การกำจัดก๊าชไทรเมทีลอะมีนอะเชทัลดีไฮด์และแอมโมเนีย โดยปฏิกิริยาการเดิมอิเล็กตรอน



นาย ไพศาล คงประสานกาล

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิศวกรรมเคมี ภาควิชาวิศวกรรมเคมี
บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2541
ISBN 974-639-484-3
ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

REMOVAL OF TRIMETHYLAMINE ACETALDEHYDE AND AMMONIA GASES USING ELECTRON ATTACHMENT REACTION

Mr. Paisarn Khongphasarnkaln

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Engineering in Chemical Engineering

Department of Chemical Engineering

Graduate School

Chulalongkorn University

Academic Year 1998

ISBN 974-639-484-3

Thesis Title	Removal of Trimethylamine Acetaldehyde and Ammonia Gases
	Using Electron Attachment Reaction
Ву	Mr. Paisarn Khongphasarnkaln
Department	Chemical Engineering
Thesis Advisor	Professor Wiwut Tanthapanichakoon
Accept	ed by the Graduate School, Chulalongkorn University in Partial
	he Requirements for the Master's Degree.
5	Dean of Graduate School
(Profes	sor Supawat Chutivongse, M.D.)
Thesis Commit	tee
Ch	wickam Muzipih Chairman
	iate Professor Chirakarn Muangnapoh, Dr. Ing.)
Win	nt Tantharamichakoon Thesis Advisor
(Profes	sor Wiwut Tanthapanichakoon, Ph.D.)
O.	Olitic Chargeid Member
(Assist	ant Professor Vichitra Chongvisal, Ph.D.)
	Tridsal Tschuit Member
(Jirdsal	k Tscheikuna, Ph.D.)
(\mathcal{O}
,	Member Ont Professor Towetchei Charinnanitkul, Dr. Eng.)
(Assist	ant Professor Tawatchai Charinpanitkul, Dr. Eng.)

พิมพ์ต้นฉบับบทคัดย่อวิทยานิพนธ์ภายในกรอบสีเขียวนี้เพียงแผ่นเดียว

ไพศาล คงประสานกาล : การกำจัดก๊าซไทรเมทีลอะมีนอะเซทัลดีไฮด์และแอมโมเนียโดยปฏิกิริยาการเดิม อิเล็กตรอน (REMOVAL OF TRIMETHYLAMINE ACETALDEHYDE AND AMMONIA GASES USING ELECTRON ATTACHMENT REACTION) อ.ที่ปรึกษา : ค.ดร. วิวัฒน์ ตัณฑะพานิซกุล : 150 หน้า. ISBN 974-639-484-3

งานวิทยานิพนธ์นี้มีจุดประสงค์เพื่อตรวจสอบประสิทธิภาพการกำจัดโดยใช้ปฏิกิริยาเดิมอิเล็กตรอนเพื่อกำจัดก๊าช มลพิษที่มีความเข้มข้นต่ำระดับ พีพีเอ็ม โดยใช้เครื่องปฏิกรณ์แบบปล่อยโคโรนา อิเล็กตรอนพลังงานต่ำที่ผลิตขึ้นถูกจับไว้โดย โมเลกุลของก๊าซไม่บริสุทธิ์ชนิดอีเล็กโทรเนกาทีฟ เกิดไอออนประจุลบเคลื่อนที่ในสนามไฟฟ้าไปยังขั้วแอโนด (ผนังของเครื่อง ปฏิกรณ์) และถูกกำจัดออกที่ผนังนั้น ผู้เขียนได้ศึกษาถึงผลกระทบที่สำคัญหลายอย่าง ได้แก่ กระแสปล่อยออก ความเข้มข้นของ ก๊าซขาเข้า อัตราการไหลของก๊าซ ชนิดของก๊าซมลพิษ (ไทรเมทีลอะมีน อะเซทัลดีไฮด์ และแอมโมเนีย) และปริมาณออกซิเจน ไอน้ำ ที่มีต่อประสิทธิภาพการกำจัด ผลการทดลองซี้ให้เห็นว่า โดยทั่วไปแล้ว ถ้ากระแสปล่อยออกยิ่งสูงขึ้น ประสิทธิภาพการกำจัดก็จะยิ่งสูงขึ้น ในขณะที่อัตราการไหลของก๊าซและความเข้มข้นของก๊าซขาเข้ากลับให้ผลตรงกันข้าม อนึ่งการที่มีออกซิเจน ผสมอยู่จะช่วยเพิ่มประสิทธิภาพการกำจัดก๊าซแต่ละชนิด เนื่องจากเกิดปฏิกิริยาระหว่างโอโซนและก๊าซมลพิษดังกล่าว แต่ไอน้ำ จะช่วยเพิ่มประสิทธิภาพการกำจัดก๊าซไทรเมทีลอะมีน และอะเซทัลดีไฮด์เท่านั้น

