นางสาวพิชชานันท์ ศรีอุทัย: ปฏิกิริยาดีไฮเดรชันด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาของเอทานอลเพื่อผลิตเอทิลีนโดยใช้ซีโอไลต์ SUZ-4 ที่เตรียมจากเถ้าแกลบ (CATALYTIC DEHYDRATION OF ETHANOL TO PRODUCE ETHYLENE USING SUZ-4 ZEOLITE PREPARED FROM RICE HUSK ASH)

อาจารย์ที่ปรึกษา: อาจารย์ ดร.สุพรรณี จันทร์ภิรมณ์, 285 หน้า

คำสำคัญ : SUZ-4/ซีโอไลต์/กระบวนการดีไฮเดรชันโดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยา/เอทานอล/เอทิลีน/เถ้าแกลบ

ความต้องการเอทิลีนที่เพิ่มขึ้นและความกังวลด้านสิ่งแวดล้อมที่เกี่ยวข้องกับการผลิตแบบเดิมผ่านกระบวนการแตกตัวของไฮโดรคาร์บอนเป็นแรงผลักดันให้มีการแสวงหาวิธีการทางเลือกที่ยั่งยืน ในการศึกษานี้ ได้มีการศึกษากระบวนการดีไฮเดรชันของเอทานอลเป็นเอทิลีนโดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาซีโอไลต์ SUZ-4 ที่ได้จากเถ้าแกลบ ประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาได้รับการศึกษาผ่านเครื่องปฏิกรณ์แบบเบดนิ่งภายใต้ความดันบรรยากาศ โดยเน้นที่ผลกระทบของอุณหภูมิ (200-380°C) อัตราการไหลของของเหลวเชิงปริมาตรต่อชั่วโมง (0.5-1.3 h^{-1}) และความเสถียรของตัวเร่งปฏิกิริยา ผลการศึกษาผลกระทบของอุณหภูมิภายใต้อัตราการไหลของของเหลวเชิงปริมาตรต่อชั่วโมงที่ 0.9 h^{-1} พบว่าการเปลี่ยนแปลงของเอทานอลและผลผลิตเอทิลีนแปรผันโดยตรงกับอุณหภูมิ โดยที่อุณหภูมิ 380°C ให้ค่าการเปลี่ยนแปลงของเอทานอลและผลผลิตเอทิลีนสูงสุดอยู่ที่ 98.64% และ 77.54% ตามลำดับ ในทางตรงกันข้ามเมื่ออัตราการไหลของของเหลวเชิงปริมาตรต่อชั่วโมงเพิ่มขึ้นส่งผลให้ค่าผลผลิตลดลง โดยที่สภาวะ 0.5 h^{-1} ให้ผลผลิตเอทิลีนสูงสุดคือ 77.61% ที่การเปลี่ยนแปลงของเอทานอล 98.64% การทดสอบความเสถียรของตัวเร่งปฏิกิริยาผ่านการทดสอบปฏิกิริยาแบบรอบจำนวน 10 รอบรวม 100 ชั่วโมงแสดงให้เห็นการเปลี่ยนแปลงของเอทานอลและผลผลิตเอทิลีนที่สม่ำเสมอและลดลงเล็กน้อย ซึ่งบ่งชี้ถึงความทนทานและความเสถียรของตัวเร่งปฏิกิริยา อีกทั้งยังให้ค่าผลผลิตเอทิลีนสูงสุดอยู่ที่ 99.17% ที่การเปลี่ยนแปลงของเอทานอล 81.49% โดยให้ผลลัพธ์ที่ดีที่สุดภายใต้เงื่อนไข 380°C และอัตราการไหลของของเหลวเชิงปริมาตรต่อชั่วโมง 0.5 h^{-1} โดยเฉพาะอย่างยิ่งความบริสุทธิ์ของเอทิลีนที่ได้มีค่าเฉลี่ยมากกว่า 80% ตลอดระยะเวลา 100 ชั่วโมงที่ทดสอบ ซึ่งแสดงให้เห็นถึงศักยภาพของซีโอไลต์ SUZ-4 ในฐานะตัวเร่งปฏิกิริยาที่เหมาะสมสำหรับการผลิตเอทิลีนหมุนเวียน นอกจากนี้การสร้างแบบจำลองจลนศาสตร์ยังยืนยันจลนศาสตร์อันดับหนึ่ง ในขณะที่การวิเคราะห์ของอาร์เรเนียสเผยให้เห็นค่าพลังงานกระตุ้นสำหรับการดีไฮเดรชันเอทานอลและการก่อตัวของเอทานอล ซึ่งความสอดคล้องกับการศึกษาในงานวิจัยก่อนหน้า สนับสนุนความน่าเชื่อถือของค่าคงที่เหล่านี้ในการคาดการณ์ผลลัพธ์ของการทดลอง นอกจากนี้ผลการศึกษาแบบจำลองโมเลกุลในกระบวนการดีไฮเดรชันของเอทานอลที่ผ่านการดำเนินไปของปฏิกิริยาเอกพันธุ์ โดยตรวจสอบเส้นทางการเกิดปฏิกิริยาหลักสองเส้นทาง ได้แก่ กระบวนการดีไฮเดรชันของเอทานอลเป็นเอทิลีนโดยตรงและเส้นทางรองที่เกี่ยวข้องกับโครงสร้างโมเลกุลของไดเอทิลอีเทอร์เป็นตัวกลาง

