ธิติภพ ศิริสุนทรพานิช : ปฏิกิริยาดีไฮเดรชันแบบใช้ตัวเร่งของเอทานอลเพื่อผลิตเอทิลีน โดยใช้ซีโอไลต์ SUZ-4 ที่มีองค์ประกอบของซิลิกอนไดออกไซด์จากเถ้าแกลบ (CATALYTIC DEHYDRATION OF ETHANOL TO ETHYLENE USING SUZ-4 ZEOLITE COMPOSED OF RICE HUSK ASH BASED SILICON DIOXIDE) อาจารย์ที่ปรึกษา : อาจารย์ ดร.สุพรรณี จันทร์ภิรมณ์, 128 หน้า

งานวิจัยนี้ศึกษาการสังเคราะห์ซีโอไลต์ SUZ-4 โดยมีซิลิกอนไดออกไซด์จากเถ้าแกลบเป็นองค์ประกอบ เพื่อนำไปทดสอบประสิทธิภาพการเร่งปฏิกิริยาดีไฮเดรชันของเอทานอลเพื่อผลิตเอทิลีน การทดลองแบ่งออกเป็น 3 ส่วนหลัก เริ่มจากส่วนแรก ศึกษาการสังเคราะห์ซีโอไลต์ SUZ-4 ด้วยกระบวนการโซล-เจล และกระบวนการไฮโดรเทอร์มัล โดยใช้ซิลิกอนไดออกไซด์แบบอสัณฐานที่เตรียมได้จากเถ้าแกลบ เป็นหนึ่งในองค์ประกอบของสารตั้งต้น ได้ทำการศึกษาอัตราส่วนโดยโมลของเถ้าแกลบต่อซิลิกาโซล (R:S) เท่ากับ 0R:100S 25R:75S 50R:50S 75R:25S และ 100R:0S ระยะเวลาไฮโดรเทอร์มัล 1–7 วัน และอุณหภูมิไฮโดรเทอร์มัลในช่วง 120-150°C ในส่วนที่สอง เป็นการทดสอบประสิทธิภาพการเร่งปฏิกิริยาดีไฮเดรชันของเอทานอลเพื่อผลิตเอทิลีนของซีโอไลต์ที่สังเคราะห์ได้ โดยทำการศึกษาผลของตัวแปร อุณหภูมิในการเกิดปฏิกิริยา อัตราส่วนระหว่างน้ำหนักของตัวเร่งปฏิกิริยาต่อเอทานอลที่ป้อนเข้า ระยะเวลาการใช้งาน และจำนวนครั้งการคืนสภาพ ในส่วนสุดท้ายคือ การจำลองกระบวนการผลิตเอทิลีนจากเอทานอล โดยพิจารณาเฉพาะส่วนของชุดปฏิกรณ์ โดยประยุกต์ฟังก์ชัน Visual Basic Application (VBA) ในโปรแกรม Microsoft Excel

ผลการศึกษาเป็นดังนี้ ในส่วนแรก พบว่าซีโอไลต์ชนิด SUZ-4 สามารถสังเคราะห์ได้จากทุกอัตราส่วนโดยโมล ณ สภาวะอุณหภูมิและระยะเวลาของกระบวนการไฮโดรเทอร์มัลเท่ากับ 150°C และ 4 วัน โดยรวมแล้ว ซีโอไลต์ที่สังเคราะห์ได้ มีรูพรุนขนาดเล็กเป็นหลัก มีเคมีพื้นผิวเป็นกรดอ่อน และมีรูปร่างคล้ายเข็ม โดยอัตราส่วน 50R:50S มีความเป็นผลึกซีโอไลต์ SUZ-4 และมีปริมาตรรูพรุนขนาดเล็กสูงสุด และที่อัตราส่วนโดยโมลนี้ เมื่อนำมาศึกษาผลของระยะเวลาและอุณหภูมิของกระบวนการไฮโดรเทอร์มัล พบการเริ่มเกิดของซีโอไลต์ SUZ-4 จากการสังเคราะห์ด้วยระยะเวลา 2 วัน ที่อุณหภูมิ 150°C หรือเมื่อใช้ระยะเวลา 4 วัน ณ อุณหภูมิ 130°C และในส่วนที่สอง ทำการทดสอบประสิทธิภาพการเร่งปฏิกิริยาดีไฮเดรชันของเอทานอลเพื่อผลิตเอทิลีน พบว่าซีโอไลต์จากสภาวะนี้ให้ผลดีที่สุด เมื่อเปรียบเทียบกับซีโอไลต์จากสภาวะอื่น ที่อุณหภูมิในการเกิดปฏิกิริยาเท่ากับ 300°C โดยมีค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงของเอทานอลเท่ากับ 99.75 และค่าร้อยละผลได้ของเอทิลีนเท่ากับ 81.28 จากการศึกษาอัตราส่วนระหว่างน้ำหนักของตัวเร่งปฏิกิริยาต่อ

