HIGH-THROUGHPUT PRIMARY SCREENINGS OF METHANE CATALYTIC COMBUSTION BY A MULTI-FLOW REACTOR

Mr. Natthakorn Kraikul

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 du Pétrole
2004

ISBN 974-9651-30-8

Thesis Title:	High-Throughput Primary Screenings of Methane Catalytic Combustion by a Multi-flow Reactor
By:	Mr. Natthakorn Kraikul
Program:	Petrochemical Technology
Thesis Advisors:	Dr. Sirirat Jitkarnka
	Dr. Apanee Luengnaruemitchai
	Prof. Daniel E. Resasco

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

College Director

(Assoc. Prof. Kunchana Bunyakiat)

Thesis Committee:

(Dr. Sirirat Jitkarnka)

(Dr. Apanee Luengnaruemitchai)

(Prof. Daniel E. Resasco)

(Assoc. Prof. Thirasak Rirksomboon)

(Asst. Prof. Pomthong Malakul)

ABSTRACT

4571009063: PETROCHEMICAL TECHNOLOGY PROGRAM
Natthakorn Kraikul: High-Throughput Primary Screenings of Methane Catalytic Combustion by a Multi-flow Reactor.
Thesis Advisors: Dr.Sirirat Jitkarnka, Dr.Apanee Luengnaruemitchai, and Prof. Daniel E. Resasco, 93 pp. ISBN 974-9651-30-8
Keywords: Catalytic Combustion/ High-Throughput/ Multi-flow Reactor
Bi -element Catalyst/ Tri-element Catalyst

Catalytic combustion of natural gas has been considered as an ongoing challenge to achieve ultra low emissions, and improve turbine efficiency over the past decade. The best catalyst suggested was Pd/γ-Al_2O_3, however, its lights-off temperature and time-on-stream properties are still challenging to be enhanced as well as cost reduction on noble metal usage. In this study, palladium (Pd), platinum (Pt), and lanthanum (La) were employed and also co-loaded in bi- and tri-element system supported on γ-Al_2O_3 washcoated ceramic monolith. Multi-flow reactor equipped with gas chromatograph (GC) based on the concept of high throughput screening was employed to screen both conversion and selectivity of all catalysts. Two parameters affecting combustion activity, which are the calcination steps related to the alumina phase and loading amount, were prior studied to determine an appropriate conditions used for generating other catalysts for further experiments. The combustion activity results indicated that the catalyst should be prepared by pre-calcinating washcoated monolith at 500°C for 3 hrs before being impregnated with 5%wt of total loading. After that, it should be re-calcined at 900°C for 3 hrs before being used. The substitution of Pd by Pt, while maintaining 5% total loading, was observed to improve the combustion activity, however, its combustion activity was slightly decreased when Pt was further substituted by La. Nevertheless, the use of Pd and Pt in equivalent amount with three times of La dilution (Pd:Pt:La = 1:1:3) was suggested to be the best formula not only due to its high combustion activity at even low temperatures, but also the reduction of noble metal usage.

บทคัดย่อ

ณัฐกร ไกรกุล : การทดสอบความสามารถของตัวเร่งปฏิกิริยาการเผาไหม้ของมีเทนวิธีทดสอบแบบไฮทรูพุทด้วยเครื่องปฏิกรณ์แบบหลายท่อไหล (High-Throughput Primary Screenings of Methane Catalytic Combustion by a Multi-flow Reactor) อ. ที่ปรึกษา: ดร. ศิริรัตน์ จิตการค้า ดร. อาภาณี เหลืองนฤมิตชัย และ ศ.ดร. แดเนียล อี รีสาสโก 93 หน้า ISBN 974-9651-30-8

