

จิตรลดา ชุมิ : การเตรียม วิเคราะห์ลักษณะ และการใช้เป็นตัวรองรับตัวเร่งปฏิกิริยา แพลทินัมและโลหะเหล็กของ RH-MCM-41 และ RH-AIMCM-41 (PREPARATION, CHARACTERIZATION AND UTILIZATION AS SUPPORT MATERIALS FOR CATALYSTS CONTAINING PLATINUM AND IRON OF RH-MCM-41 AND RH-AIMCM-41) อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร. จตุพร วิทยาคุณ, 100 หน้า.

เป้าหมายของวิทยานิพนธ์นี้ คือการนำแคลบซาวซึ่งเป็นวัสดุเหลือใช้จากการสีข้าว มาใช้ประโยชน์ โดยนำมาสกัดด้วยกรดเพื่อผลิตซิลิกาอสัณฐานที่มีความบริสุทธิ์สูงสำหรับเป็นสารตั้งต้นในการสังเคราะห์วัสดุเมโซพอร์ส RH-MCM-41 ด้วยวิธีไฮโดรเทอร์มัล หลังจากการวิเคราะห์ลักษณะตัวอย่างที่สังเคราะห์ได้ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ การดูดซับด้วยแก๊สไนโตรเจน และกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องผ่าน พบว่ามีโครงสร้างผลึกแบบเฮกซะโกนัล มีพื้นที่ผิวสูง มีการจัดเรียงตัวอย่างเป็นระเบียบ และมีความเสถียรกว่าการสังเคราะห์ RH-MCM-41 ที่สภาวะปรกติ เนื่องจากผนังมีความหนามากกว่า หลังจากนั้นทำการดัดแปรเพื่อเพิ่มความเป็นกรด ด้วยการเติมอะลูมิเนียมไปบน RH-MCM-41 ที่สังเคราะห์ไว้แล้ว เพื่อผลิต RH-AIMCM-41 หลังจากการเติมอะลูมิเนียมพบว่าพื้นที่ผิวลดลงแต่ยังคงโครงสร้างผลึกแบบเฮกซะโกนอล จากนั้นนำทั้ง RH-MCM-41 และ RH-AIMCM-41 ไปเป็นตัวรองรับสำหรับตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะผสมระหว่างเหล็ก (Fe) และแพลทินัม (Pt) โดยตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมมีปริมาณ Fe เท่ากับ 5% โดยน้ำหนักและปริมาณ Pt เท่ากับ 0.5% โดยน้ำหนัก หลังจากเติมโลหะลงบน RH-MCM-41 และ RH-AIMCM-41 พบว่า ความเป็นผลึกและพื้นที่ผิวมีค่าลดลง โลหะ Fe ที่เติมลงไปมีเลขออกซิเดชันเป็น +3 อยู่ในลักษณะของเหล็กออกไซด์

เมื่อนำ $5\text{Fe}0.5\text{Pt}/\text{RH-MCM-41}$ ไปทดสอบการเร่งปฏิกิริยาการเติมหมู่ไฮดรอกซิลบนฟีนอล โดยใช้ไฮโดรเจนเปอร์ออกไซด์ เพื่อผลิตแคทาคอลและไฮโดรควิโนน ที่อุณหภูมิ 70 องศาเซลเซียส โดยแปรอัตราส่วนโดยโมลระหว่างฟีนอลกับไฮโดรเจนเปอร์ออกไซด์เป็น 2:1 1:2 2:3 และ 2:4 พบว่า ที่อัตราส่วน 2:4 ให้ค่าการแปรผันสูงสุด แต่มีผลิตภัณฑ์ซึ่งไม่ต้องการ คือ เบนโซควิโนนเพิ่มขึ้นมา สามอัตราส่วนแรกให้ผลิตภัณฑ์ที่เป็นแคทาคอลและไฮโดรควิโนนเท่านั้น และอัตราส่วนระหว่างฟีนอลกับไฮโดรเจนเปอร์ออกไซด์ที่เหมาะสมที่สุดคือ 2:3 เพราะให้ค่าการแปรผันสูง เมื่อเปรียบเทียบค่าการแปรผันของฟีนอลกับตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมจากตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมจากการผสมระหว่าง $0.5\text{Pt}/\text{RH-MCM-41}$ กับ $5\text{Fe}/\text{RH-MCM-41}$ และ $5\text{Fe}0.5\text{Pt}/\text{RH-Silica}$ พบว่า ตัวเร่งปฏิกิริยา $5\text{Fe}0.5\text{Pt}/\text{RH-MCM-41}$ มีค่าการแปรผันสูงกว่าเป็นการยืนยันว่าการเตรียม

ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมจากการใส่โลหะสองตัวเข้าไปพร้อมกัน และการกระจายตัวของโลหะบนตัวรองรับ RH-MCM-41 มีพื้นที่ผิวสูงกว่าซิลิกา ทำให้เร่งปฏิกิริยาได้ดีขึ้น ส่วนการเร่งปฏิกิริยาของ PtFe/RH-AIMCM-41 ที่อัตราส่วนโดยโมลระหว่างฟีนอลกับไฮโดรเจนเปอร์ออกไซด์เป็น 2:3 เท่านั้น พบว่าให้ผลิตภัณฑ์ที่เป็นเพียงแคทาคอลและไฮโดรควิโนนเท่านั้น แต่ค่าการแปรผันของฟีนอลบนตัวเร่งปฏิกิริยานี้มีค่าน้อยกว่า PtFe/RH-MCM-41 เนื่องจากตัวเร่งปฏิกิริยาอยู่บนตัวรองรับที่มีพื้นที่ผิวน้อยกว่าเนื่องจากการเติมอะลูมิเนียม

JITLADA CHUMEE : PREPARATION, CHARACTERIZATION AND
UTILIZATION AS SUPPORT MATERIALS FOR CATALYSTS
CONTAINING PLATINUM AND IRON OF RH-MCM-41 AND
RH-ALMCM-41. THESIS ADVISOR : ASSOC. PROF. JATUPORN
WITTAYAKUN, Ph.D. 100 PP.

RH-MCM-41/PLATINUM/IRON/PHENOL HYDROXYLATION/RICE HUSK

The goal of this thesis was to extract amorphous and high purity silica from rice husk, a by-product from rice milling, and used as a silica source for the synthesis of mesoporous material RH-MCM-41 by hydrothermal method. Characterizations by X-ray diffraction (XRD), N₂ adsorption and transmission electron microscopy (TEM) indicated that the RH-MCM-41 still had a hexagonal lattice, high surface area and well-ordered structure. The RH-MCM-41 synthesized by hydrothermal was more stable than RH-MCM-41 synthesized with ambient conditions because the pore walls were thicker. The RH-MCM-41 was modified further by adding aluminium on the preformed RH-MCM-41 to produce RH-ALMCM-41. The modified RH-MCM-41 had lower surface area but still contained the hexagonal structure of RH-MCM-41. Both RH-MCM-41 and RH-ALMCM-41 were used as support materials for platinum (Pt) and iron (Fe) catalysts that the loading of Fe and Pt were 5 and 0.5% wt, respectively. After metal addition, the crystallinity of the supports decreased and the oxidation state of Fe was +3 in oxide form.

The 5Fe0.5Pt/RH-MCM-41 was tested for phenol hydroxylation by using H_2O_2 solution at 70 °C with the phenol: H_2O_2 mole ratio of 2:1, 2:2, 2:3 and 2:4 to produce catechol and hydroquinone. The ratio 2:4 gave the highest phenol conversion an undesired by-product, benzoquinone, was produced. The first three ratios gave only catechol and hydroquinone with the highest conversion on the phenol: H_2O_2 mole ratio of 2:3. The phenol conversion on 5Fe0.5Pt/RH-MCM-41 was higher than that of a physical mixture between 0.5Pt/RH-MCM-41 and 5Fe/RH-MCM-41, and higher than that of 5Fe0.5Pt/RH-Silica indicating that the effective catalyst can be prepared by co-impregnation of Fe and Pt on the same support. The improvement is also achieved by the metal dispersion on RH-MCM-41 which has a higher surface area than the RH-Silica. The catalytic performance of 5Fe0.5Pt/RH-MCM-41 was better than that of 5Fe0.5Pt/RH-AIMCM-41 which was only tested with the phenol: H_2O_2 mole ratio of 2:3 because the RH-MCM-41 support had a significantly higher surface area than the RH-AIMCM-41.

School of Chemistry

Academic Year 2008

Student's Signature_____

Advisor's Signature_____