พงษ์ธนวัฒน์ เข็มทอง: การเตรียม การวิเคราะห์ลักษณะ และการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยา ที่ประกอบด้วยโลหะแพลทินัมและโคบอลต์บนซีโอไลต์แบบฟูจาไซต์ (PREPARATION, CHARACTERIZATION AND CATALYTIC TESTING OF CATALYSTS CONTAINING PLATINUM AND COBALT ON FAUJASITE ZEOLITES) อาจารย์ที่ปรึกษา: รองศาสตราจารย์ ดร.จตุพร วิทยาคุณ, 171 หน้า.

งานนี้เริ่มจากการสกัดซิลิกาอสัณฐานจากแกลบข้าวที่มีความบริสุทธิ์ 98 เปอร์เซ็นต์ แล้ว เปลี่ยนให้เป็นสารละลาย โซเดียมซิลิเกตเพื่อใช้สังเคราะห์ซีโอไลต์โซเดียมโพแตสเซียมเอกซ์ที่มี ปริมาณซิลิกาต่ำ (NaK-LSX) และซีโอไลต์โซเดียมวาย (NaY) พบว่าสังเคราะห์ได้สำเร็จโดยยืนยัน ได้จากเทกนิกการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ นอกจากนี้ได้ศึกษาลักษณะทางกายภาพ การกระจายตัว ของขนาดอนุภาค เโละหาพื้นที่ผิวของซีโอไลต์ทั้งสองชนิด โครงสร้างของซีโอไลต์ NaK-LSX ไม่ เปลี่ยนหลังจากแลกเปลี่ยนไอออนกับแอมโมเนียมแต่โครงสร้างถูกทำลายหลังจากการแคลไซน์ ส่วน NaY สังเคราะห์ได้เฟสบริสุทธิ์โดยวิธีสองขั้นตอน โดยบ่มที่อุณหภูมิห้อง 24 ชั่วโมงแล้วตก ผลึกที่อุณหภูมิ 90 องศาเซลเซียสนาน 24 ชั่วโมง ผลึกที่ได้มีโครงสร้างแข็งแรงหลังจากทำการ แลกเปลี่ยนไอออนและเผาแคลไซน์ จากนั้นนำซีโอไลต์วายไปใช้เป็นตัวรองรับของตัวเร่งปฏิกิริยา

ความสามารถในการีดิวซ์ของโคบอลต์บนซีโอไลต์วายในรูปของโซเคียมและโปรตอน (Co/NaY และ Co/HY ตามลำดับ) ศึกษาได้ด้วยเทคนิคการดูดกลืนรังสีเอกซ์ ก่อนนำไปทดสอบ การเร่งปฏิกิริยาไฮโดรจิโนไลซิสของบิวเทน ผลจากการทดลองพบว่าคุณสมบัติทางกายภาพและ ทางเคมีโคบอลต์ขึ้นอยู่กับฟอร์มของตัวรองรับ หลังจากรีดิวซ์ด้วยแก๊สไฮโดรเจนที่อุณหภูมิ 420 องศาเซลเซียส 5 ชั่วโมง โคบอลต์บน NaY เกิดการรีดิวซ์บางส่วนเป็นโลหะโคบอลต์ในขณะที่ โคบอลต์บนตัวรองรับ HY ไม่มีการเปลี่ยนแปลงหลังจากรีดิวซ์ที่สภาวะเดียวกัน บ่งซี้ว่าโคบอลต์ ออกไซด์บน HY รีดิวซ์ได้ยาก และพบว่าฟอร์มที่มีความว่องไวต่อปฏิกิริยาไฮโดรจิโนไลซิสของ บิวเทนคือ Co/NaY

การเพิ่มประสิทธิภาพของโคบอลต์ด้วยแพลทินัมบนตัวรองรับโซเคียมวายโดยใช้ปริมาณ แพลทินัมคงที่ 1 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก พบว่าเมื่อปริมาณโคบอลต์ 1 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก รีคิวซ์ได้ยากแม้จะทำการรีคิวซ์ที่ 400 องศาเซลเซียส นาน 5 ชั่วโมง ในขณะที่ โคบอลต์ปริมาณ 6 และ 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักแสดงผลการรีคิวซ์เกือบสมบูรณ์ บ่งชี้ว่าแพลทินัมช่วยในการรีคิวซ์ ของโคบอลต์ ความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะคู่ผสมกว่าตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะเดี่ยว หลังจากการเร่งปฏิกิริยา 30 นาที ค่าการแปรผันของโคบอลต์บนตัวรองรับโซเดียมวาย มีค่า 40 เปอร์เซ็นต์ โดยเกิดเฉพาะมีเทน ในขณะที่ค่าการแปรผันของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะคู่ผสม เกิดขึ้นเกือบสมบูรณ์ ผลิตภัณฑ์ที่เกิดขึ้นคือ มีเทน อีเทน ส่วนโพรเพนเกิดหลังจากเกิดปฏิกิริยา 60

นาที่ ดังนั้นการเพิ่มโลหะแพลทินัมลงไปช่วยเพิ่มการรีดิวซ์และช่วยในการเร่งปฏิกิริยาไฮโดรจีโน-ไลซิสบิวเทนของโคบอลต์บนตัวรองรับโซเดียมวาย