การเผาไหม้โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาของก๊าซธรรมชาติถูกพิจารณาว่าเป็นทางเลือกที่สามารถลดปริมาณสารมลพิษที่ถูกปล่อยออกสู่บรรยากาศและช่วยเพิ่มประสิทธิภาพของกังหันความร้อนตลอดทศวรรษที่ผ่านมา ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ถูกพบว่าดีที่สุด คือพาลลาเดียมบนตัวรองรับแกมมา-อะลูมินา อย่างไรก็ตาม อุณหภูมิไลท์-ออฟ (lights-off temperature) และ สมบัติไทม์-ออน-สตรีม (time-on-stream properties) ของตัวเร่งปฏิกิริยาดังกล่าวยังคงเป็นสิ่งท้าทายที่จะปรับปรุงให้ดีขึ้น เช่นเดียวกับการลดปริมาณการใช้โลหะมีตระกูลในการเร่งปฏิกิริยา ตัวเร่งปฏิกิริยาในงานวิจัยนี้ ได้แก่ พาลลาเดียม แพลทินัม แลนทานัม ที่เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาแบบองค์ประกอบเดียว และตัวเร่งปฏิกิริยาผสมในระบบสองและสามองค์ประกอบบนตัวรองรับแกมมา-อะลูมินา ตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งหมดถูกทดสอบทั้งความความสามารถในการเกิดปฏิกิริยาและความเลือกเฉพาะในการเกิดปฏิกิริยาโดยเครื่องปฏิกรณ์แบบหลายท่อไหลตามหลักการแบบไฮทรูพุท ตัวแปรสองชนิดที่มีผลต่อความสามารถในการเร่งปฏิกิริยา ได้แก่ ขั้นตอนการเผาตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยอุณหภูมิซึ่งสัมพันธ์กับเฟสของอะลูมินา และ ปริมาณการใช้โลหะ ถูกศึกษาเพื่อหาสภาวะที่เหมาะสมสำหรับเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาตัวอื่นต่อไป ผลการศึกษาเบื้องต้นชี้ว่า ควรเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาโดยนำโมโนลิทที่ถูกเคลือบแล้วไปเผาที่ 500°ซ เป็นเวลา 3 ชม. ก่อนนำมาทำให้ชุ่มด้วยสารละลายของโลหะให้ได้น้ำหนักรวมของโลหะเป็น 5% โดยน้ำหนัก จากนั้นนำไปเผาอีกครั้งที่ 900°ซ เป็นเวลา 3 ชม. ก่อนนำไปใช้งานจึงจะได้ผลดีที่สุด ในการทดสอบสารเร่งปฏิกิริยาแบบหลายองค์ประกอบ การใช้แพลทินัมแทนที่พาลลาเดียมโดย คงน้ำหนักรวมของโลหะเป็น 5% ทำให้ความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาเผาไหม้ของตัวเร่งปฏิกิริยาสูงขึ้น อย่างไรก็ตาม ความสามารถดังกล่าวจะลดลงเล็กน้อยเมื่อโลหะแพลทินัมถูกแทนที่ด้วยแลนทานัมอีกครั้งหนึ่ง จากการทดลองพบว่า การใช้พาลลาเดียมและแพลทินัมด้วยน้ำหนักที่เท่ากันและเจือจางด้วยแลนทานัมสามเท่า (พาลลาเดียม:แพลทินัม:แลนทานัม = 1:1:3) เป็นอัตราส่วนที่เหมาะสมที่สุด ทั้งจากความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาการ เผาไหม้ที่สูง และการลดปริมาณการใช้โลหะมีตระกูลด้วยแลนทานัม

ACKNOWLEDGEMENTS

This thesis could not have been possible without the assistance of the following individuals and organizations to whom the author would like to thank.

Scholarship and financial support to this work were partially funded by the Postgraduate Education and Research Programs in Petroleum and Petrochemical Technology (PPT Consortium) is greatly acknowledged.

First of all, I gratefully acknowledge Dr. Sirirat Jitkarnka for accepting me in her division, let me have the opportunities to do and learn a lot of fruitful things, and also stand beside for several enlighten suggestions, discussions, and problem solving throughout my thesis works.

I would like to express my sincere gratitude to Prof. Daniel E. Resasco and Dr. Apanee Luengnaruemitchai for suggesting me with their valuable advises.

I also forward my special acknowledgement to Prof. John F. Scamehorn for kindly bringing me the monolithic material from US. This work would not have been possible without his assistance.

I especially extend my whole-hearted gratitude to thank my thesis committees, Assoc. Prof. Thirasak Rirksomboon, and Asst. Prof. Pomthong Malakul for their well-intentioned suggestions and comments.

I sincerely exhibit my appreciation to all professors who guided me through their courses establishing me based knowledge and also my useful skills.

My special thanks go to all of the Petroleum and Petrochemical College's staff who supported me throughout my thesis works.

Finally, I would like to take this opportunity to thank all my friends for their friendly helps and suggestions. I am also greatly indebted to my parents and my family for their support, love and understanding.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER **PAGE**

CHAPTER **PAGE**

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**