

行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

以 MCM-41 中孔型分子篩進行一氧化氮之選擇性觸媒還原反應研究

計畫類別：個別型計畫

計畫編號：NSC92-2211-E-034-001-

執行期間：92年08月01日至93年07月31日

執行單位：中國文化大學勞動暨人力資源學系暨研究所

計畫主持人：王國華

共同主持人：鄭紀民

計畫參與人員：童婉貞,吳俊彥,胡傳道

報告類型：精簡報告

處理方式：本計畫可公開查詢

中華民國 93 年 10 月 29 日

中文摘要

本研究中加入不同濃度銅金屬於金屬矽酸鹽觸媒(MCM-41)中，探討其對結構及催化特性之影響。經由 X 光繞射儀、BET 表面積、Raman 光譜儀及 ICP 之測試結果，確定其屬於中孔洞型態之金屬矽酸鹽觸媒，且金屬之添加會使其孔洞加大。針對金屬矽酸鹽觸媒進行選擇性觸媒還原反應部分，在不同氧氣含量、 C_3H_8/NO 進料比及反應溫度條件下進行反應。結果顯示，Cu-MCM-41 觸媒在氧氣含量 0.2% 左右及 $C_3H_8/NO=1.0$ 時有最佳之轉化率，且隨著溫度之增加，觸媒之轉化率愈高。此外在 Cu-MCM-41 觸媒中，一氧化氮轉化率有隨著添加金屬附載量增加而增加，可見添加銅金屬和催化能力有密切的關係。

關係詞：MCM-41、選擇性觸媒還原反應、一氧化氮

英文摘要

The research interest focused on the effects of Cu on the structure and catalytic characterization of MCM-41. The uniform mesoporous structure in metallosilicate (Cu-MCM-41) catalysts was confirmed by X-ray diffraction, BET surface area, Raman spectroscopy and ICP technique, and the copper additive would result in a larger pore size. For the selective catalytic reaction of metallosilicate, the reaction will be optimized by the different concentration of oxygen, C_3H_8/NO feed ratio and reaction temperature. The results indicate that the conversion increases with the increasing temperature. When the concentration of oxygen and C_3H_8/NO feed ratio were about lower 0.2% and 1.0 respectively, the highest reactivity will be obtained. In addition, the NO conversion increases with increasing of copper in Cu-MCM-41 catalysts. The catalytic properties of metallosilicate indeed related to the copper additive.

Keywords: MCM-41, selective catalytic reduction reaction, nitrogen monoxide

一、前言

近年來台灣工業快速發展，日益增加之汽機車數量，可預期必有大量的氮氧化物不斷產生，加上國人的環保意識高漲，政府對煙道中的氮氧化物的排放愈來愈重視，國內對除去氮氧化物的脫硝設備，需求也已經大幅成長。空氣中的氮氧化物(NO_x)是造成酸雨及人類呼吸道疾病的重要原因之一，其形成的主要原因是由於空氣中氮氣在高溫之下氧化而成，或燃料中含氮化合物氧化而成。在燃燒過程中如鍋爐、火力發電廠、汽電共生設備及硝酸工廠等，均會產生大量的氮氧化物。對於固定污染源廢氣中氮氧化物生成或排放，已有許多方法可以加以控制。針對於化學工廠及一般固定污染源廢氣中的氮氧化物成分，以選擇性催化還原法(selective catalytic reduction, SCR)為最有效的控制技術。

二、研究目的

長久以來，液氨或氨水是用於脫硝技術 (De-NO_x) 上，為選擇性觸媒還原反應 (SCR) 還原劑的最佳選擇，但隨著世界環保要求的日趨嚴格，液氨或氨水在運輸及貯存問題，以及在操作過程中，若煙道氣之溫度過低，致使脫硝效率降低，進而造成氨氣逸出 (ammonia slip) 的危險[1]，越來越受到大家的重視。而烷類 (C₁~C₄) 等化合物不僅在全球的含量豐富，亦是一種價格便宜、取得容易的氣體，所以烷類等化合物不僅具有取代氨而成為煙道中 SCR 脫硝系統還原劑的潛力，亦有可能用於交通工具排氣之 SCR 觸媒轉化器，並同時去除 NO_x 與烷類等化合物，所以使用丙烷取代氨作為還原劑，為本研究的主要動機。此外除了以丙烷作為還原劑外，亦試圖找尋更適合的觸媒來取代傳統常用之 ZSM-5，以達到更好的去除一氧化氮效果。