นอกจากนี้ ยังได้ทำการทดลองเพื่อศึกษาผลของการมีส่วนผสมของก๊าซมลพิษตัวอื่น ที่มีต่อประสิทธิภาพการกำจัด โดยศึกษาเป็นคู่ ๆดังนี้ ไทรเมทีลอะมีน-อะเซทัลดีไฮด์ แอมโมเนีย-อะเซทัลดีไฮด์ ซัลเฟอร์ไดออกไซด์-ไทรเมทีลอะมีน ซัลเฟอร์ ใดออกไซด์-อะเซทัลดีไฮด์ ในโดรเจนไดออกไซด์-อะเซทัลดีไฮด์ และคาร์บอนไดออกไซด์-อะเซทัลดีไฮด์ ผลการทดลองชี้ให้เห็น ว่า โดยทั่วไป ถ้ากระแสปล่อยออกยิ่งสูงขึ้น ประสิทธิภาพการกำจัดก็จะยิ่งสูงขึ้น เมื่อเปรียบเทียบกับการกำจัดก๊าซมลพิษตัว เดียวพบว่า อิทธิพลของก๊าซซัลเฟอร์ไดออกไซด์ที่ผสมอยู่ช่วยเพิ่มประสิทธิภาพการกำจัดก๊าซไทรเมทีลอะมีน แต่ลดประสิทธิภาพการกำจัดก๊าซอะเซทัลดีไฮด์ ในขณะเดียวกันก็เกิดผลิตภัณฑ์ที่ไม่ต้องการขึ้น ปัญหานี้สามารถหลีกเลี่ยงได้โดยการกำจัดก๊าซโดยใช้เครื่องปฏิกรณ์สองตัวต่ออนุกรมกัน ในกรณีที่มีก๊าซไนโดรเจนไดออกไซด์ผสมอยู่พบว่า ยิ่งความเข้มข้นของก๊าซ ในโดรเจนไดออกไซด์และกระแสปล่อยออกยิ่งน้อย ผลการกำจัดยิ่งดีขึ้น แต่จะให้ผลตรงข้ามในการศึกษาผลของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ที่มีต่อการกำจัดก๊าซอะเซทัลดีไฮด์

ภาควิชาวิศวกรรมเคมี	ลายมือชื่อนิสิต <i>Hara กรปกสานกา</i> ล
สาขาวิชา วิศวกรรมเคมี	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา
ปีการศึกษา2541	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม

พิมพ์ต้นฉบับบทคัดย่อวิทยานิพนธ์ภายในกรอบสีเขียวนี้เพียงแผ่นเดียว

397128202 : MAJOR CHEMICAL ENGINEERING
KEY WORD: GASEOUS POLLUTANT/GAS PURIFICATION/ ELECTRON ATTACHMENT/ CORONA DISCHARGE
PAISARN KHONGPHASARNKALN : REMOVAL OF TRIMETHYLAMINE ACETALDEHYDE AND
AMMONIA GASES USING ELECTRON ATTACHMENT REACTION. THESIS ADVISOR : PROF WIWUT
TANTHAPANICHAKOON. Ph.D. 150 pp. ISBN 974-639-484-3

Experimental investigation on the application of electron attachment to the removal of dilute gaseous pollutants has been carried out using a corona-discharge deposition-type reactor. The high selectivity of electron attachment to electronegative gas molecules is utilized to effectively remove the impurity gases at ppm and even ppb concentration levels. The effects of several factors, namely, discharge current, inlet gas concentration, space velocity and coexisting O_2 or H_2O vapor on the individual removal efficiency of three kinds of gaseous pollutants, namely, trimethylamine ((CH₃)₃N), acetaldehyde (CH₃CHO) and ammonia (NH₃) have been investigated. The experimental results reveal that generally the higher the discharge current, the higher the removal efficiency, whereas the space velocity and inlet gas concentration yield the opposite effects. It has been found that the presence of O_2 enhances the removal efficiency of each impurity gas. The enhancement is experimentally shown to be attributable to the ozone reaction in the removal of (CH₃)₃N from O_2 -N₂ mixed gas. Water vapor also enhances the removal efficiency of (CH₃)₃N and CH₁CHO.

Furthermore, the high selectivity of electron attachment to electronegative gas molecules is utilized to the simultaneous removal of dilute (CH₃)₃N-CH₃CHO, NH₃-CH₃CHO, SO₂-(CH₃)₃N, SO₂-CH₃CHO, NO₂-CH₃CHO and CO₂-CH₃CHO from air in the single reactor in order to find out the effect of discharge current on their removal efficiency. Since undesirable reaction by-products are produced on the removal of SO₂-(CH₃)₃N from air, a two-reactor system has been proposed and shown to remove the binary pair with negligible reaction by-product. The experimental results show that generally the higher the discharge current, the higher the removal efficiency. Compared to single impurity removal, it has been shown that the presence of SO₂ enhances the removal efficiency but retards that of CH₃CHO in a single reactor, but some reaction by-products are generated. The problem can be avoided by using two independently operated reactors in series. In the case of coexisting of NO₂, it is noted that the lower the inlet NO₂ concentration, the lower the discharge current that still yields beneficial effect. At higher discharge currents, the retarding effect of CO₂ on CH₃CHO removal is obviously significant.

ภาควิชาวิศวกรรมเคมี	ลายมือชื่อนิสิต ปล่าล คิวประสานma
สาขาวิชาวิศวกรรมเคมี	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา
ปีการศึกษา2541	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม

TENNISHIN TIMBIR

ACKNOWLEDGEMENT

I am very grateful to my advisor, Prof. Wiwut Tanthapanichakoon, Department of Chemical Engineering, Chulalongkorn University, for his introducing me to this interesting subject, and for his helpful suggestion, deep discussion and encouraging guidance throughout the course of this work. I am also grateful to Assoc. Prof. Chirakarn Muangnapoh, Assist. Prof. Tawatchai Charinpanitkul, Assist. Prof. Vichitra Chongvisal and Dr. Jirdsak Tscheikuna for their stimulative comments and participation as the thesis committee.

I would like to acknowledge the National Research Council of Thailand (NRCT) and the Thailand Research Fund (TRF). The present work is part of a joint Thailand-Japan research project headed on the Thai side by Prof. Wiwut with research grant from NRCT and headed on the Japanese side by Prof. M. Okazaki. The research work also receives financial support from TRF given to Prof. Wiwut as TRF Senior Research Scholar in Particle Technology. I receive a 2-year scholarship from the National Science and Technology Development Agency. The scholarship covering the research materials and monthly expenses is gratefully acknowledged. In addition, I want to acknowledge the Exchange Scholarship provided by AIEJ.

