อิสราภรณ์ รักงาม : การพัฒนาตัวเร่งปฏิกิริยาที่มี Al-SBA-15 เป็นหลัก สำหรับการเปลี่ยนไซโลสและกลูโคสเป็นสารประกอบฟูแรน (DEVELOPMENT OF Al-SBA-15-BASED CATALYSTS FOR CONVERSION OF XYLOSE AND GLUCOSE TO FURANIC COMPOUNDS) อาจารย์ที่ปรึกษา : ศาสตราจารย์ ดร.จตุพร วิทยาคุณ, 108 หน้า

คำสำคัญ: ตัวเร่งปฏิกิริยากรด/ความเป็นกรด/อะลูมิเนียม/ปฏิกิริยาการกำจัดน้ำ/โลหะฟอสเฟต/น้ำตาลไซโลส/น้ำตาลกลูโคส/เฟอร์ฟูรัล/5-ไฮดรอกซีเมททิลเฟอร์ฟูรัล

การเปลี่ยนน้ำตาลไซโลสและกลูโคสเป็นสารประกอบฟูรานิก ได้แก่ เฟอร์ฟูรัล และ 5-ไฮดรอกซีเมทิลเฟอร์ฟูรัล (5-HMF) ตามลำดับ ได้รับความสนใจเป็นอย่างมาก กระบวนการดังกล่าวเป็นขั้นตอนที่สำคัญสำหรับการผลิตสารเคมีมูลค่าเพิ่มหลายอย่างและเชื้อเพลิงชีวมวล วิทยานิพนธ์นี้เกี่ยวข้องกับการพัฒนาตัวเร่งปฏิกิริยาวิวิธพันธุ์ที่มีความเป็นกรดสองชนิดสำหรับปฏิกิริยาดังกล่าว สำหรับปฏิกิริยาการเปลี่ยนน้ำตาลไซโลสไปเป็นเฟอร์ฟูรัล ใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใส่อะลูมิเนียม (Al) เข้าไปในโครงสร้างของซิลิกาที่มีรูพรุนขนาดกลาง SBA-15 เรียกว่า Al-SBA-15 โดยใช้สารตั้งต้นของอะลูมิเนียมที่ต่างชนิดกัน ได้แก่ โซเดียมอะลูมิเนต (SA) อะลูมิเนียมซัลเฟต (AS) และอะลูมิเนียมไอโซโพรพอกไซด์ (AI) เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาเทียบกับ SBA-15 สารตั้งต้นอะลูมิเนียมที่แตกต่างกันส่งผลอย่างมากต่อคุณสมบัติพื้นผิวและความเป็นกรดของ Al-SBA-15 แม้จะมีอัตราส่วน Si/Al ใกล้เคียงกัน แต่มีความเป็นกรดแตกต่างกัน ตัวเร่งปฏิกิริยา Al-SBA-15 ทั้งหมดมีตำแหน่งกรด กรดแบบลิวอิส (L) และ บรอนสเตด (B) ซึ่งเป็นตำแหน่งกัมมันต์ที่สำคัญในปฏิกิริยานี้ จากการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในระบบที่ใช้น้ำเป็นตัวทำละลาย พบว่า Al-SBA-15 ทั้งหมดให้ค่าการแปรผันไซโลสและผลผลิตเฟอร์ฟูรัลที่ดีกว่า SBA-15 การแปรผันของไซโลสจะเพิ่มขึ้นตามความเป็นกรดรวม ในขณะที่ผลผลิตเฟอร์ฟูรัลเพิ่มขึ้นตามอัตราส่วนของตำแหน่งกรด L/B ในงานนี้พบว่า Al-SBA-15 (SA) เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาที่ดีที่สุด โดยให้ผลผลิตเฟอร์ฟูรัลสูงและผลพลอยได้น้อยกว่าตัวอื่น จากการทดสอบปฏิกิริยาเพิ่มเติมพบว่า การเปลี่ยนแปลงของไซโลสเพิ่มขึ้นตามอุณหภูมิ เวลา และปริมาณตัวเร่งปฏิกิริยาที่ใช้

สำหรับการเปลี่ยนน้ำตาลกลูโคสไปเป็น 5-HMF ได้ทำการเตรียมโลหะฟอสเฟตหลายชนิด ได้แก่ โครเมียม (Cr) เซอร์โคเนียม (Zr) ไนโอเบียม (Nb) สตรอนเชียม (Sr) และดีบุก (Sn) ตรึงบน Al-SBA-15 เรียกว่า MPO/Al-SBA-15 ด้วยวิธีทำให้เอิบชุ่มแบบง่าย ตัวเร่งปฏิกิริยา MPO/Al-SBA-15 ทั้งหมดมีทั้งตำแหน่งกรดแบบลิวอิสและบรอนสเตด ซึ่งพบว่า ชนิดของโลหะฟอสเฟตมีผลต่อสมบัติความเป็นกรดของตัวเร่งปฏิกิริยา ในงานนี้ใช้ระบบตัวทำละลายแบบไบเฟสิกซึ่งประกอบด้วยโซเดียมคลอไรด์ในน้ำและนอร์มัลบิวทานอลในการเร่งปฏิกิริยาเพื่อให้เกิดการแยกผลิตภัณฑ์แบบอินซิตู

