

ห้องสมุดงานวิจัย สำนักงานคณะกรรมการการวิจัยแห่งชาติ



190732



การตั้งเครื่องที่มีระบบคอมพิวเตอร์ที่เก็บโดยระบบอัตโนมัติ ของคอมพิวเตอร์ที่มีอยู่ในคอมพิวเตอร์

นายสมชาย ใจงาม

วิทยานิพนธ์นี้มีขึ้นเพื่อประโยชน์ของบุคคลที่มีอยู่ในคอมพิวเตอร์
ที่มีอยู่ในคอมพิวเตอร์ที่มีอยู่ในคอมพิวเตอร์ที่มีอยู่ในคอมพิวเตอร์
ของบุคคลที่มีอยู่ในคอมพิวเตอร์
การตั้งเครื่องที่มีระบบคอมพิวเตอร์ที่เก็บโดยระบบอัตโนมัติ

ค.ศ. 2559



การสังเคราะห์จีโนมออกไซด์ที่เติมโลหะวงไวโคบายรี คอลลอยคอลลิมัลชันแอฟรอน

นายอาษามะ เจะวานี วท.บ. (เคมีอุตสาหกรรม)

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตร
ปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต สาขาวิศวกรรมเคมี
คณะวิศวกรรมศาสตร์
มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีพระจอมเกล้าธนบุรี
พ.ศ. 2553

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

(รศ.ดร.ไพศาล คงคาอุบาย)

ประธานกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

(รศ.ดร.สมนึก จารุกิตกุล)

กรรมการและอาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์

(รศ.ดร.วิโรจน์ บุญอำนวทยา)

กรรมการ



กรรมการ

(รศ.ดร.นวล เหล่าศิริพันธ์)

ลิขสิทธิ์ของมหาวิทยาลัยเทคโนโลยีพระจอมเกล้าธนบุรี

หัวข้อวิทยานิพนธ์	การสังเคราะห์ซีเรียมออกไซด์ที่เติมโลหะว่องไวโดยวิธี คอลลอยคอลลิมัลชันแอฟรอน
หน่วยกิต	12
ผู้เขียน	นายอาฮามะ เจะวานี
อาจารย์ที่ปรึกษา	รศ.ดร.สมนึก จารุติลกกุล
หลักสูตร	วิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชา	วิศวกรรมเคมี
ภาควิชา	วิศวกรรมเคมี
คณะ	วิศวกรรมศาสตร์
พ.ศ.	2553

บทคัดย่อ

190732

งานวิจัยนี้ศึกษาการเตรียมซีเรียมออกไซด์ที่เติมโลหะว่องไว (นิกเกิล) โดยวิธีคอลลอยคอลลิมัลชันแอฟรอน (CEA) เพื่อให้ได้นิกเกิลบนตัวรองรับซีเรียมออกไซด์ โดยวิธีการเตรียมที่แตกต่างกัน 3 วิธี คือวิธีที่ (1) จุ่มแบบเปียก วิธีที่ (2) จุ่มตัวรองรับใน CEA ที่มีอนุภาคนิกเกิล วิธีที่ (3) การตกตะกอนร่วมของตัวรองรับกับโลหะว่องไว (นิกเกิล) ใน CEA แล้วนำตัวเร่งปฏิกิริยาที่ได้วิเคราะห์คุณสมบัติต่างๆ ได้แก่ โครงสร้างและขนาดของผลึกโดยเทคนิค XRD, รูปร่างขนาดอนุภาคโดยเทคนิค TEM หาพื้นที่ผิวและขนาดรูพรุนโดยเทคนิค BET, ปริมาณโลหะว่องไวในตัวเร่งปฏิกิริยาโดยเครื่อง ICP ผลการวิเคราะห์การพบว่าคุณสมบัติทางกายภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา ได้แก่ ขนาดของผลึก, พื้นที่ผิวและปริมาณโลหะว่องไวในตัวเร่งปฏิกิริยาจากแต่ละวิธีได้ผลดังนี้ วิธีที่ (1) ขนาดอนุภาค 6.42 นาโนเมตร, พื้นที่ผิว 118.6 m²/g, ปริมาณนิกเกิล 10.0%, วิธีที่ (2) ขนาดอนุภาค 10.9 นาโนเมตร, พื้นที่ผิว 89.64 m²/g, ปริมาณนิกเกิล 9.1% และวิธีที่ (3) ขนาดอนุภาค 5.11 นาโนเมตร, พื้นที่ผิว 117.40 m²/g, ปริมาณนิกเกิล 9.9% ตามลำดับ เมื่อนำตัวเร่งปฏิกิริยาที่ได้จากทั้ง 3 วิธี มาทดสอบในกระบวนการรีฟอร์มมิ่งมีเทนด้วยน้ำ (อัตราส่วนมีเทนต่อ น้ำ 1:3 อุณหภูมิเครื่องปฏิกรณ์ 900°C) ได้ผลการทดสอบคือตัวเร่งปฏิกิริยาตามการเตรียมวิธีที่ (2) ให้ค่าคอนเวอร์ชันมีเทนสูงที่สุด