三、文獻探討

常用來當作觸媒的一般金屬有 Cu、Co、Fe、Mn 及 Zn 等，在所有的普通金屬中，Cu 已被認定是最有希望與可能取代貴重金屬用於處理氮氧化物還原的替代品。1986 年，Iwamoto[2,3] 研究發現在 SCR 系統中，根據 IR、XPS、CO 吸附與 TPD 實驗之計算出吸附 Cu⁺、NO 數量，並以此提出 Cu⁺ 為主要活性點及 Cu 附載於 ZSM-5 上對 NO 分解催化能力相當好，之後許多觸媒化學家便積極投入此主題的研究。1996 年，張氏[4] 亦以 Cu 為活性中心附載在碳煙上，探討使用不同型式之碳煙作為擔體進行去 NO 反應，由實驗的結果發現，觸媒使用的碳煙含有大量的含氧官能基，pH 值較低，表面積較大，會對 NO 轉化率在不同的溫度有提升之作用，至於銅附載量有愈高愈好的趨勢。在還原物的使用方面，則以 C₃H₆ 較好，由於 C₃H₆ 之高轉化率，使得觸媒無論在高溫或是低溫的活性都增加，而且使用的壽命也增長，且對 NO 之還原也有不錯的成果，所以本實驗選定 Cu 作為觸媒中的活性金屬，針對銅觸媒進行討論。

關於不同的載體對觸媒活性提昇之影響，各家研究有所不同。1997 年，R. Burch[5] 研究指出，以 Pt 為活性金屬分別附載在 SiO₂、TiO₂、Al₂O₃、ZrO₂、SnO₂、WO₃、MgO 上處理氮氧化物，發現以 SiO₂ 為載體的處理效果最佳，Al₂O₃ 次之，TiO₂ 之效果最差。其原因可能是由於表面積的大小不同所影響，表面積大小比亦為 SiO₂ > Al₂O₃ > TiO₂。而 1981 年，Shikada 等人[6] 研究發現以 V₂O₅ 當作活性金屬時，附載在 TiO₂ 的載體上較 SiO₂、γ-Al₂O₃ 可得到最好的效果。除了單一載體之外，近年來更是發展出混合載體。1992 年，李氏[7] 以 TiO₂/SiO₂ 為載體，然後在此載體上含浸 V₂O₅ 製得觸媒來處理氮氧化物，發現此法能增加觸媒活性及強度。所以選擇適當的載體對觸媒整體的效應有很大的幫助。

MCM-41 是由 Mobile Research and Development Corporation 的研究群首先發表於 1992 在 Nature 雜誌上[8] MCM-41 的特點除具有規則的孔洞排列和均一的孔洞分佈並可控制孔洞大小和極高的表面積外加入微量金屬更能提高與改變觸媒活性。

四、研究方法

(一) 觸媒之製備

1. 製備純 MCM-41 (不添加金屬先導物) [9]

- (1) 金屬矽酸鹽觸媒之製備以 TMA Si (Tetra-methyl-ammonium silicate) 溶液為矽酸鹽的來源，C₁₆ TMAB (Cetyl-tri-methyl-ammonium bromide) 為界面活

性劑。

- (2) 調配 7.8wt% 的 $C_{16}TMAB$ 水溶液，再與 $TMASi$ 溶液混合，混合比例為 $[Si/Surfactant] = 7.5$ 。
- (3) 以 H_2SO_4 或 NH_4 將 pH 值控制在 11 左右，並在室溫攪拌 2 小時。將攪拌均勻之混合物放入 Teflon-sealed 瓶中，置於 $100^\circ C$ 油浴槽中加熱 7 天。
- (4) 取出 Teflon-sealed 瓶中白色沈澱物以 3 倍的純水清洗，再放置室溫下乾燥 16 小時。
- (5) 最後將乾燥後的粉末在 $650^\circ C$ 溫度下鍛燒 6 小時。

2. 製備 Cu-MCM-41

於上述步驟 2 後，加入銅金屬之先導物 (Copper(II) nitrate trihydrate)，令 Cu/Si 莫耳比分別為 1、3、5 及 8% 的混合溶液，並加以攪拌，再重覆 3 之後的步驟。

(二) 反應系統：本研究之實驗裝置包含進料流量控制系統及產物的分析系統。

1. 氣體進料：

進料氣體組成為 NO/He (4000ppm, 聯華)， C_3H_8/He (5000ppm, 聯華)， O_2/He (40%, 聯華)， He (高純度, 聯華) 以不同氣體比例做混合。氣體從高壓鋼瓶輸出後，由壓力調節閥控制壓力，經流量控制器 (Mass Flow Controller) 控制氣體流量，出口由泡沫流量計校正流量。

2. 反應管：

為一內徑約為 4mm (但裝置觸媒處較寬約 8mm) 的 U 型管，其材質為 pyrex 玻璃，放置觸媒處上下皆以石英棉栓塞，用以固定觸媒及防止觸媒進入管件中。

3. 反應爐及溫控器：

在反應器前後端管件分別纏上加熱帶，並接溫控器及熱偶計，溫控器分別為 Q & K instrument (Model TC-10) 公司及 J-KEM Scientific (Model 210) 公司製造；反應爐為一圓柱體，反應管置於反應爐中心，反應爐中接熱偶計接於溫控器上，藉此測量與控制反應溫度。

