นพวรรณ บุญเทียม : สมบัติความเป็นเบสของโพแทสเซียมบน SBA-15 ที่บรรจุด้วยอะลูมิเนียมออกไซด์และอะลูมิเนียม-แลนทานัมออกไซด์ และความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาทรานส์เอสเทอริฟิเคชัน (BASE PROPERTY OF POTASSIUM SUPPORTED ON SBA-15 LOADED WITH ALUMINIUM OXIDE AND ALUMINIUM-LANTHANUM OXIDE AND THEIR CATALYTIC PERFORMANCE IN TRANSESTERIFICATION) อาจารย์ที่ปรึกษา : ศาสตราจารย์ ดร.จตุพร วิทยาคุณ, 90 หน้า

วิทยานิพนธ์ฉบับนี้ศึกษาความเป็นเบสของโพแทสเซียมฟลูออไรด์ (KF) และโพแทสเซียมไอโอไดด์ (KI) บนตัวรองรับ 2 ชนิด ได้แก่ SBA-15 บรรจุด้วยอะลูมิเนียมออกไซด์ (Al_2O_3/SBA-15) และอะลูมิเนียมและแลนทานัมออกไซด์ (Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15) และใช้ทดสอบความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาทรานส์เอสเทอริฟิเคชันของกลีเซอริลไตรออกทาโนเอต

การบรรจุโพแทสเซียมลงบน SBA-15 โดยตรงทำให้เกิดการพังของโครงสร้าง SBA-15 ดังนั้นจึงป้องกัน SBA-15 ด้วยการเติม Al_2O_3 ด้วยวิธีเอิบชุ่มเพื่อใช้เป็นตัวรองรับก่อนทำการบรรจุโพแทสเซียม KF และ KI บน SBA-15 ด้วยวิธีเอิบชุ่มและเผาที่อุณหภูมิ 500 °C เลือกใช้สารตั้งต้นโพแทสเซียมจาก KF และ KI เนื่องจากมีความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาทรานส์เอสเทอริฟิเคชันได้ดีเมื่ออยู่บน Al_2O_3 จากนั้นศึกษาโครงสร้างของตัวอย่าง KF/Al_2O_3/SBA-15 และ KI/Al_2O_3/SBA-15 ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (XRD) การดูดซับและคายซับของแก๊สไนโตรเจน ศึกษาเฟสของโพแทสเซียมบนตัวรองรับด้วยสเปกโทรสโกปีของการดูดกลืนรังสีเอกซ์ที่ใกล้ค่าเอดจ์ (X-ray absorption near edge spectroscopy, XANES) ศึกษาสมบัติความเป็นเบสของวัสดุด้วยการเปลี่ยนแปลงของเมทิลบิวทานอล (MBOH) ตัวอย่าง KF/Al_2O_3/SBA-15 มีการพังของโครงสร้างและมีโซพอร์ของ SBA-15 ส่วน KI/Al_2O_3/SBA-15 ยังคงมีลักษณะของความเป็นมีโซพอร์เหลืออยู่แม้ว่าจะเกิดการพังของโครงสร้างบางส่วน KI/Al_2O_3/SBA-15 มีความเป็นเบสสูงกว่า KF/Al_2O_3/SBA-15 โดยทำให้ MBOH เกิดการเปลี่ยนแปลง 20%

เพื่อเพิ่มสมบัติความเป็นเบสจึงบรรจุ La_2O_3 บนตัวรองรับ SBA-15 ร่วมกับ Al_2O_3 เนื่องจาก La_2O_3 ทำให้เกิดตำแหน่งซูเปอร์เบสได้ จากนั้นบรรจุ KF และ KI บน Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15และเผาที่อุณหภูมิ 350 และ 500°C สำหรับวัสดุ KF/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 โครงสร้างและมีโซพอร์ของ SBA-15 ถูกทำลายทั้งหมด สำหรับ KI/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 มีโซพอร์ยังคงอยู่แม้ว่าจะมีอนุภาคของ KI เข้าไปอุดตัน KF/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 เผาที่อุณหภูมิ 350°C ทำให้ MBOH เกิดการ