เมื่อศึกษาภายใต้อิทธิพลอุณหภูมิการแคลไซด์ ตัวรองรับออกไซด์ร่วม และการแคลไซด์ภายใต้สภาวะในโครเจน พบว่าการเพิ่มอุณหภูมิเป็น 900°C ทำให้พื้นที่ผิวลดลง ขนาดของผลึกใหญ่ขึ้น ค่า Hydrogen consumption ลดลง ส่วนการทดสอบในกระบวนการรีฟอร์มมิ่งมีเทนด้วยน้ำได้ค่าคอนเวอร์ชันมีเทนสูงขึ้น ส่วนการเติมเซอร์โคเนียเป็นตัวรองรับออกไซด์ร่วมพบว่า พื้นที่ผิวสูงขึ้นทุกอัตราส่วนเมื่อเปรียบเทียบกับที่ไม่เติมเซอร์โคเนีย ขนาดผลึกเล็กลง แต่เมื่อเปรียบเทียบกับ Ce-Zr ทั้งสาม

190732

อัตราส่วนคือ 1/1, 1/3, 3/1 พบว่าที่อัตราส่วน 1/3 ได้ค่าพื้นที่ผิวสูงที่สุดคือ $135.90 \text{ m}^2/\text{g}$ ขนาดผลึกเล็กที่สุดคือ 11.59 nm สำหรับค่า Hydrogen consumption ที่อัตราส่วน 3/1 ดีที่สุด และผลของการทดลองในกระบวนการรีฟอร์มมิ่งมีเทนด้วยน้ำ ที่อัตราส่วน Ce-Zr[3/1] ได้ค่าคอนเวอร์ชันมีเทนสูงที่สุดและสูงกว่า Ni/CeO₂ สำหรับผลของการแคลไซด์ภายใต้ในโตรเจนของ Ni/CeO₂, Ni/Ce-Zr[3/1] พบว่าพื้นที่ผิวลดลงเมื่อเปรียบเทียบกับที่แคลไซด์ภายใต้บรรยากาศปกติ เมื่อทดสอบในกระบวนการรีฟอร์มมิ่งมีเทนด้วยน้ำได้ค่าคอนเวอร์ชันมีเทนลดลงเมื่อเปรียบเทียบกับตัวเร่งปฏิกิริยาที่แคลไซด์ภายใต้บรรยากาศปกติ

คำสำคัญ : ซีเรียออกไซด์ / คอลลอยคอลลิมัลชันแอฟรอน (CEA) / ตัวเร่งปฏิกิริยา / ปฏิกิริยารีฟอร์มมิ่ง / ซีเรีย-เซอร์โคเนีย / นิกเกิล

Thesis Title	Synthesis Cerium Oxide by Colloidal Emulsion Aphrons Loaded Active Metal
Thesis Credits	12
Candidate	Mr.Ahama Chewani
Thesis Advisor	Assoc.Prof.Dr. Somnuk Jarudilokkul
Program	Master of Engineering
Field of Study	Chemical Engineering
Department	Chemical Engineering
Faculty	Engineering
B.E.	2553

Abstract

190732

Preparation of nickel over cerium oxide supported by using Colloidal emulsion aphrons (CEA) was studied. Three different synthesis investigated methods were (1) incipient wetness impregnation, (2) impregnate the support into CEA loaded with nickel solution, and (3) co-precipitation in CEA of support and active metal. The synthesized particles were characterized by various techniques such as XRD, TEM, BET and ICP. It was found that the particle size, surface areas and nickel content of each method were (1) 6.42 nm, 118.6 m²/g, 10.0%, (2) 10.9 nm, 89.64 m²/g, 9.1%, and (3) 5.11 nm 117.40 m²/g, 9.9% respectively. The performance of all catalyst were tested with steam reforming of methane (methane: water 1:3, temperature of 900 °C). It showed that the catalyst prepared by method (2) exhibited the highest methane conversion.

When considering the influence of calcinations temperature, co-support and nitrogen atmosphere, it was found that at temperature of 900 °C the surface area decreased while crystal size increased. In addition, the hydrogen consumption decreased whereas in steam reforming methane conversion increased. For co-support by zirconia, the surface area increased with Ce-Zr all molar ratio compared with non zirconia. The crystal size of Ce-Zr at molar ratio of 1/3 was the highest with surface area of 135.9 m²/g and crystal size of 11.59 nm. However, at 3/1 molar ratio the best hydrogen consumption and methane conversion obtained. Calcination in nitrogen atmosphere of Ni/CeO₂, Ni/Ce-Zr [3/1] was found that the surface area was lower than that of atmospheric air calcination while the methane conversion in steam reforming of the particle decreased.