4. 分析儀器

本研究是將觸媒放入 Pyrex 反應管中，並由反應爐加熱通過觸媒床後之氣體經管路進入氣相層析儀 (Gas Chromatograph, China Chromatography 8900) 來分析，取樣閥 (sample loop) 為定量式 (2ml)，偵測器 (Detector) 為 TCD (Thermal Conductivity Detector) 與 FID (Flame Ionization Detector)，GC 攜帶氣體 (Carrier Gas) 為 He ，流速 25 ml/min，GC 所用的管柱填充物：為 Molecular sieve 5A (3M) 可分析 N_2 、 O_2 ；及 Porapak-Q (3M) 可分析 C_3H_8 、 CO_2 。最後經由管路末端利用採樣袋取樣，通入 NO_x 分析器 (testo 350XL, testo 公司製造) 中偵測 NO_x 的濃度含量。

觸媒特性之分析分別由 BET 比表面積及孔洞分析儀 (Micro-meritics ASAP 2010)、XRD 分析儀 (SIEMENS D5000)、拉曼光譜儀 (Spex triplemate spectrometer Model 1887) 及 ICP-AES 感應耦合電漿原子發射光譜分析儀 (Jarrell-Ash ICAP-9000) 量測。

(三) 選擇性觸媒還原反應 (SCR) 實驗

本研究反應裝置如圖 1 所示。將 0.3g 之觸媒放入 U 形石英管中，U 形石英管放置在圓柱體加熱反應器之中心，加熱反應器中接熱偶計於溫控器上，藉此測量與控制反應溫

度。反應進行前須先在 500°C 下鍛燒 2 小時，以去除觸媒內之水氣及其一些雜質，反應氣體通過觸媒床並經由反應器加熱後進行反應。

五、結果與討論

(一) 特性分析

1. BET 表面積測定分析

由 MCM-41 及 Cu-MCM-41 觸媒之孔徑分佈結果，可確定本實驗中所製備出之觸媒的孔徑大小非常一致，其半徑大約在 15~19Å 之間，由孔徑大小可以確定是屬於中孔洞 (mesoporous) 型態之觸媒，並具有極高之表面積 (700~1100m²/g)。觸媒的孔洞體積會隨著 Cu/Si 比例的增加而減小，且隨著銅金屬的 Loading 量越多，表面積相對減少，平均孔道半徑大小相對增加。研判應為銅金屬 Loading 在觸媒孔洞上，以致撐大孔徑，而使表面積與孔道體積相對的減少。

2. X 光繞射分析儀 (X-ray Diffraction) 之晶格測定

在 MCM-41 觸媒之 X-ray 繞射圖譜 (圖 2) 中在 2θ 為 1°~6° 之間中，觀察到 3 個典型的繞射峰，主要有一根較為明顯的繞射峰 (100) 及兩根較小的繞射峰 (110) 和 (200)，此三個繞射峰代表產物具有規則排列的六角形孔洞之 MCM-41 觸媒。此外，由 Cu-MCM-41 觸媒之 X-ray 繞射圖譜 (圖 3) 中可發現，隨著銅金屬源的增加，晶格結構有所變化，(100) 的繞射峰由原本狹長的繞射峰變成寬短的繞射峰，除了晶格結構變差，並且繞射峰位置向高角度偏移，在 (110) 及 (200) 的繞射峰也逐漸消失的趨勢，這是因為隨著銅金屬源進入孔洞中心沒有均勻的分佈，導致生成孔洞大小不是很一致化，並且破壞了原有 MCM-41 的排列規則性，因而造成單位晶格常數 (Unit cell parameter, a₀) 變小、壁厚度 (wall thickness, b_d) 增加和 BET 表面積變小，但仍具有和 MCM-41 相同的六角排列孔洞。

3. 拉曼光譜 (Raman Spectrum) 分析

在 MCM-41 的振動光譜 (圖 4) 中可以觀察到在 495、607、810 及 980cm⁻¹ 中有明顯的吸收帶，其結構與非結晶 SiO₂ 相似[10]，其中隨著 Cu 量的增加會造成吸收帶被遮蔽。此外由圖可觀察到，而從銅金屬添加於觸媒後吸收帶會漸漸的變大，其中從 607 及 495 的吸收帶中是聚合的三面及四面體結構，隨著 Cu/Si 比例的增加吸收帶有增大的趨勢，使得 Cu 金屬在 MCM-41 中所產生結構有明顯變化，也間接的證明 Cu 的確載入 MCM-41 之中。

