GAS-CARBON REACTIONS:
STUDIES OF NO AND N_2O ON MICRO 850 GRAPHITE

Mr. Sutee Wongtanakitcharoen

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma
and Case Western Reserve University
1999

ISBN 974-331-908-5

Thesis Title	:	Gas-Carbon Reactions: Studies of NO and N_2O on Micro 850 Graphite
By	:	Mr. Sutee Wongtanakitcharoen
Program	:	Petrochemical Technology
Thesis Advisors	:	Prof. Ralph T. Yang Dr. Thirasak Rirksomboon

---

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

.....College Director
(Prof. Somchai Osuwan)

Thesis Committee

.....
(Prof. Ralph T. Yang)

.....
(Dr. Thirasak Rirksomboon)

.....
(Prof. Somchai Osuwan)

ABSTRACT

##971022 : PETROCHEMICAL TECHNOLOGY PROGRAM

KEY WORDS : Nitric oxide/Nitrous oxide/Graphite/Carbon gasification/Turnover frequency/TGA

Sutee Wongtanakitcharoen: Gas-Carbon Reactions: Studies of NO and N_2O on Micro 850 Graphite. Thesis Advisors : Prof. Ralph T. Yang and Dr. Thirasak Rirksomboon 63 pp ISBN 974-331-908-5

The kinetics of carbon gasification in NO and N_2O were studied in a thermogravimetric system by isothermal techniques. The carbon sample employed was Micro 850 graphite which has well defined crystal dimensions. Since the edge sites of the graphite were confirmed to be the active sites, the rate based on per active site or turnover frequency (TOF) was determined in this work. The reactions were studied in a temperature range of 500-750 ^{o}C and a reactant concentration of 6-40%. For the NO reaction, both the temperature and NO concentration had affected on the TOF. The results of 6% NO concentration showed that there was a significant increase in the activation energy with increasing temperature. The transition temperature was observed in an Arrhenius plot at about 644 ^{o}C. However, the transition temperature could not be observed on the plots of other NO concentrations. The reduction of NO by graphite was a first-order reaction with respect to NO partial pressure. For the N_2O reaction, the results indicated that the transition temperature on an Arrhenius plot could not be found in the temperature range of 500-750 ^{o}C. The reaction between graphite and nitrous oxide has the reaction order with respect to N_2O partial pressure near unity. At above 675 ^{o}C the rates of carbon gasification in N_2O were higher than those in NO when the results of N_2O-carbon reaction were compared to those of NO-carbon reaction.

บทคัดย่อ

สุธี วงศ์ธนากิจเจริญ: ปฏิกิริยาระหว่างก๊าซและคาร์บอน: การศึกษาก๊าซไนตริกออกไซด์และก๊าซไนตรัสออกไซด์กับกราไฟท์ไมโคร 850 (Gas-Carbon Reactions: Studies of NO and N_2O on Micro 850 Graphite) อ. ที่ปรึกษา: ศ. ราฟ ที หยาง และ ดร. ธีรศักดิ์ ฤกษ์สมบูรณ์ 63 หน้า ISBN 974-331-908-5

การทดลองนี้เป็นการศึกษาด้านจลนพลศาสตร์ของปฏิกิริยาระหว่างคาร์บอนกับก๊าซไนตริกออกไซด์และคาร์บอนกับก๊าซไนตรัสออกไซด์ โดยใช้เครื่องวิเคราะห์เทอร์โมกราวิเมตริก (Thermogravimetric Analyzer, TGA) เป็นเครื่องปฏิกรณ์ อาศัยเทคนิคอุณหภูมิของปฏิกิริยาคงที่ ตัวอย่างที่ใช้ในการศึกษานี้คือกราไฟท์ไมโคร850ที่มีโครงสร้างผลึกที่แน่นอน เนื่องจากอะตอมด้านข้าง (edge sites) ของกราไฟท์เป็นตำแหน่งที่เกิดปฏิกิริยาเทียบต่อพื้นที่ที่ทำปฏิกิริยา ได้ทำการศึกษาในช่วงอุณหภูมิ 500-750 องศาเซลเซียส และความเข้มข้นของสารตั้งต้นที่ใช้อยู่ในช่วงร้อยละ6ถึง40 สำหรับปฏิกิริยาระหว่างคาร์บอนกับก๊าซไนตริกออกไซด์ จากการทดลองพบว่าอุณหภูมิและความเข้มข้นของก๊าซไนตริกออกไซด์ มีผลต่ออัตราการเกิดปฏิกิริยาเทียบต่อพื้นที่ที่ทำปฏิกิริยา ผลการทดลองที่ความเข้มข้นไนตริกออกไซด์ร้อยละ 6 พบว่ามีการเปลี่ยนความชันของกราฟอาร์รีเนียส (Arrhenius plot) โดยค่าพลังงานกระตุ้นของปฏิกิริยาเพิ่มขึ้นที่อุณหภูมิประมาณ 644 องศาเซลเซียส แต่ไม่พบการเปลี่ยนแปลงของค่าพลังงานกระตุ้นในการทดลองที่ความเข้มข้นของก๊าซไนตริกออกไซด์ร้อยละ 20 และ 40 นอกจากนี้ยังพบว่า ปฏิกิริยาดังกล่าวเป็นปฏิกิริยาอันดับหนึ่งเมื่อเปรียบเทียบกับความเข้มข้นของไนตริกออกไซด์ สำหรับปฏิกิริยาระหว่างคาร์บอนกับก๊าซไนตรัสออกไซด์ จากผลการทดลองชี้ให้เห็นว่าไม่พบการเปลี่ยนแปลงของค่าพลังงานกระตุ้น ในช่วงอุณหภูมิระหว่าง 500-750 องศาเซลเซียส นอกจากนี้ยังพบว่าปฏิกิริยาระหว่างคาร์บอนและก๊าซไนตรัสออกไซด์มีอันดับของปฏิกิริยาเมื่อเทียบกับความเข้มข้นของก๊าซไนตรัสออกไซด์เข้าใกล้หนึ่ง จากผลการทดลองยังแสดงให้เห็นอีกว่าที่อุณหภูมิประมาณ 675 องศาเซลเซียส อัตราการเกิดปฏิกิริยาเทียบต่อพื้นที่ที่ทำปฏิกิริยาระหว่างคาร์บอนกับก๊าซไนตรัสออกไซด์เร็วกว่าปฏิกิริยาระหว่างคาร์บอนและก๊าซไนตริกออกไซด์เมื่อเปรียบเทียบอัตราการเกิดปฏิกิริยาเทียบต่อพื้นที่ที่ทำปฏิกิริยาระหว่างไนตริกออกไซด์และไนตรัสออกไซด์

ACKNOWLEDGMENTS

This research work could not have been appeared if the assistance of the individuals and organizations had not occurred.

First, I would like to thank so much Prof. Ralph T. Yang of University of Michigan, Ann Arbor, for his invaluable suggestions. Also, I would like to express my great gratitude to Dr. Thirasak Rirksomboon of the Petroleum and Petrochemical College (PPC), Bangkok, for his helpful advice. I deeply appreciate Ms. Thanyarat Tatikiatisakun who provided me useful information and taught me the special techniques employed in this work. In addition, I would like to sincerely thank the PPC staff for their assistance. Acknowledgements are also extended to all my friends who give me their kindness. Finally, this work would not have been possible if the lack of encouragement from my parents would have been appeared. Thank you very much.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER PAGE

ต้นฉบับ หน้าขาดหาย

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES