

246353

ห้องสมุดงานวิจัย สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ



246353

รายงานการวิจัย

งบประมาณแผ่นดิน ประจำปีงบประมาณ 2553

ตัวเร่งปฏิกิริยาสำหรับการผลิตแอซิโทฟีโนนโดยปราศจากการใช้ตัวทำละลาย

Catalysts for acetophenone production without use of solvent

โดย

วิมลรัตน์ ตระการพฤษ์

ภาควิชาเคมี

คณะวิทยาศาสตร์

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

กันยายน พ.ศ. 2553



รายงานการวิจัย

งบประมาณแผ่นดิน ประจำปีงบประมาณ 2553

ตัวเร่งปฏิกิริยาสำหรับการผลิตแอซิโทฟีโนนโดยปราศจากการใช้ตัวทำละลาย

Catalysts for acetophenone production without use of solvent

โดย

วิมลรัตน์ ตระการพฤษ์

ภาควิชาเคมี

คณะวิทยาศาสตร์

จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

กันยายน พ.ศ. 2553



กิตติกรรมประกาศ

ผู้วิจัยขอขอบคุณ นางสาวรางคณา กันจันะ ที่ช่วยในส่วนของการสังเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยา และทดสอบประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา

งานวิจัยนี้ได้รับทุนอุดหนุนการวิจัยจากเงินอุดหนุนทั่วไปจากรัฐบาล ประจำปีงบประมาณ 2553 ผู้วิจัยขอขอบคุณมา ณ ที่นี้

ชื่อโครงการวิจัย ตัวเร่งปฏิกิริยาสำหรับการผลิตแอซิโทฟีโนนโดยปราศจากการใช้ตัวทำละลาย

ชื่อผู้วิจัย รองศาสตราจารย์ ดร. วิมลรัตน์ ตระการพุกภัย

เดือนและปีที่ทำวิจัยเสร็จ กันยายน 2553

บทคัดย่อ

246353

ในงานวิจัยนี้ ได้สังเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยาระบบวิวิธพันธุ์โลหะออกไซด์จากการเผาสารประเภทเลเซอร์ดับเบิลไฮดรอกไซด์ (LDHs) ซึ่งเป็นสารพรีเคอร์เซอร์ที่มีโลหะไอออน (II) เป็น Co, Ni และโลหะไอออน (III) เป็น Al, Cr ตรวจพิสูจน์โครงสร้างด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์แบบผง (XRD) การวัดพื้นที่ผิว BET และอินฟราเรดสเปกโทรสโกปี ทำการทดสอบประสิทธิภาพการเร่งปฏิกิริยาออกซิเดชันของเอทิลเบนซีนในวัฏภาคของเหลวโดยใช้สารออกซิไดซ์เป็นเทอร์เชียรีบิวทิลไฮโดรเปอร์ออกไซด์ (TBHP) และไฮโดรเจนเปอร์ออกไซด์ (H_2O_2) โดยปราศจากการใช้ตัวทำละลาย ผลการทดลองแสดงว่า โลหะออกไซด์เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาที่ดีสำหรับออกซิเดชันของเอทิลเบนซีนไปเป็นแอซิโทฟีโนน ลำดับประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ คือ $Ni_{5,1}Cr\text{-oxide} > Ni_{4,8}Al\text{-oxide} > Co_{4,5}Al\text{-oxide} > Co_{4,8}Cr\text{-oxide} > Ni_{3,1}Al\text{-oxide} \sim Co_{3,3}Al\text{-oxide}$ ขณะที่ลำดับของความเลือกจำเพาะต่อแอซิโทฟีโนน คือ $Ni_{4,8}Al\text{-oxide}, Ni_{3,1}Al\text{-oxide} > Co_{4,5}Al\text{-oxide}, Co_{3,3}Al\text{-oxide} > Co_{4,8}Cr\text{-oxide} > Ni_{5,1}Cr\text{-oxide}$ ภายใต้ภาวะปฏิกิริยา: ตัวเร่งปฏิกิริยา 0.2 กรัม สัดส่วนโดยโมลของ TBHP ต่อเอทิลเบนซีนเท่ากับ 4 อุณหภูมิ $110^{\circ}C$ และเวลาในการทำปฏิกิริยา 9 ชั่วโมง $Ni_{4,8}Al\text{-oxide}$ ให้คอนเวอร์ชัน 98% และความเลือกจำเพาะต่อแอซิโทฟีโนน 98% TBHP เป็นสารออกซิไดซ์ที่ดีกว่า H_2O_2 ตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ทั้งหมดมีความเสถียร และนำมาใช้ใหม่ได้