4. 感應耦合電漿原子發射光譜分析 (ICP-AES)

本實驗主要針對 Cu 及 Si 等兩種元素分析其個別成分之含量，發現分析後的結果較理論預設值還要高，判斷可能是商品化的 Cu(NO₃)₂·3H₂O 本身就存在較高的 Cu 或是觸媒合成過程中藥品稱取的誤差。

(二) 選擇性觸媒還原反應 (SCR) 結果

1. 氧氣含量影響之探討

一氧化氮還原反應受進料氧氣濃度之影響很大，本實驗討論的範圍從 0~1%O₂，觸媒使用 5% Cu-MCM-41 觸媒，實驗取 350、450、500、550 及 650°C 進行。由圖 5 可知，當 O₂ 濃度約在 0.2% 時有最佳的 NO 轉化率，可達 60%。由圖 6-圖 9 可知，隨著 O₂ 濃度上升，C₃H₈、O₂ 的消耗量會隨著增加，CO₂ 的生成量也會有明顯的增加，但當反應溫度

在 350°C 時，此時對應可觀察到 C₃H₈、O₂ 的消耗量及 CO₂ 的生成量呈現趨緩下降的狀態。而 O₂ 濃度約在 0.2% 時，可對應觀察到有最高 N₂ 的生成量約 400ppm，隨著 O₂ 濃度繼續升高，N₂ 的生成量逐漸緩慢下降。當 O₂ 濃度為 0% 時，C₃H₈ 量有部分的消失，對應生成大約等比之 CO₂，但未生成任何的 N₂。

由實驗結果觀察得知，在以 C₃H₈ 作為還原劑的 NO 還原反應中，在反應溫度區間內，C₃H₈ 藉由燃燒反應與進料 O₂ 濃度在 0.2% 以上時，NO 還原生成等比例的 N₂。當 O₂ 上升至 0.2%，C₃H₈ 消耗量上升，CO₂ 的生成量跟著上升，推測其原因可能是 O₂ 用來活化 C₃H₈ 生成 C_xH_yO_z 的中間產物，此中間產物再選擇性還原 NO，並生成一定比例的 N₂，但當系統的中 O₂ 存在太多時，C_xH_yO_z 的中間產物會轉換 CO₂ 能力增加，而使 C_xH_yO_z 的中間產物減少，造成還原 NO 的能力減低及轉化能力下降[11]。另一可能是以 C₃H₈ 為還原劑，在 O₂ 存在的情況下，因為 C₃H₈ 能移除表面 O₂，增加活性基位的數目，因而能夠增加 NO 的轉化能力；而且 O₂ 能夠防止有活性的 Cu⁺ 被還原成沒有活性的 Cu⁰；但是如果過多的 O₂ 又會使 Cu⁺ 再被氧化成沒有活性的 Cu²⁺，並且 O₂ 也會佔據大部分的活性基位，而使 NO 無法吸附在活性基位上造成 NO 的轉化能力因此下降[12]。

2. C₃H₈/NO 進料比影響之探討

由圖 10 及 14 可知，C₃H₈/NO 進料比在 0.8~1.2 之間，隨著 C₃H₈/NO 進料比的增加至 1.0，NO 轉化率及 N₂ 生成量也快速的上升，並可觀察到 C₃H₈/NO=1.0 時有較佳的 NO 的轉化率及 N₂ 生成量，隨著 C₃H₈/NO 進料比繼續增加到 1.2，其 NO 的轉化率及 N₂ 生成量沒有太大的改變，反之當 C₃H₈/NO 進料比=0.8 時，其 NO 的轉化率及 N₂ 生成量都為最低。由圖 11-圖 13 可知，C₃H₈ 的消耗量會生成相對比例的 CO₂ 的量。在 C₃H₈/NO=0.9~1.0 的操作區間，C₃H₈ 的消耗量及 CO₂ 的生成量為最大，但是 O₂ 的消耗量卻為最小。

由實驗得知 C₃H₈/NO=1.0 時，其所處理效能為最佳狀態，當 C₃H₈/NO 進料比高於 1 時，其效能無法提升至更高。推測其原因為觸媒的催化活性決定於觸媒上之活性基位的多寡，而活性基位的出現又取決於還原劑 C₃H₈、NO 和 O₂ 濃度之間的平衡，因 C₃H₈ 可與 O₂ 氧化成 C_xH_yO_z 的中間產物，可以與 NO 反應而提升了觸媒轉化的能力。當 C₃H₈ 與 O₂ 所形成 C_xH_yO_z 的中間產物增加，雖然中間產物增加，但是 C_xH_yO_z 的中間產物重要性並不如 NO 能否吸附在觸媒上，要使 C_xH_yO_z 的中間產物與 NO 能同時吸附於活性基位上才能使反應活性增加，所以增加 C_xH_yO_z 的中間產物相對會使 NO 吸附於活性基位的能力受阻，造成 NO 轉化率並沒有增加的情況[11]。