ผ่านโปรแกรมเทอร์โบโมล (TURBOMOLE program) ทฤษฎีฟังก์ชันความหนาแน่น (DFT) ที่ระดับ B3LYP/aug-cc-pVTZ ในงานนี้ได้แสดงโครงสร้างโมเลกุลของสารตั้งต้นและผลิตภัณฑ์ที่เสถียรและเหมาะสมที่สุด รวมถึงแสดงผลการดำเนินไปของแบบจำลองปฏิกิริยาเอกพันธุ์ของทั้งสองเส้นทางปฏิกิริยาที่มีความเป็นไปได้ทั้งหมด ผลการค้นพบเหล่านี้ให้แนวทางที่มีแนวโน้มดีในการลดผลกระทบต่อสิ่งแวดล้อมจากการผลิตเอทานอล ซึ่งสนับสนุนการเปลี่ยนผ่านสู่กระบวนการทางเคมีที่ยั่งยืนยิ่งขึ้น นอกจากนี้ยังสามารถนำข้อมูลที่ได้จากงานวิจัยนี้ไปใช้ในการออกแบบและพัฒนากระบวนการผลิตเอทิลีนผ่านกระบวนการดีไฮเดรชันของเอทานอลเพื่อผลิตเอทิลีนได้ในอนาคต

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

สาขาวิชา วิศวกรรมเคมี
ปีการศึกษา 2567

ลายมือชื่อนักศึกษา .....
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา .....
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม.....

PITCHANAN SRIUTHAI: CATALYTIC DEHYDRATION OF ETHANOL TO PRODUCE ETHYLENE USING SUZ-4 ZEOLITE. THESIS ADVISOR: SUPUNNEE JUNPIROM, Ph.D., 285 PP.

Keyword: Catalytic dehydration/Ethanol/Ethylene/SUZ-4/Rice husk ash

The increasing demand for ethylene and environmental concerns associated with conventional production via hydrocarbon cracking have driven the search for sustainable alternative approaches. The present study investigates the process of dehydration of ethanol to ethylene, utilizing a zeolite SUZ-4 catalyst derived from rice husk ash. The catalytic performance was evaluated in a fixed-bed reactor under atmospheric pressure, with a focus on the effects of temperature (200-380°C), liquid hourly space velocity (LHSV, 0.5-1.3 h^{-1}), and catalyst stability. The effect of temperature was examined at LHSV of 0.9 h^{-1}, and it was found that ethanol conversion and ethylene yield increased proportionally with temperature. At 380°C, the highest ethanol conversion and ethylene yield were achieved at 98.64% and 77.54%, respectively. Conversely, an increase in LHSV resulted in a decrease in ethylene yield, with the maximum yield of 77.61% with ethanol conversion of 98.64% at LHSV of 0.5 h^{-1}. The stability of the catalyst was examined over a period of 10 reaction cycles, totaling 100 hours. This testing demonstrated consistent conversion of ethanol and yield of ethylene, with only a slight reduction, thus indicating excellent durability and stability. A maximum ethylene yield of 99.17% was obtained at 81.49% ethanol conversion, with the optimal performance achieved at 380°C and LHSV of 0.5 h^{-1}. Notably, the ethylene product exhibited an average purity above 80% throughout the 100-hour testing period, confirming the potential of SUZ-4 as a promising catalyst for renewable ethylene production. Furthermore, kinetic modelling confirmed first-order reaction kinetics, while Arrhenius analysis revealed activation energies for ethanol dehydration and ethylene formation that are in good agreement with values reported in previous studies. This supports the reliability of the kinetic constants used for prediction. Moreover, molecular modelling of the ethanol dehydration process under a homogenous reaction pathway was conducted using the TURBOMOLE program based on density functional theory (DFT) at the B3LYP/aug-cc-pVTZ level. This modelling

identified the most stable and relevant molecular structures of reactants and products and elucidated the reaction mechanisms for both the direct ethanol to ethylene pathway and a secondary route involving diethyl ether as an intermediate. These findings offer valuable insights into reducing the environmental impact of ethylene production and support the transition to more sustainable chemical processes. The results obtained in this work may also be used in the design and development of ethanol dehydration processes for ethylene production in the future.

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

School of Chemical Engineering

Academic Year 2024

Student's Signature.....พิชชาพันธ์ เสือกัย

Advisor' Signature.....SUPUNNEE J.

Co-advisor's Signature.....