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์เป็น ร้อยละ 20:72:8 โดยน้ำหนัก แสดงการเร่งปฏิกิริยาดีที่สุด เพราะกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ได้ที่อุณหภูมิต่ำที่สุด ทั้งนี้เหตุที่ตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีอัตราส่วนร้อยละของโคบอลต์เป็นร้อยละ 8 โดยน้ำหนักมีความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาดีที่สุดอาจจะสืบเนื่องมาจากพื้นที่ผิวจำเพาะที่สูง และขนาดของรูพรุนที่เล็ก (พิจารณาตารางที่ 4.1) สำหรับอัตราส่วนของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะผสมออกไซด์ คอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ และโคบอลต์ออกไซด์ ร้อยละ 20:76:4 โดยน้ำหนัก มีพื้นที่จำเพาะสูงแต่มีขนาดของรูพรุนที่ใหญ่ เมื่อเปรียบเทียบกับตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีอัตราส่วน ร้อยละ 20:72:8 โดยน้ำหนัก มีพื้นที่ผิวจำเพาะสูงใกล้เคียงกับตัวเร่งอัตราส่วนร้อยละ 20:76:4 โดยน้ำหนัก แต่มีขนาดของรูพรุนที่เล็กกว่ามาก จึงทำให้มีความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาที่สูงกว่า โดยสังเกตได้จากค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ที่สูงกว่าเมื่อเปรียบเทียบที่อุณหภูมิเดียวกัน ซึ่ง Park และคณะ (2003) ได้กล่าวไว้ในงานวิจัยของเขาว่า ความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งมีความสัมพันธ์กับ พื้นที่ผิวจำเพาะ ขนาดของรูพรุน และขนาดของโลหะออกไซด์

ผลการทดลองการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันทำให้สรุปได้ว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีโคบอลต์ออกไซด์ร้อยละ 8 โดยน้ำหนัก ในโลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ ซีเรียม แสดงความว่องไวในการเร่งปฏิกิริยาได้ดีที่สุด ดังนั้น **โครงการวิจัยในปีที่ 2** จะเป็นการทดสอบความว่องไวในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันในสภาวะที่มีก๊าซไฮโดรเจนในปริมาณที่มากเกินพอ รวมถึงการศึกษาการเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยานี้ในสภาวะที่มีก๊าซอื่นๆเจือปน เพื่อใช้ในการทำก๊าซไฮโดรเจนให้บริสุทธิ์ต่อไป