3. 反應溫度影響之探討

由圖 15 可知，在 O₂ 濃度為 0.2~1.0 的操作區間中，當反應溫度在 450°C 以上時，NO 轉化率會快速的上升，且在 650°C 時，有最大的 NO 轉化率，但 O₂ 濃度為 0 時，在所操作反應溫度中，卻沒有還原效果。由圖 16 可知，隨著反應溫度上升，NO 轉化率快速的上升。當 C₃H₈/NO=1 時有較佳的 NO 的轉化率，隨著 C₃H₈/NO 進料比繼續增加到 1.2，其 NO 的轉化率及 N₂ 生成量沒有多大的改變，反之隨著 C₃H₈/NO 進料比下降到 0.8，其 NO 轉化率及 N₂ 生成量有較大的下降趨勢。由圖 17 及 21 可知，當反應溫度升高時，隨著銅附載量升高，NO 轉化率及 N₂ 生成量也較快的上升，在 8% Cu-MCM-41 觸媒中，當反應溫度為 650°C 時有最高的 NO 轉化率及 N₂ 生成量。由圖 15-圖 18 可知，在 1~8% Cu-MCM-41 觸媒中，隨著反應溫

度升高， C_3H_8 的量快速的消耗。在反應溫度在 $500^\circ C$ 以前， CO_2 的生成量也會有快速增加，反應溫度在 $500^\circ C$ 以上，則 CO_2 的生成量也有減緩的趨勢。而 O_2 濃度在反應溫度 $500^\circ C$ 以前， O_2 的量快速的消耗，反應溫度在 $500^\circ C$ 以上，則 O_2 的消耗量呈現平緩的趨勢。

由上述實驗結果得知，當反應溫度在高溫時，還是進行還原反應，並沒因為反應溫度到達某一溫度點，丙烷開始進行氧化反應，取代部分的還原反應，使NO轉化率逐漸下降。因此本實驗所使用的觸媒應該有較寬的溫度操作區間，對於處理NO還原反應是適合的。

4. 銅附載量對觸媒活性影響之探討

金屬附載觸媒之活性金屬附載量就一般金屬而言約在1~10%之間，太少則催化效果不佳，太多則造成浪費，所以銅附載量對整體反應相當的重要。由前述結果得知，高溫有利本實驗的進行，所以固定反應溫度為 $650^\circ C$ ，將不同的Cu比例附載於MCM-41作為活性之比較，由圖22所發現，1%銅附載量的觸媒，其NO的轉化率 $<30\%$ ，當銅附載量增大到8%時，NO的轉化率可提升到將近80%，可見銅附載量不夠是造成NO轉化率無法提高的主因之一。再以圖17中所觀察到，以5%及8% Cu-MCM-41下的觸媒對NO轉化率為較顯著上升，然而以8%的銅附載量為處理NO轉化率為最高，由此可知當銅附載量增加時，可以增加其活性。就銅附載量對NO還原效率而言，似乎隨著銅附載量的增加而增加。另一方面，從特性分析可以得知，以不同銅附載量的表面積作比較發現其隨著銅附載量的提升，其表面積隨之降低，但表面積較低時，卻有較高的活性。推測其可能是因為在還原反應過程中 C_3H_8 有還原活性基位的作用，是用來增加活性基位的量，隨著銅附載量減少時，導致活性基位會跟著減少，造成NO轉化率跟著降低。

六、參考文獻

1. 王逸龍，“金屬-沸石觸媒進行一氧化氮與碳氫化合物之選擇性觸媒還原反應研究”，國立中興大學化學工程研究所碩士論文，2001.
2. M. Iwamoto, H. Yahiro, K. Tanda, N. Mizuno, Y. Mine, S. Kawaga, J Phys. Chem., Vol.95, 3727, 1991.
3. M. Iwamoto, J Phys. Chem., Vol.96, 9360, 1992.
4. 張慶璋，“溫度效應對一氧化氮在銅/碳煙觸媒上還原反應行為之探討”，國立中山大學化學研究所碩士論文，1996.
5. R. Burch, Catalysis Today, Vol.35, p.27-36, 1997.
6. Shikada, T. K. Fujimoto, T. Kunugi, H. Tominaga, S. Kanekoand, Y. Kubo, Ind. Eng. Chem. Prod. Res, Vol.20, p.91-95, 1981.
7. 李允賢，“ $V_2O_5/TiO_2/SiO_2$ 觸媒作為氮氧化物排放之控制”，國立台灣工業技術學院工程技術研究所化學工程技術學程碩士學位論文，1992.
8. Kresge, C. T.; Leonowicz, M. E.; Roth W. J.; Vartuli, J. C.; Beck, J. S. Nature, 1992, 359, 710.
9. L. Zhang, J. Y. Ying, AIChE J., Vol.43(11A), p.2793-2801, 1997.
10. B. Riegler, I. Hartmann, W. Kiefer, J. Groß, J. Fricke, Journal of Non-Crystalline Solids, Vol.211, p.294-298, 1997.
11. B. J. Cho, Journal of catalysis, Vol.142, p.418, 1993.
12. R. Berch, P. Millington, Applied Catalysis B:Environment, Vol.2, Iss. 10, 1993.