เอทานอลที่ป้อนเข้า พบว่าค่าที่เหมาะสมคือ 4.69 $g_{Cat.}min/mmol_{Ethanol}$ เมื่อทดสอบปฏิกิริยานาน 65 ชั่วโมง พบว่ามีแนวโน้มค่าร้อยละผลได้ของเอทิลีนลดลง 18.03% และเมื่อศึกษาการคืนสภาพซีโอไลต์ พบว่าค่าร้อยละผลได้ของเอทิลีนมีแนวโน้มลดลง อย่างไรก็ตาม จากการทดลองการคืนสภาพ 4 ครั้ง และใช้งาน 129 ชั่วโมง ค่าร้อยละผลได้ของเอทิลีนยังอยู่ในช่วง 70-80 และในส่วนสุดท้าย ผลของการจำลองกระบวนการ ที่กำลังการผลิตเอทิลีนประมาณ 200,000 ตันต่อปี และค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงของเอทานอลเท่ากับ 90 มีค่าดัชนีพลังงานในส่วนของชุดปฏิกรณ์เท่ากับ 1081.34 $kcal/kg_{ethylene}$

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

สาขาวิชา วิศวกรรมเคมี ลายมือชื่อนักศึกษา_____

ปีการศึกษา 2559 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา_____

THITIPOB SIRISOONTORNPANIT : CATALYTIC DEHYDRATION OF ETHANOL TO ETHYLENE USING SUZ-4 ZEOLITE COMPOSED OF RICE HUSK ASH BASED SILICON DIOXIDE. THESIS ADVISOR : SUPUNNEE JUNPIROM, Ph.D., 128 PP.

RICE HUSK ASH/SUZ-4 ZEOLITE/CATALYTIC DEHYDRATION/ETHANOL/ /ETHYLENE/ENERGY INDEX

This work studies the catalytic dehydration of ethanol to produce ethylene using a SUZ-4 zeolite catalyst composed of rice husk ash-based silicon dioxide. The study involves three main parts. Firstly, a hydrothermal technique was carried out for synthesis of SUZ-4 zeolite. The prepared amorphous rice husk ash-based silicon dioxide was used as one source of material. The effect of the molar ratio of rice husk ash (R) to silica solution (S) of 0R:100S, 25R:75S, 50R:50S, 75R:25S, and 100R:0S, the time under hydrothermal conditions within the range of 1-7 days, and the hydrothermal temperature of 120-150°C were investigated. The catalytic dehydration reaction of ethanol to produce ethylene using prepared zeolites was tested in the second part. The objective of this part is to observe the effect of the variation of the reaction temperature, ratio of catalyst weight to molar fed ethanol, time on stream, and cycle time of catalyst regeneration on catalytic activity. Then, the preliminary study of process simulation was applied to ethylene production in a commercial scale coded using the visual basic application (VBA) in Microsoft Excel.

From the experimental results, it was found that the SUZ-4 zeolite is formed from all molar ratios of rice husk ash to silica solution under the conditions of

hydrothermal processing at 150°C for 4 days. All synthesized SUZ-4 zeolites have structure in micropore, weak acidic surface chemistry, and needle like crystal structure. The condition of the molar ratio of 50R:50S gave the SUZ-4 zeolite with the highest of SUZ-4 crystallinity and micropore volume. The molar ratio of 50R:50S was tested for the effect of hydrothermal time and temperature. It was observed that the SUZ-4 zeolite initially formed either at the condition of hydrothermal time of 2 days at a temperature 150°C or hydrothermal time 4 days at a temperature 130°C. In the second part, this synthesized zeolite was observed to be the optimum catalyst for the catalytic dehydration of ethanol to produce ethylene at 300°C, with resulting of conversion of ethanol 99.75% and yield of ethylene 81.28%. The optimum of the ratio of catalyst weight to molar fed ethanol was found at 4.69 $g_{Cat.}/mmol_{Ethanol}.min^{-1}$. For the extended reaction time, 65 hours, there is a 18.03% reduction for yield of ethylene. This used zeolite was then regenerated and further used for 4 cycles and total time of 129 hours, resulting in the yield of ethylene decreasing to the range of 70-80%. The result of process simulation for an annual production capacity of ethylene 200,000 tons with a specified conversion of ethanol 90% gave the energy index for the reactor section of 1081.34 $kcal/kg_{ethylene}$.

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

School of Chemical Engineering Student's Signature_____

Acadmic Year 2016 Advisor's Signature_____