Keywords : Cerium Oxide / Colloidal Emulsion Aphrons (CEA) / Catalyst / Reforming / Ceria-Zirconia / Nickel

กิตติกรรมประกาศ

ข้าพเจ้าขอขอบพระคุณอาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ รศ.ดร.สมนึก จารุติลกกุล ที่ให้คำปรึกษาและแนะนำสิ่งต่างๆที่เป็นประโยชน์แก่ข้าพเจ้า และขอขอบคุณ รศ.ดร.นพดล เหล่าศิริพจน์ ที่ให้คำแนะนำที่ดีเพิ่มเติมและทดสอบตัวร่างปฏิบัติการให้โดยตลอด ขอขอบคุณอาจารย์กรรมการทุกท่าน อันประกอบด้วย รศ.ดร.วิโรจน์ บุญอำนวยวิทยา และ รศ.ดร.ไพศาล คงคาฉุยฉาย ที่ให้เกียรติและสละเวลาให้คำแนะนำกับงานวิจัยนี้ ขอขอบคุณอาจารย์ละเอียด เพ็งโสภา พี่อ่อนสา และบุคลากรประจำห้องปฏิบัติการ ภาควิชาวิศวกรรมเคมี ที่อำนวยความสะดวกและให้คำแนะนำที่ดีมาโดยตลอด ขอขอบคุณเพื่อนๆนักศึกษาปริญญาโททุกท่าน และท้ายที่สุดขอขอบคุณครอบครัวของข้าพเจ้า โดยเฉพาะพ่อและแม่ที่สนับสนุนกำลังใจมาโดยตลอด

ประโยชน์อันใดที่เกิดจากวิทยานิพนธ์เล่มนี้ย่อมเป็นผลมาจากความกรุณาของท่านที่กล่าวมาข้างต้น ข้าพเจ้าขอขอบพระคุณมา ณ โอกาสนี้

สารบัญ

หน้า

บทคัดย่อภาษาไทย	ข
บทคัดย่อภาษาอังกฤษ	ง
กิตติกรรมประกาศ	จ
สารบัญ	ฉ
รายการตาราง	ช
รายการรูปประกอบ	ฉ

บทที่

1. บทนำ	1
1.1 ความสำคัญและที่มาของงานวิจัย	1
1.2 วัตถุประสงค์	2
1.3 ขอบเขตของงานวิจัย	3
1.4 ประโยชน์ที่คาดว่าจะได้รับ	3
2. งานวิจัยที่ผ่านมาและทฤษฎี	4
2.1 งานวิจัยที่ผ่านมา	4
2.2 สารประกอบซีเรียมออกไซด์	10
2.3 ตัวเร่งปฏิกิริยาเคมี	12
2.4 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา	13
2.5 การวิเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยา	24
2.6 กระบวนการปฏิรูปด้วยไอน้ำ (Steam Reforming)	26
3. การดำเนินงานวิจัย	28
3.1 สารเคมีและก๊าซที่ใช้ในการทดลอง	28
3.2 เครื่องมือและอุปกรณ์	28
3.3 ขั้นตอนการทดลอง	29
3.4 การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวเร่งปฏิกิริยา	37
3.5 ศึกษาประสิทธิภาพตัวเร่งปฏิกิริยาในกระบวนการ Steam reforming	39

4. ผลการทดลองและวิจารณ์ผลการทดลอง	40
4.1 การเตรียมซีเรียมออกไซด์ที่มีการเติมโลหะว่องไวด้วยวิธีการต่างๆ	40
4.2 อิทธิพลอุณหภูมิของการเคลือบ	55
4.3 อิทธิพลของตัวรองรับออกไซด์ร่วม	59
4.4 อิทธิพลของการเคลือบภายใต้สถานะไนโตรเจน	64
 5. สรุปผลการทดลอง	 69
5.1 บทสรุป	69
5.2 ข้อเสนอแนะ	70
 เอกสารอ้างอิง	 71
 ภาคผนวก ก. ตัวอย่างการคำนวณองค์ประกอบของตัวเร่งปฏิกิริยา และผลที่ได้จากการทดลอง	 76
 ประวัติผู้วิจัย	 82

รายการตาราง

ตาราง	หน้า
2.1 เปรียบเทียบความสามารถของสารลดแรงตึงผิวทั้ง 4 ชนิด ในการทำให้เกิดฟองการซักล้าง และการทำให้พื้นผิวเกิดความอ่อนนุ่ม	24
4.1 คุณลักษณะทางกายภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาทั้ง 3 วิธี	47
4.2 ค่าเฉลี่ยของปริมาณธาตุองค์ประกอบ (% โดยน้ำหนัก) จากภาพถ่าย SEM/EDXS ของตัวเร่งปฏิกิริยาทั้ง 3 วิธี	49
4.3 ค่า Methane Conversion และ Carbon formation จากการทดสอบ Steam reforming ด้วยมีเทนของตัวเร่งปฏิกิริยาที่ได้จากการสังเคราะห์ทั้ง 3 วิธี	54
4.4 คุณลักษณะทางกายภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา แคลไซด์ที่อุณหภูมิ 900°C	57
4.5 ค่า Methane Conversion และ Carbon formation จากการทดสอบ Methane Steam reforming	59
4.6 คุณลักษณะทางกายภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีการเติมเซอร์โคเนีย	61
4.7 ค่า Methane Conversion และ Carbon formation จากการทดสอบ Methane Steam reforming ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีการเติมเซอร์โคเนีย	64
4.8 คุณลักษณะทางกายภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาที่แคลไซด์ภายใต้ในโตรเจน	66
4.9 ค่า Methane Conversion และ Carbon formation จากการทดสอบ Methane Steam reforming ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่แคลไซด์ภายใต้บรรยากาศไนโตรเจน	68

รายการรูปประกอบ

รูป	หน้า
2.1 โครงสร้างผลึกของซีเรียมออกไซด์	11
2.2 โครงสร้างของ Colloidal Gas Aphrons	16
2.3 โครงสร้างของ Colloidal Liquid Aphrons	16
2.4 โครงสร้างของ Colloidal Emulsion Aphrons	18
2.5 ลักษณะของ CEAs ขณะที่เทลงน้ำและหลังจากที่เทลงน้ำแล้วสามวินาที	18
2.6 ลักษณะการกระจายตัวของ CEAs และ W/O Emulsion ในน้ำขณะที่มีการกวนเบาๆ	19
2.7 โครงสร้างของสารลดแรงตึงผิว	20
2.8 การเรียงตัวของสารลดแรงตึงผิวในน้ำ	20
3.1 ขั้นตอนการเตรียมซีเรียมออกไซด์	30
3.2 ขั้นตอนการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยารูปที่ 1	31
3.3 ขั้นตอนการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยารูปที่ 2	33
3.4 ขั้นตอนการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยารูปที่ 3	35
4.1 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ ของตัวเร่งปฏิกิริยา Ni/CeO ₂ จากทั้ง 3 วิธี	41
4.2 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ ของตัวเร่งปฏิกิริยา 50%Ni/CeO ₂	42
4.3 TEM Photographs ลักษณะอนุภาค CeO ₂	43
4.4 TEM Photographs ลักษณะอนุภาค Ni/CeO ₂ ที่สังเคราะห์โดยวิธีที่ 1	44
4.5 TEM Photographs ลักษณะอนุภาค Ni/CeO ₂ ที่สังเคราะห์โดยวิธีที่ 2	45
4.6 TEM Photographs ลักษณะอนุภาค Ni/CeO ₂ ที่สังเคราะห์โดยวิธีที่ 3	46
4.7 SEM Photographs ลักษณะอนุภาค Ni/CeO ₂ ที่สังเคราะห์โดยทั้ง 3 วิธี ที่กำลังขยาย 250 เท่า	48
4.8 SEM/EDXS Photographs (กำลังขยาย 8.5×10 ³)	50
4.9 SEM/EDXS Photographs (กำลังขยาย 15 ×10 ³)	51
4.10 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการรีดักชันตามอุณหภูมิที่โปรแกรม ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่ได้จากวิธีการเตรียมต่างกัน	53
4.11 ค่า Methane Conversion จากการทดสอบ Steam reforming มีเทนด้วยน้ำ เป็นเวลา 6 hr ที่อุณหภูมิ 900°C ของตัวเร่งปฏิกิริยา Ni/CeO ₂ และ CeO ₂	55

- 4.12 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของตัวเร่งปฏิกิริยา
ที่อุณหภูมิการแคลไซต์ต่างกัน 56
- 4.13 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการรีดักชันตามอุณหภูมิที่โปรแกรม
ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่ได้จากการแคลไซต์ที่อุณหภูมิต่างกัน 58
- 4.14 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์
ของตัวเร่งปฏิกิริยาตัวรองรับออกไซด์ร่วม 60
- 4.15 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการรีดักชันตามอุณหภูมิที่โปรแกรม
ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เติมเซอร์โคเนียเป็นตัวรองรับออกไซด์ร่วม 62
- 4.16 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์
ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่แคลไซต์ภายใต้สถานะไนโตรเจน 65
- 4.17 ผลการวิเคราะห์ที่ได้จากเทคนิคการรีดักชันตามอุณหภูมิที่โปรแกรม
ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่แคลไซต์ภายใต้ไนโตรเจน 67