เปลี่ยนแปลง 50% และความเป็นเบสลดลงเมื่อเผาที่อุณหภูมิ 500°C เนื่องจากการการพังของตัวรองรับที่มากขึ้น KI/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 15 เผาที่อุณหภูมิ 350°C มีสมบัติความเป็นเบสสูง โดยทำให้ MBOH เกิดการเปลี่ยนแปลง 97-100% อย่างคงที่ตลอดเวลาทดสอบ KI บน Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 เผาที่อุณหภูมิ 500°C เกิดการเสื่อมสภาพตามเวลาทดสอบ เนื่องจากมีเฟสของโพแทสเซียมออกไซด์มากขึ้น การบรรจุ La_2O_3 บนตัวรองรับสามารถปรับปรุงคุณสมบัติความเป็นเบสของวัสดุได้อย่างมีนัยสำคัญ

ส่วนสุดท้ายคือการทดสอบการเร่งปฏิกิริยาทรานส์เอสเทอริฟิเคชัน พบว่าทั้ง K/Al_2O_3/SBA-15 และ K/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 ไม่ว่องไวในการเร่งนี้ สำหรับ K/Al_2O_3/SBA-15 มีความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาต่ำเพราะมีความเป็นเบสต่ำ K/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 มีความเป็นเบสสูงแต่เนื่องจาก La_2O_3 เปลี่ยนเฟสไปเป็น $La(CO_3)_3$ ส่งผลให้ความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาต่ำ

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

สาขาวิชาเคมี ลายมือชื่อนักศึกษา นฤวรรณ บุญเกิด

ปีการศึกษา 2562 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา อภิพร ภิญญา

NOPPHAWAN BUNTHIAM : BASE PROPERTY OF POTASSIUM SUPPORTED ON SBA-15 LOADED WITH ALUMINIUM OXIDE AND ALUMINIUM-LANTHANUM OXIDE AND THEIR PERFORMANCE IN TRANSESTERIFICATION. THESIS ADVISOR : PROF. JATUPORN WITTAYAKUN, Ph.D. 90 PP.

SBA-15/POTASSIUM/BASE MATERIAL/X-RAY ABSORPTION/ METHYLBUTYNOL CATALYTIC CONVERSION/TRANSESTERIFICATION

This thesis studies the base properties of potassium fluoride (KF) and iodide (KI) on two supports, including SBA-15 loaded with aluminium oxide (Al_2O_3/SBA-15) and aluminium-lanthanum oxide (Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15). The prepared materials are tested in transesterification of glyceryl trioctanoate.

A direct loading of potassium on SBA-15 causes a collapse of SBA-15 structure. Thus, SBA-15 is loaded with Al_2O_3 by wetness impregnation and used as a support for potassium. KF and KI are loaded on Al_2O_3/SBA-15 by wetness impregnation and followed by calcination at 500°C. KF and KI are selected as potassium precursors because of their good catalytic activity in transesterification when supporting in Al_2O_3. The structures of materials are analyzed by X-ray diffraction (XRD) and N_2 adsorption-desorption. Phases of potassium on the supports are investigated by X-ray absorption near edge spectroscopy (XANES). The basicity is studied by methylbutynol (MBOH) catalytic conversion. KF/Al_2O_3/SBA-15 results in SBA-15 structure and mesopores collapse. Conversely, KI/Al_2O_3/SBA-15 retains the mesoporous character, although partial destruction occurs. KI/Al_2O_3/SBA-15 has slightly higher basicity than KF/ Al_2O_3/SBA-15 with 20% conversion of MBOH.

To improve the basicity, lanthanum oxide (La_2O_3) is introduced to the support with Al_2O_3, because it could generate superbasic sites. KF and KI are loaded on Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 and calcined at 350 and 500°C. SBA-15 mesostructure is destroyed severely in KF/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15. The mesopores retains in KI/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15, although the loaded KI plugs the pores. KF/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 calcined at 350°C gives 50% conversion of MBOH and the basicity decreases upon calcination at 500°C, resulting from more collapse of the support. KI/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 calcined at 350°C has high basicity with MBOH conversion of 97.5% over time on stream. KI/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 calcined at 500°C deactivates over time on stream as a result of more potassium oxide phase. Loaded La_2O_3 on the support significantly improves the basicity of materials.

All materials are tested in the transesterification reaction. Both K/Al_2O_3/SBA-15 and K/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15 are not active in this reaction. K/Al_2O_3/SBA-15 provides low catalytic performance due to low basicity. For K/Al_2O_3-La_2O_3/SBA-15, it contains high basicity, but La_2O_3 converts to $La_2(CO_3)_3$, resulting in low catalytic performance.

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

School of Chemistry

Academic Year 2019

Student's Signature พรพรรณ บุญเกื้อ

Advisor's Signature ดร.