七、計畫成果自評

本計畫執行期間大致順利，大體而言，本研究約略達成 100% 之進度。就成果而言，已完成 MCM-41 及 Cu-MCM-41 之特性分析，並分別在不同氧氣濃度、NO/C₃H₈ 及反應溫度條件下以此觸媒進行 NO 之還原反應實驗，亦獲得良好之結果。

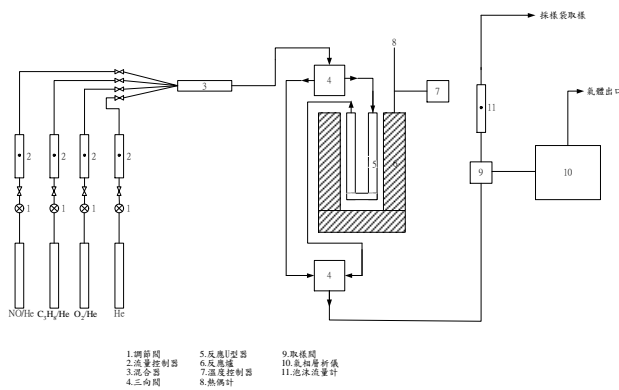


圖 1. 選擇性觸媒還原反應 (SCR) 實驗裝置流程圖

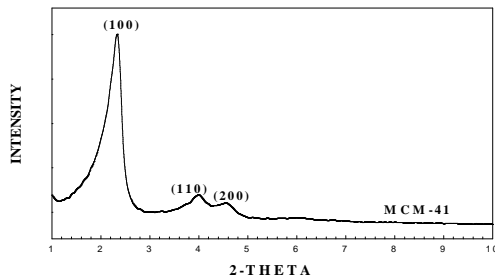


圖 2. XRD pattern of MCM-41

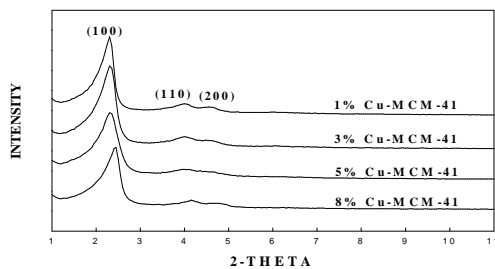


圖 3. XRD pattern of Cu-MCM-41

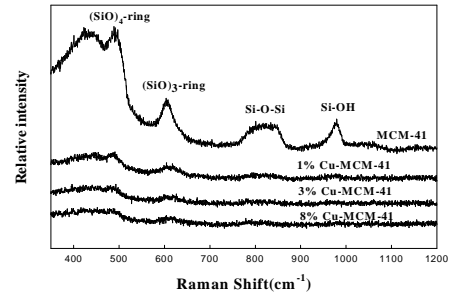


圖 4. Raman spectra of MCM-41

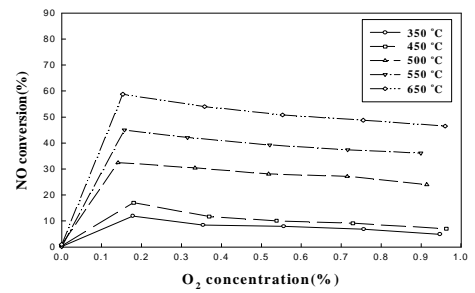


圖 5. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 NO 轉化率與進料 O₂ 濃度之關係圖

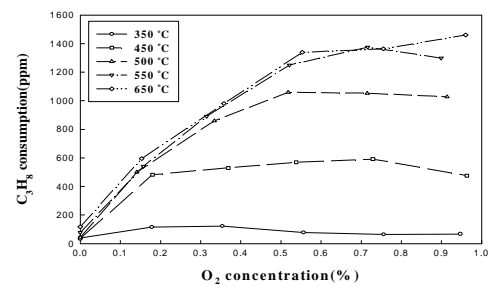


圖 6. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 C₃H₈ 消耗量與進料 O₂ 濃度之關係圖

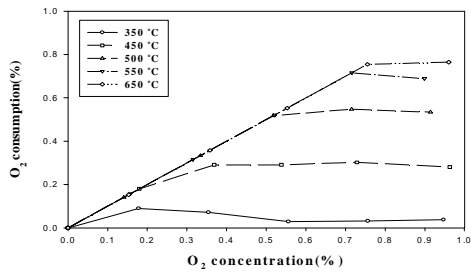


圖 7. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 O₂ 消耗量與進料 O₂ 濃度之關係圖

