CARBON DIOXIDE AND STEAM CONVERSION TO SYNGAS THROUGH SOLID OXIDE ELECTROLYSIS CELL

JATUPONG SARABUT 5837434 EGCH/M

M.Eng. (CHEMICAL ENGINEERING)

THESIS ADVISORY COMMITTEE: PATTARAPORN KIM, Ph.D., WORANART JONGLERTJUNYA, Ph.D., SIRA SRINIVES, Ph.D.

ABSTRACT

Syngas was produced from CO_2 and steam using a solid oxide electrolysis cell (SOEC). $BaCeO_{3-\delta}$ (BC), $Ba_{0.6}Sr_{0.4}CeO_{3-\delta}$ (BSC), $Ba_{0.6}Sr_{0.4}Ce_{0.9}Y_{0.1}O_{3-\delta}$ (BSCY), and $BaCe_{0.9}Zr_{0.4}O_{3-\delta}$ (BCZ) were synthesized using solid state reaction method. BC, BSC, and BSCY were calcined at 1100^{o}C for 2h while BCZ was calcined at 1300^{o}C for 12h. All samples exhibit of 100%perovskite and crystalize size was 37.05 nm, 28.46 nm, 23.65 nm, and 17.46 nm for BC, BSC, BSCY, and BCZ, respectively. The proton conductivity was tested (400-800^{o}C) and it was found that the conductivity increased with the increasing temperature. The activity toward the reverse water gas shift reaction (RWGS) was also tested (400-800^{o}C), the CO was formed after 550^{o}C and the CO yield was found to depend on the crystalize size which BCZ showed to be of a higher yield than BSCY, BSC, and BC, respectively. Feed composition affected the CO production, the ratio of CO_2:H_2 at 1:3 provided higher CO yield than the ratio at 1:1. The composite of 40 wt.% Cu and electrolyte was tested toward RWGS, the addition of Cu significantly increased catalytic activity, the reaction temperature for RWGS decreased below 400^{o}C, and the CO yield of Cu/BSCY was higher than Cu/BCZ, Cu/BSC, and Cu/BC, respectively. The chemical stability of electrolyte samples was tested with CO_2-containing gas mixture gas (CO_2, H_2O and N_2) at 600^{o}C for 5h. The BCZ is stable in the gas environment. While impurity phases (CeO_2 and BaO_2) are detected in other samples (BC, BSC and BCZ).

KEY WORDS: SOLID OXIDE ELECTROLYSIS CELL / REVERSE WATER GAS SHIFT / STEAM ELECTROLYSIS / CO_2-UTILIZATION / BARIUM CERATE

79 pages

การเปลี่ยนคาร์บอนไดออกไซด์และไอน้ำเป็นก๊าซสังเคราะห์ด้วยเซลล์อิเล็กโตรไลซิสแบบออกไซด์ของแข็ง

CARBON DIOXIDE AND STEAM CONVERSION TO SYNGAS THROUGH SOLID OXIDE ELECTROLYSIS CELL

จตุพงศ์ สาระบุตร 5837434 EGCH/M

วศ.ม. (วิศวกรรมเคมี)

คณะกรรมการที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์: ภัทรพร คิม, Ph.D., วรนารถ จงเลิศจรรยา, Ph.D., ศิระ ศรีนิเวศน์, Ph.D.

บทคัดย่อ

ก๊าซสังเคราะห์ (Syngas) ถูกสังเคราะห์จากคาร์บอนไดออกไซด์ (CO_2) และน้ำ (H_2O) โดยใช้เซลล์อิเล็กโตรไลต์แบบของแข็ง (Solid oxide electrolysis cell, SOEC) สังเคราะห์วัสดุ $BaCeO_{3-\delta}$ (BC) $Ba_{0.6}Sr_{0.4}CeO_{3-\delta}$ (BSC) $Ba_{0.6}Sr_{0.4}Ce_{0.9}Y_{0.1}O_{3-\delta}$ (BSCY) และ $Ba_{0.6}Ce_{0.9}Zr_{0.4}O_{3-\delta}$ (BCZ) ด้วยวิธีปฏิกิริยาสถานะของแข็ง โดย BC BSC และ BSCY ใช้อุณหภูมิแคลไซน์ที่ 1100 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ส่วน BCZ ใช้อุณหภูมิแคลไซน์ที่ 1300 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 12 ชั่วโมง พบว่าทุกตัวอย่างมีค่าเปอร์เซ็นต์เฟอร์โรฟสไกป์ (% perovskite) เท่ากับ 100 และมีขนาดผลึกเทากับ 37.05 28.46 23.65 และ 17.46 นาโนเมตร สำหรับ BC BSC BSCY และ BCZ ตามลำดับ เมื่อทำการทดสอบการนำโปรตอนที่อุณหภูมิระหว่าง 400-800 องศาเซลเซียส พบว่าค่าการนำโปรตอนสูงขึ้นตามอุณหภูมิที่เพิ่มขึ้น เมื่อทำการทดสอบปฏิกิริยา reverse water gas shift (RWGS) ที่ช่วงอุณหภูมิเดียวกัน คาร์บอนมอน็อกไซด์ (CO) เกิดขึ้นเมื่ออุณหภูมิสูงกว่า 550 องศาเซลเซียส และพบว่า เปอร์เซ็นต์ผลได้ของ CO แปรผันตามขนาดผลึก โดย BCZ มีค่าเปอร์เซ็นต์ผลได้ของคาร์บอนมอน็อกไซด์มากกว่า BSCY BSC และ BC ตามลำดับ และเมื่อพิจารณาสัดส่วนก๊าซที่ป้อน พบว่า อัตราส่วนระหว่าง CO_2:H_2 เท่ากับ 1:3 ให้ค่าเปอร์เซ็นต์ผลได้ของ CO มากกว่าที่อัตราส่วน 1:1 จากนั้นนำ Cu มาผสมกับอิเล็กโตรไลต์ในปริมาณ 40%โดยมวล พบว่า Cu ช่วยลดอุณหภูมิในการเกิดปฏิกิริยา RWGS ลงเหลือต่ำกว่า 400 องศาเซลเซียส และ Cu/BSCY ให้ค่าเปอร์เซ็นต์ผลได้ของคาร์บอนมอน็อกไซด์มากกว่า Cu/BCZ Cu/BSC และ Cu/BC ตามลำดับ จากการทดสอบความเสถียรภาพทางเคมีของอิเล็กโตรไลต์ ด้วยการทำปฏิกิริยา กับก๊าซผสม (CO_2, H_2O และ N_2) ที่อุณหภูมิ 600 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 5 ชั่วโมง พบว่า BCZ มีความเสถียรภาพทางเคมีเนื่องจากไม่มีการแตกตัวเป็นสารใหม่ ในขณะที่ BC BSC และ BSCY แตกตัวเป็น CeO_2 and BaO_2

79 หน้า