สึกษาการเร่งปฏิกิริยาไอโซเมอร์ไรเซชันของนอร์มัลเฮกเซนด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะ
แพลทินัมบนตัวรองรับโปรตอนซีโอไลด์วายและตัวเร่งปฏิกิริยาผสมระหว่างแพลทินัมบนตัว
รองรับโซเคียมวายและตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะแพลทินัมบนตัวรองรับซีโอไลต์โปรตอนวาย
(อัตราส่วนโดยน้ำหนัก 1:3) พบว่าที่อุณหภูมิ 300 องสาเซลเซียส ความเจาะจงค่อปฏิกิริยามีค่า
เหมือนกันทั้งสองตัวเร่งปฏิกิริยา ผลิตภัณฑ์โซเมอร์หลักที่ได้คือเมทิลเพนเทนและใดเมทิลบิวเทน
ผลิตภัณฑ์ไอโซเมอร์ประกอบไปด้วย 2 เมทิลเพนเทน 3 เมทิลเพนเทน 2,2 ไดเมทิลบิวเทน 2,3 ได
เมทิลบิวเทน ส่วนที่อุณหภูมิ 450 องสาเซลเซียส ตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะแพลทินัมบนตัวรองรับ
โปรตอนซีโอไลต์วายเกิดผลิตภัณฑ์การแตกตัวในปริมาณที่สูงซึ่งประกอบไปด้วย โพรเพน บิวเทน
และเพนเทน ส่วนผลิตภัณฑ์ไอโซเมอร์ที่ได้กล้ายคลึงกับการเร่งปฏิกิริยาที่อุณหภูมิ 300 องสา
เซลเซียสแต่ให้ผลผลิตสูงกว่า ตัวเร่งปฏิกิริยาผสมระหุ่ว่างแพลทินัมบนตัวรองรับโซเดียมวายและ
ตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะแพลทินัมบนตัวรองรับซีโอไลต์โปรตอนวายมีความจำเพาะเจาะจงต่อการ
เกิดปฏิกิริยาโอโซเมอร์ไรเซชันของนอร์มัลเฮกเซนที่อุณหภูมิสูงมากกว่าตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะ
แพลทินัมบนตัวรองรับโปรตอนซีโอไลต์วายแสดงให้เห็นว่าการเพิ่มโซเดียมวายจำเป็นต่อปฏิกิริยา
โอโซเมอร์ไรเซชัน

สาขาวิชาเคมี ปีการศึกษา 2551 PONGTANAWAT KHEMTHONG: PREPARATION, CHARACTERIZATION
AND CATALYTIC TESTING OF CATALYSTS CONTAINING PLATINUM
AND COBALT ON FAUJASITE ZEOLITES. THESIS ADVISOR: ASSOC.
PROF. JATUPORN WITTAYAKUN, Ph.D. 171 PP.

## ZEOLITES/CATALYSTS/ HYDROGENOLYSIS/ISOMERIZATION

Amorphous silica powder with 98% purity was extracted from rice husk, converted to a sodium silicate solution, and used as a silica source for the synthesis of sodium-potassium low silica type X (NaK-LSX) and sodium Linde type Y (NaY). The syntheses were successful as confirmed by XRD. The structure of NaK-LSX did not change after ion-exchange to ammonium form but collapsed after subsequent calcination. The zeolite NaY in pure phase was obtained from two-step synthetic route in which aged for 24 h at room temperature and crystallized for 24 h at 90°C. The structure of NaY was retained after the ion-exchange and calcination. The NaY was used as a catalyst support for cobalt and platinum in the form of monometallic and bimetallic.

Reducibility of monometallic cobalt on zeolite Y in sodium and proton forms (Co/NaY and Co/HY respectively) was studied by XAS before testing on butane hydrogenolysis. The physicochemical properties of cobalt strongly depend on the form of support. After reduction in H<sub>2</sub> at 400°C for 3 h, the Co in Co/NaY was partially reduced to metallic Co while Co in Co/HY was not changed after reduction with similar conditions indicating that the cobalt oxides on HY are difficult to reduce. The active form of Co catalysts for butane hydrogenolysis is metallic cobalt.

metal with fixed Pt loading at 1 wt% for butane hydrogenolysis was also studied. The catalyst with Co loading of 1 wt% was difficult to reduce to active form at 400°C in H<sub>2</sub> for 3 h. The bimetallic catalyst with Co loadings of 6 wt% and 10 wt% were almost fully reduced indicating that the addition of Pt assisted Co reduction. The catalytic activities of the bimetallic catalysts were higher than monometallic catalysts.

The enhancement of platinum (Pt) on Co supported on zeolite NaY as a second

After 30 minutes, the conversion on Co/NaY was 40% with methane as a product

while the conversions on the bimetallic catalysts were almost 100%. The products on

the bimetallic catalysts after 30 minutes were methane and ethane while propane was

observed after 60 minutes. Thus, the presence of Pt enhanced reducibility and

performance of butane hydrogenolysis on Co/NaY.

Isomerization of *n*-hexane on Pt/HY and a mixture between Pt/NaY and Pt/HY (weight ratio 1:3) was studied. At 300°C the selectivity were similar on both catalysts, with the methylpentanes (MP) and dimethylbutane (DMB) as main and primary isomerization products whose distribution included 2-MP, 3-MP, 2,2-DMB and 2,3-DMB. At 450°C, the 1Pt/HY gave higher cracking products including ethane, propane and butane. The isomerization products were similar to those at 300°C but with higher yields. The mixture Pt/NaY: Pt/HY gave a higher selectivity for *n*-hexane isomerization at high temperature than Pt/HY indicating that an addition of NaY is

School of Chemistry

necessary for isomerization.

Academic Year 2008

Student's Signature \_\_

Advisor's Signature of aus on

Syran