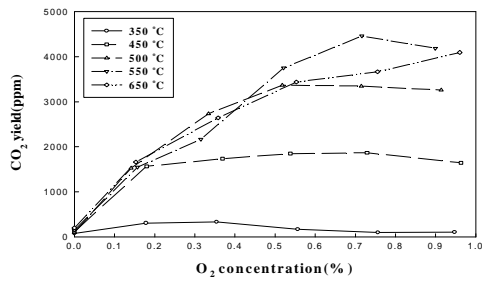


圖 8. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 CO₂ 生成量與進料 O₂ 濃度之關係圖

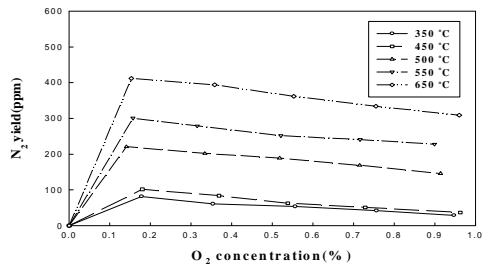


圖 9. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 N₂ 生成量與進料 O₂ 濃度之關係圖

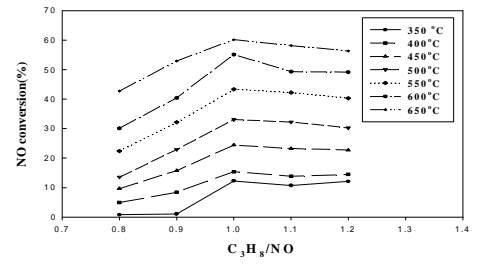


圖 10. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 NO 轉化率與 C₃H₈/NO 進料比之關係圖

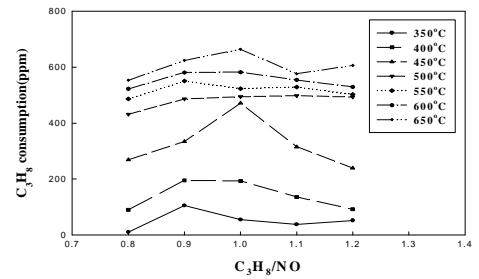


圖 11. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 C₃H₈ 消耗量與 C₃H₈/NO 進料比之關係圖

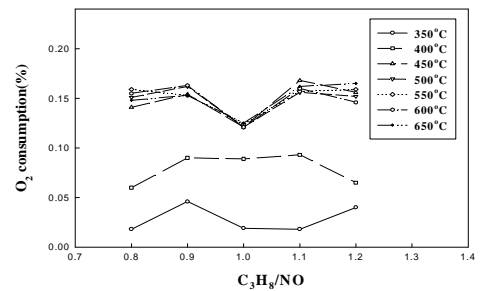


圖 12. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 O₂ 消耗量與 C₃H₈/NO 進料比之關係圖

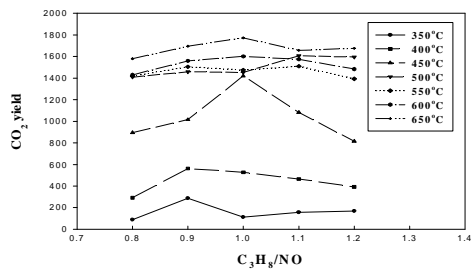


圖 13. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 CO_2 生成量與 $\text{C}_3\text{H}_8/\text{NO}$ 進料比之關係圖