พบว่า การแปรผันกลูโคสเพิ่มขึ้นตามความเป็นกรดรวม ในขณะที่ผลผลิต 5-HMF เพิ่มขึ้นตามอัตราส่วนของตำแหน่งกรด L/B และตัวเร่งปฏิกิริยา CrPO/Al-SBA-15 มีประสิทธิภาพการเร่งปฏิกิริยาสูงที่สุดเนื่องจากมีความเป็นกรดสูงสุด (0.65 mmol/g) และมีอัตราส่วน L/B (1.88) ที่เหมาะสม นอกจากนี้ยังได้ศึกษาผลกระทบของอัตราส่วนโดยโมลของ PO/ Cr ของตัวเร่งปฏิกิริยา (2.0 1.0 และ 0.5) CrPO/Al-SBA-15 ต่อคุณสมบัติและประสิทธิภาพการเร่งปฏิกิริยา พบว่า ตัวเร่งปฏิกิริยา CrPO/Al-SBA-15 ที่มีอัตราส่วนโดยโมลของ PO/Cr เท่ากับ 2 ซึ่งประกอบด้วย โครเมียม (III) ฟอสเฟตในโครงสร้างออกตะฮีดรัล ให้ผลผลิต 5-HMF และการแปรผันกลูโคสสูงที่สุด

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

สาขาวิชาเคมี ลายมือชื่อนักศึกษา อิสราภรณ์ รักงาม

ปีการศึกษา 2565 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา

ISSARAPORN RAKNGAM : DEVELOPMENT OF Al-SBA-15-BASED CATALYSTS FOR CONVERSION OF XYLOSE AND GLUCOSE TO FURANIC COMPOUNDS. THESIS ADVISOR : PROF. JATUPORN WITTAYAKUN, Ph.D. 108 PP.

Keyword: ACID CATALYST/ACIDITY/SBA-15/ALUMINIUM/METAL PHOSPHATE/ DEHYDRATION/XYLOSE/GLUCOSE/ FURFURAL/5-HYDROXYMETHYLFURFURAL

Efficient conversion of xylose and glucose into furanic compounds including furfural and 5-hydroxymethylfurfural (5-HMF), respectively, has attracted great attention as a crucial step for the production of various value-added chemicals and biofuels. This thesis involves the development of heterogeneous bifunctional acid catalysts for such reactions. For xylose conversion to furfural, the incorporation of aluminium (Al) into the structure of mesoporous silica SBA-15, referred to as Al-SBA-15, synthesized from sodium aluminate (SA), aluminium sulfate (AS), and aluminium isopropoxide (AI) precursors were employed as catalysts compared with the pristine SBA-15. The difference in Al precursors strongly affected the textural and acidic properties of Al-SBA-15. Despite the similar Si/Al ratios, their total acidities are different. All Al-SBA-15 catalysts generated Lewis (L) and Brønsted (B) acids which are important active sites in this reaction. From the catalytic testing in an aqueous system, all Al-SBA-15 samples provided better xylose conversions and furfural yields than the pristine SBA-15. The xylose conversions increased with the total acidity while the furfural yield improved with the ratios of L/B acid sites. The Al-SBA-15 (SA) was considered as the best catalyst, giving high furfural yield and fewer by-products than the others. Further reaction investigation, the xylose conversion increased with the temperature, time, and catalyst loading.

For glucose conversion to 5-HMF, various metal phosphates of Chromium (Cr), Zirconium (Zr), Niobium (Nb), Strontium (Sr), and Tin (Sn) supported on mesoporous Al-SBA-15, referred to as MPO/Al-SBA-15, were prepared by a facile wet impregnation. All MPO/Al-SBA-15 catalysts possessed both Lewis and Brønsted acid sites. The types of metal phosphates had an influence on the acid properties of the catalysts. In this work, a biphasic solvent system consisting of NaCl-H_2O/*n*-butanol was employed in the

catalytic testing to provide an *in situ* product extraction. Glucose conversions increased with the total acidity of the catalysts. On the other hand, the 5-HMF yields depend on the ratio of L/B acid sites. The CrPO/Al-SBA-15 catalyst provided the highest performance, consistent with the highest acidity of 0.65 mmol/g and a suitable L/B ratio of 1.88. Furthermore, the effect of PO/Cr ratios (2.0, 1.0 and 0.5) of CrPO/Al-SBA-15 catalysts on catalytic properties and activity was also studied. The highest 5-HMF yield and glucose conversion were achieved over the CrPO/Al-SBA-15 with a PO/Cr molar ratio of 2, containing chromium (III) phosphate in an octahedral structure.

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

School of Chemistry
Academic Year 2022

Student's Signature อิสราภรณ์ รักงาม
Advisor's Signature