Project Title Catalysts for acetophenone production without use of solvent

Name of the Investigator Associate Professor Dr. Wimonrat Trakarnpruk

Year September 2010

Abstract

246353

In this research, heterogeneous catalysts, metal oxides were synthesized from calcination of their layered double hydroxides (LDHs) precursors with M (II) = Co, Ni and M(III) = Al, Cr. Structural characterization was done with powder X-ray diffraction (XRD), BET surface area measurement and FT-IR spectroscopy. The catalytic activity of catalysts was conducted in liquid phase oxidation of ethylbenzene with *tert*-butyl hydroperoxide (TBHP) and H₂O₂ as oxidant in the absence of solvent. The results showed that the metal oxides are active catalyst for the oxidation of ethylbenzene to acetophenone. The catalytic activity order of the metal oxides is: Ni_{5.1}Cr-oxide > Ni_{4.8}Al-oxide > Co_{4.5}Al-oxide > Co_{4.8}Cr-oxide > Ni_{3.1}Al-oxide ~ Co_{3.3}Al-oxide whereas the selectivity order is: Ni_{4.8}Al-oxide, Ni_{3.1}Al-oxide > Co_{4.5}Al-oxide, Co_{3.3}Al-oxide > Co_{4.8}Cr-oxide > Ni_{5.1}Cr-oxide. Under the reaction condition of 0.2 g catalyst, TBHP/ethylbenzene molar ratio = 4, temperature at 110°C and reaction time 9 h, the Ni_{4.8}Al-oxide yielded 98 % conversion and 98 % selectivity to acetophenone. TBHP was a better oxidant than H₂O₂. All metal oxides catalysts are stable and reusable.

สารบัญ

	หน้า
กิตติกรรมประกาศ	ii
บทคัดย่อภาษาไทย	iii
บทคัดย่อภาษาอังกฤษ	iv
สารบัญ	v
สารบัญตาราง	vi
สารบัญภาพ	vii
1. บทนำ	1
2. วัตถุประสงค์ของการวิจัย	2
3. การทดลอง	3
3.1 การสังเคราะห์และการพิสูจน์เอกลักษณ์ของตัวเร่งปฏิกิริยา	3
3.2 ตรวจสอบเอกลักษณ์ของตัวเร่งปฏิกิริยา	3
3.3 ทำปฏิกิริยาออกซิเดชันของเอทิลเบนซีน	3
3.4 ตรวจวิเคราะห์ชนิดและปริมาณของผลิตภัณฑ์	4
3.5 ทดสอบการนำกลับมาใช้ใหม่ และเสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา	4
4. ผลการทดลอง	5
4.1 ผลการสังเคราะห์และการพิสูจน์เอกลักษณ์ของตัวเร่งปฏิกิริยา	5
4.2 ผลการทำปฏิกิริยาออกซิเดชันของเอทิลเบนซีน	10
4.3 การทำปฏิกิริยาออกซิเดชันของเอทิลเบนซีนด้วย ไฮโดรเจนเปอร์ออกไซด์	14
4.4 การนำกลับมาใช้ใหม่	15
4.5 เสถียรภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา	15
4.6 กลไกของปฏิกิริยาออกซิเดชัน	15
5. สรุปผลการวิจัย	16
เอกสารอ้างอิง	17

สารบัญตาราง

ตารางที่		หน้า
1	สัดส่วนโดยโมลของโลหะ M^{2+}/M^{3+} ในสาร LDH ที่สังเคราะห์	5
2	อุณหภูมิสลายตัวสาร LDH	6
3	พื้นที่ผิว ปริมาตรช่อง และขนาดเฉลี่ยของช่อง ของสาร	9
4	ผลของออกซิเดชันของเอทิลเบนซีนเมื่อใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาชนิดต่างๆ	11
5	ผลของออกซิเดชันของเอทิลเบนซีนเมื่อใช้สารออกซิไดซ์เป็น H_2O_2	15
6	ผลของออกซิเดชันของเอทิลเบนซีนเมื่อเติม radical trap	16

สารบัญภาพ

รูปที่		หน้า
1	โครงสร้างของ layered double hydroxides (LDH)	2
2	TGA แสดงอุณหภูมิการสลายตัวของสาร (A) CoAl-LDH (B) CoCr-LDH	6
3	สเปกตรัม FT-IR ของ $\text{Ni}_{4.8}\text{Al-LDH}$ และ $\text{Ni}_{4.8}\text{Al-oxide}$	7
4	XRD ของ (A) $\text{Ni}_{3.1}\text{Al-LDH}$ และ (B) $\text{Ni}_{4.8}\text{Al-LDH}$	7
5	XRD ของ (C) $\text{Co}_{3.3}\text{Al-LDH}$ และ (D) $\text{Co}_{4.5}\text{Al-LDH}$	8
6	XRD ของ (A) $\text{Ni}_{3.1}\text{Al-oxide}$ และ (B) $\text{Ni}_{4.8}\text{Al-oxide}$	8
7	XRD ของ (C) $\text{Co}_{3.3}\text{Al-oxide}$ และ (D) $\text{Co}_{4.5}\text{Al-oxide}$	8
8	XRD ของ $\text{Ni}_{5.1}\text{Cr-oxide}$	9
9	XRD ของ $\text{Co}_{4.8}\text{Cr-oxide}$	9
10	Adsorption และ desorption isotherm ของ $\text{Ni}_{4.8}\text{Al-LDH}$	10
11	GC chromatogram ของปฏิกิริยาออกซิเดชันของเอทิลเบนซีน	10
12	ผลของเวลาต่อ %conversion และ %selectivity ต่อเอซีโทฟีโนน	12
13	ผลของปริมาณของตัวเร่งปฏิกิริยาต่อ %conversion และ %selectivity ต่อเอซีโทฟีโนน	12
14	ผลของสัดส่วนโดยโมลของสารออกซิไดซ์ต่อเอทิลเบนซีน (O/S) ต่อ %conversion และ %selectivity	13
15	ผลของอุณหภูมิต่อ %conversion และ %selectivity ต่อเอซีโทฟีโนน	14