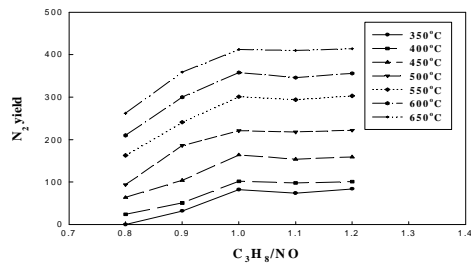


圖 14. 5% Cu-MCM-41 於不同反應溫度時 N_2 生成量與 $\text{C}_3\text{H}_8/\text{NO}$ 進料比之關係圖

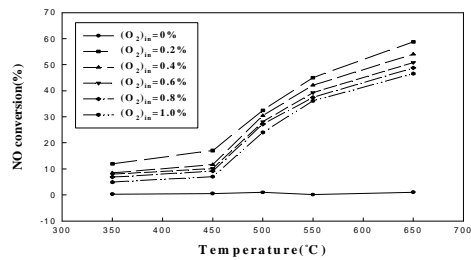


圖 15. 5% Cu-MCM-41 於不同 O_2 進料濃度時 NO 轉化率與反應溫度之關係圖

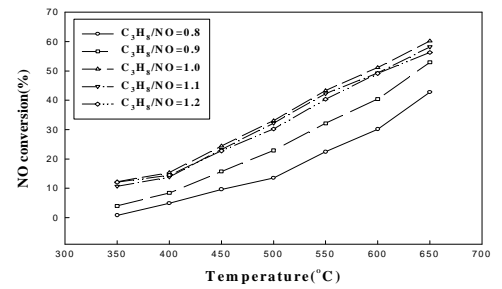


圖 16. 5% Cu-MCM-41 於不同 $\text{C}_3\text{H}_8/\text{NO}$ 進料比時 NO 轉化率與反應溫度之關係圖

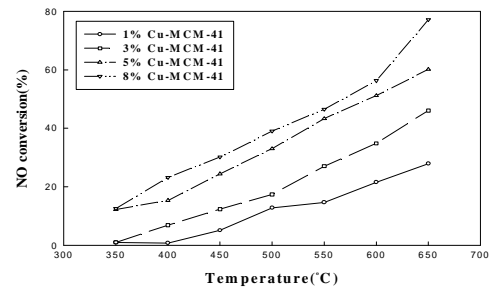


圖 17. Cu-MCM-41 於進料比 $\text{C}_3\text{H}_8/\text{NO}=1$ 時 NO 轉化率與反應溫度之關係圖

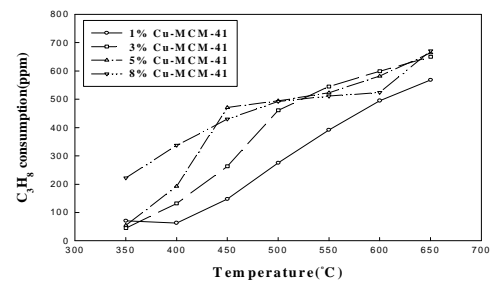


圖 18. Cu-MCM-41 於進料比 $\text{C}_3\text{H}_8/\text{NO}=1$ 時 C_3H_8 消耗量與反應溫度之關係圖

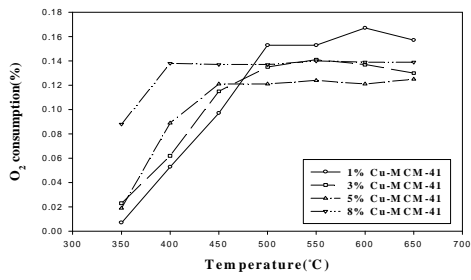


圖 19. Cu-MCM-41 於進料比 $C_3H_8/NO=1$ 時 O_2 消耗量與反應溫度之關係圖

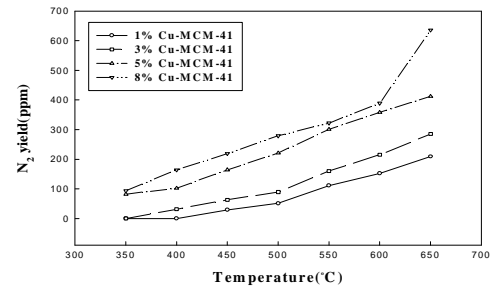


圖 21. Cu-MCM-41 於進料比 $C_3H_8/NO=1$ 時 N_2 生成量與反應溫度之關係圖

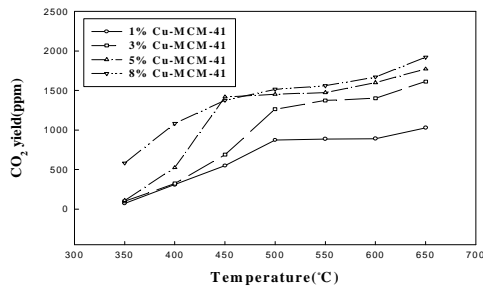


圖 20. Cu-MCM-41 於進料比 $C_3H_8/NO=1$ 時 CO_2 生成量與反應溫度之關係圖

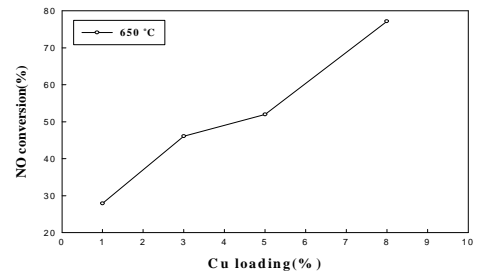


圖 22. Cu-MCM-41 於進料比 $C_3H_8/NO=1$ 時 NO 轉化率與銅附載量之關係圖