I have had a wonderful year working in Prof. Morio Okazaki's and subsequently Prof. Hajime Tamon's Laboratory, Department of Chemical Engineering, Kyoto University, Japan, under the above Exchange Program sponsored by The Association of International Education Japan. I would like to thank both of them, who have kindly permitted me to do the research work in their laboratory, subsidized me with additional financial support and made my stay in Japan more pleasant.

I want to thank Dr. Noriaki Sano for his useful guidance, hospitality, and educational suggestions, at all stages of my stay in Japan. It has been my great pleasure to share a good time with his nice friendship.

CONTENTS

		Page
	ABSTRACT IN THAI	IV
	ABSTRACT IN ENGLISH	V
	ACKNOWLEDGEMENT	VI
	LIST OF TABLES.	IX
	LIST OF FIGURES.	X
171	NOMENCLATURE	XIII
	CHAPTER 1 INTRODUCTION	1
	1.1 Objectives of research work	4
	1.2 Scope of research work	4
	CHAPTER 2 FUNDAMENTAL KNOWLEDG	5
	2.1 Electron attachment reaction	5
	2.2 Principle of gas purification	7
	2.3 Types of reactor	10
	CHAPTER 3 LITERATURE REVIEW	13
	CHAPTER 4 EXPERIMENTAL RESULTS AND DISCUSSION	27
	4.1 Experimental setup	27
	4.2 Experimental procedure and conditions gas	31
	4.3 Experimental results	34
	4.3.1 Removal efficiency	34
	4.3.2 Removal of trimethylamine	34
	4.3.2.1 Removal of (CH ₃) ₃ N from N ₂	34
	4.3.2.2 Removal of $(CH_3)_3N$ from N_2 - O_2	36
	4.3.2.3 Influence of H_2O on removal of $(CH_3)_3N$ from N_2	39
	4.3.2.4 Influence of SO_2 on removal of $(CH_3)_3N$ from N_2 - O_2	42
	4.3.2.5 Influence of SO_2 on removal of $(CH_3)_3N$ from N_2	46
	4.3.3 Removal of acetaldehyde	51
	4.3.3.1 Removal of CH ₃ CHO from N ₂	51
	4.3.3.2 Removal of CH ₃ CHO from N ₂ -O ₂	51
	4.3.3.3 Influence of H ₂ O on removal of CH ₃ CHO from N ₂	54

	Page
4.3.3.4 Influence of gas flow rate on removal of CH_3CHO from N_2 .	56
4.3.3.5 Influence of NO ₂ on removal of CH ₃ CHO from N ₂ -O ₂	56
4.3.3.6 Formation of CH ₃ CHO by-product with discharge current	63
4.3.3.7 Influence of SO ₂ on removal of CH ₃ CHO from N ₂ -O ₂	66
4.3.3.8 Influence of CO ₂ on removal of CH ₃ CHO from N ₂ -O ₂	69
4.3.4 Removal of ammonia	71
4.3.4.1 Removal of NH ₃ from N ₂	71
4.3.4.2 Removal of NH ₃ from N ₂ -O ₂	71
4.3.4.3 Influence of CO ₂ on removal of NH ₃ from N ₂ -O ₂	74
4.3.4.4 Influence of H ₂ O on removal of NH ₃ from N ₂ -O ₂	74
4.3.4.5 Ammonia-sulfur dioxide reaction to form solid particles	77
4.3.5 Simultaneous removal of trimethylamine and acetaldehyde from.	78
N_2 - O_2	
4.3.6 Simultaneous removal of ammonia and acetaldehyde from N_2 - O_2	80
4.4 Substantiation of ozone effect	83
4.5 Technique to reduce reaction by-products and improve	87
removal efficiency	
CHAPTER 5 CONCLUSIONS AND RECOMMENDATIONS	91
5.1 Conclusions	91
5.2 Recommendations for future study	92
REFERENCES	94
APPENDICES	105

