

มัสติกา พิมพ์สุตะ : การปรับปรุงการเร่งปฏิกิริยาการเติมหมู่ไฮดรอกซิลบนฟีนอล
ด้วยเหล็กรองรับด้วย ZSM-5 (IMPROVEMENT OF CATALYTIC
PERFORMANCE FOR PHENOL HYDROXYLATION BY IRON SUPPORTED
ON ZSM-5) อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร.จตุพร วิทยาคูณ, 126 หน้า.

ในวิทยานิพนธ์นี้ ได้สังเคราะห์ซีโอไลต์ NaZSM-5 ซึ่งเป็นวัสดุไมโครพอร์ส โดยใช้แหล่งซิลิกาจากแกลบข้าว แล้วทำการดัดแปรด้วยการกำจัดซิลิกาออกจากโครงสร้างซีโอไลต์ทำให้เกิดมีโซพอร์ โดยไม่ทำลายโครงสร้างของซีโอไลต์ เมื่อนำซีโอไลต์ก่อนและหลังการดัดแปร (NaZSM-5 และ NaZSM-5(D)) ไปเป็นตัวรองรับสำหรับการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาเหล็ก (Fe) ด้วยการทำให้เอิบชุ่มแบบเปียกพอดิ แล้วนำไปเร่งปฏิกิริยาการเติมหมู่ไฮดรอกซิลบนฟีนอล การเพิ่มมีโซพอร์จะช่วยในการแพร่ของสารและทำให้การเร่งปฏิกิริยาดีขึ้น

เมื่อเปลี่ยน NaZSM-5 และ NaZSM-5(D) ให้อยู่ในรูปโปรตอน (HZSM-5 และ HZSM-5(D)) แล้วสมบัติทางกายภาพและเคมีไม่แตกต่างจากรูปเดิมอย่างมีนัยสำคัญ เมื่อนำซีโอไลต์ทั้งหมดไปเป็นตัวรองรับของ Fe ด้วยการทำให้เอิบชุ่มแบบเปียกพอดิเช่นเดิม พบว่าการเร่งปฏิกิริยาของ Fe/HZSM-5(D) เกิดเร็วกว่า Fe/NaZSM-5(D) แสดงว่าการดูดซับของสารเกิดได้ดีกว่า อย่างไรก็ตาม การเลือกเกิดผลิตภัณฑ์ยังไม่ดีขึ้น อาจเป็นผลจากการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาแบบเอิบชุ่ม ที่ทำให้เหล็กมีการกระจายตัวแบบลุ่ม ดังนั้น ในส่วนต่อไปจึงศึกษาผลของการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

ส่วนสุดท้าย คือการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา Fe บน HZSM-5 และ HZSM-5(D) โดยการแลกเปลี่ยนไอออนในของเหลว (LS) และในของแข็ง (SS) พบว่าการเตรียมแบบ LS จะให้ค่าการแปลงผันของฟีนอลที่น้อยกว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมแบบทำให้เอิบชุ่ม แต่ให้ค่าการเลือกเกิดผลิตภัณฑ์เหมือนเดิม การเตรียมโดยวิธี SS ให้การกระจายตัวของเหล็กไม่ดี ซึ่งดูได้จากการลดลงของพื้นที่ผิวและผลการเร่งปฏิกิริยา พบว่า $Fe_{ss}/HZSM-5$ ไม่สามารถผลิตสารผลิตภัณฑ์ ในขณะที่ $Fe_{ss}/HZSM-5(D)$ ให้สารผลิตภัณฑ์ที่เป็นแคทคอลลอยด์แต่การดูดซับของฟีนอลต่ำ

MUSTIKA PIMSUTA : IMPROVEMENT OF CATALYTIC
PERFORMANCE FOR PHENOL HYDROXYLATION BY IRON
SUPPORTED ON ZSM-5. THESIS ADVISOR : ASSOC. PROF. JATUPORN
WITTAYAKUN, Ph.D. 126 PP.

PHENOL HYDROXYLATION/RICE HUSK SILICA/ZSM-5/ IRON/
DESILICATION

In this thesis NaZSM-5, a microporous material was synthesized by using rice husk silica source and modified by desilication to generate mesopores without destroying the zeolite structure. The modified and non-modified zeolites (NaZSM-5 and NaZSM-5(D)) were used as supports for preparation of Fe catalysts by incipient wetness impregnation. The catalysts were tested for phenol hydroxylation. The presence of mesopores could improve diffusion of reactants and thus, catalytic performance.

When NaZSM-5 and NaZSM-5(D) were converted to proton form, HZSM-5 and HZSM-5(D), respectively, physical and chemical properties of the proton forms did not change significantly from those of the parents. When all zeolites were used as the supports for Fe, also prepared by incipient wetness impregnation, the reaction on Fe/HZSM-5(D) was faster than Fe/NaZSM-5(D) likely because the higher adsorbed amount of reactants. However, the product selectivity was not improved probably because Fe species prepared by impregnation were in random positions. Consequently, effect of catalyst preparation method was studied.

Finally, Fe on HZSM-5 and HZSM-5(D) were prepared by liquid-state ion exchange (LS) and solid-state ion exchange (SS). The catalysts prepared by LS gave a

poorer phenol conversion than those by impregnation but the selectivities were similarity. The preparation by SS method resulted in poor dispersion of Fe indicated by more decrease in surface area and catalytic performance. The hydroxylation products were not observed on Fe_{SS}/HZSM-5 whereas low phenol conversion with only selectivity for CAT was obtained from Fe_{SS}/HZSM-5(D).

School of Chemistry

Academic Year 2012

Student's Signature ณัฐกานต์ วิสารัตน์

Advisor's Signature Amir Shuaib