LIST OF TABLES

		Page
Table 4.1	Details of reactor	29
Table 4.2	Analytical condition for the derivative spectrophotometer	31
Table 4.3	Experimental conditions of malodorous gas components	31
Table 4.4	Measuring conditions of malodorous gas components for FID	32
	gas chromatograph.	
Table 4.5	List of by-products generated on the removal of (CH ₃) ₃ N from	39
	N ₂ -O ₂ mixed gas	
Table 4.6	List of by-products on removal of NH ₃ from N ₂ -O ₂ mixture as	74
	interpreted from GCMS data	

LIST OF FIGURES

		Page
Figure 2.1	Principle of gas purification	8
Figure 2.2	Concepts of corona-discharge reactor	11
Figure 4.1	Arrangement of present experimental apparatus	27
Figure 4.2	Schematic diagram of experimental apparatus	28
Figure 4.3	Removal efficiency of (CH ₃) ₃ N from N ₂	35
Figure 4.4	GCMS spectra on removal of (CH ₃) ₃ N from N ₂	37
Figure 4.5	Removal efficiency of (CH ₃) ₃ N from N ₂ -O ₂	38
Figure 4.6	GCMS spectra on removal of (CH ₃) ₃ N from N ₂ -O ₂	40
Figure 4.7	Influence of H ₂ O on removal of (CH ₃) ₃ N from N ₂ ;	41
	$C_{(CH3)3N} = 81 \text{ ppm}, SV = 75.9 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.8	Influence of SO ₂ on removal of (CH ₃) ₃ N from N ₂ -O ₂ ;	43
	$C_{(CH3)3N} = 34 \text{ ppm}, C_{O2} = 17 \% \text{ and } SV = 80.9 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.9	Decrement of $(CH_3)_3N$ on removal of SO_2 and $(CH_3)_3N$ from	44
	N_2 - O_2 ; $C_{(CH3)3N} = 34$ ppm, $C_{O2} = 17$ % and $SV = 80.9 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.10	Concentration of SO ₂ on removal of (CH ₃) ₃ N from N ₂ -O ₂	45
Figure 4.11	Influence of SO ₂ on removal of (CH ₃) ₃ N from N ₂ ;	47
	$C_{(CH3)3N} = 34 \text{ ppm}, SV = 80.5 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.12	Decrement of $(CH_3)_3N$ on removal of SO_2 and $(CH_3)_3N$ from N_2 ;.	48
	$C_{(CH3)3N} = 34 \text{ ppm}, SV = 80.5 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.13	Outlet concentration of SO ₂ on removal of (CH ₃) ₃ N from N ₂ ;	49
	$C_{(CH3)3N} = 34 \text{ ppm}, SV = 80.5 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.14	Removal of CH ₃ CHO from N ₂	52
Figure 4.15	Removal of CH ₃ CHO fromN ₂ in presence of O ₂ :	53
	$C_{CH3CHO} = 20 \text{ ppm}, \text{ SV} = 80.9 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.10	6 Removal of CH ₃ CHO from N ₂ in presence of H ₂ O:	55
	$C_{CH3CHO} = 20 \text{ ppm}, \text{ SV} = 80.9 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.1	7 Influence of gas flow rate on removal of CH ₃ CHO from N ₂ :	57
	$C_{CH3CHO} = 20 \text{ ppm}, I = 1 \text{ mA}$	

		Page
Figure 4.18	Removal of CH ₃ CHO from N ₂ -O ₂ in presence of NO ₂ ;	58
	$C_{CH3CHO} = 16 \text{ ppm}, C_{O2} = 20\% \text{ and } SV = 76 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.19	Decrement of concentration of NO ₂ against discharge current	59
	during the removal of CH ₃ CHO from N ₂ -O ₂	
Figure 4.20	Removal of CH ₃ CHO from N ₂ -O ₂ in presence of NO ₂ ;	60
	$C_{CH3CHO} = 16 \text{ ppm}, C_{O2} = 20\% \text{ and SV} = 75.8 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.21	Removal of NO_2 from N_2 - O_2 ; $C_{O2} = 20\%$, $SV = 75.6 \text{ hr}^{-1}$	64
Figure 4.22	Concentration of by-product generated from N ₂ -O ₂ mixture;	65
	$C_{02} = 20\%$, SV = 75.8 hr ⁻¹	
Figure 4.23	Removal of CH ₃ CHO in presence of SO ₂ from N ₂ -O ₂ ;	67
	$C_{CH3CHO} = 16 \text{ ppm}, C_{O2} = 20\% \text{ and } SV = 76 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.24	Decrement of concentration of SO ₂ during CH ₃ CHO removal;	68
	from N_2 - O_2 $C_{CH3CHO} = 16$ ppm, $C_{O2} = 20\%$ and $SV = 76$ hr ⁻¹	
Figure 4.25	Removal of CH ₃ CHO in presence of CO ₂ from N ₂ -O ₂ ;	70
	$C_{CH3CHO} = 16 \text{ ppm}, C_{O2} = 20\% \text{ and } SV = 75.3 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.26	Removal of NH ₃ from inert gas (N ₂ -He mixed gas);	72
	$C_{NH3} = 49 \text{ ppm}, \text{ SV} = 188.5 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.27	Removal of NH ₃ from N ₂ -O ₂ mixed gas);	73
	$C_{NH3} = 96 \text{ ppm}, \text{ SV} = 75.9 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.28	Influence of CO ₂ on removal of NH ₃ from N ₂ -O ₂ ;	75
	$C_{NH3} = 141 \text{ ppm}, \text{ SV} = 75.7 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.29	Influence of H ₂ O on removal of NH ₃ from N ₂ -O ₂ ;	76
	$C_{NH3} = 143 \text{ ppm}, \text{ SV} = 75.6 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.30	Simultaneous removal of CH ₃ CHO and (CH ₃) ₃ N from N ₂ -O ₂ ;	79
	$C_{(CH3)3N} = 43 \text{ ppm}, C_{CH3CHO} = 15 \text{ ppm}, C_{O2} = 20\%, SV = 75.0 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.31	Removal of NH ₃ and CH ₃ CHO from N ₂ -O ₂ ;	81
	$C_{CH3CHO} = 16 \text{ ppm}, C_{O2} = 20\%, SV = 75.6 \text{ hr}^{-1}$	
Figure 4.32	Removal of NH ₃ on removal of NH ₃ and CH ₃ CHO from	82
	N_2 - O_2 ; $C_{CH3CHO} = 16 \text{ ppm}, C_{O2} = 20\%, SV = 75.6 \text{ hr}$ -1	
Figure 4.33	Apparatus to substantiate O ₃ effect	84
Figure 4.34	Formation of O_1 from N_2 - O_2 mixed gas in the first reactor	86

		Page
Figure 4.35	Effect of ozonation reaction on removal of (CH ₃) ₃ N in the	86
	second reactor	
Figure 4.36	Removal of (CH ₃) ₃ N and SO ₂ from N ₂ -O ₂ using two reactor	88
	system	
Figure 4.37	Removal of (CH ₃) ₃ N and SO ₂ from N ₂ -O ₂ in the first reactor;	89
	$C_{O2} = 19\%$, $C_{(CH3)3N} = 45$ ppm, $C_{SO2} = 81$ ppm, $SV = 81.6$ hr- ¹	
Figure 4.38	Removal of SO_2 in the second reactor; $C_{O2} = 19\%$,	89
	$C_{(CH3)3N} = 0$ ppm, $C_{SO2} = 81$ ppm, $SV = 81.6$ hr ⁻¹	

NOMENCLATURES

 C_{in} = inlet concentration [ppm]

 C_{out} = outlet concentration [ppm]

 Ψ = removal efficiency [-]

I = discharge current [mA]

P = power consumption [W]

p = pressure [Pa]

SV = space velocity [h⁻¹]

V = discharge voltage [V]

GCin = inlet FID area of gas chromatograph

GCout = outlet FID area of gas chromatograph