แทรนส์เอสเทอริฟิเคชันของน้ำมันปาล์มโดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาอีทีเอส-10 ตัวเร่งปฏิกิริยาอีทีเอส-10 ที่แทนที่ด้วยโลหะเจอมาเนียม และ ตัวเร่งปฏิกิริยาอีทีเอส-10 ที่มีโซเดียม

นางสาวสาธิมา สาระนาค

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาปิโตรเคมี และวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์
คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2549

TRANSESTERIFICATION OF PALM OIL USING ETS-10, ETGeS-10 AND Na-LOADED ETS-10 CATALYSTS

Miss Satima Saranark

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science Program in Petrochemistry and Polymer Science
Faculty of Science
Chulalongkorn University
Academic Year 2006

Thesis Title	TRANSESTERIFICATION OF PALM OIL USING ETS-10, ETGeS-10 AND Na-LOADED ETS-10 CATALYSTS
By	Miss Satima Saranark
Field of Study	Petrochemistry and Polymer Science
Thesis Advisor	Duangamol Nuntasri, Ph.D.
Thesis Co-advisor	Aticha Chaisuwan, Ph.D.

Accepted by the Faculty of Science, Chulalongkorn University in Partial Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree

.....Dean of the Faculty of Science

(Professor Piamsak Menasveta, Ph.D.)

THESIS COMMITTEE

.....Chairman

(Associate Professor Supawan Tantayanon, Ph.D.)

.....Thesis Advisor

(Duangamol Nuntasri, Ph.D.)

.....Thesis Co-advisor

(Aticha Chaisuwan, Ph.D.)

.....Member

(Associate Professor Wimonrat Trakarnpruk, Ph.D.)

.....Member

(Oravan Sanguanruang, Ph.D.)

สาธิมา สาระนาค : แทรนส์เอสเทอริฟิเคชันของน้ำมันปาล์มโดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาอีทีเอส-10 ตัวเร่งปฏิกิริยาอีทีเอส-10 ที่แทนที่ด้วยโลหะเจอมาเนียม และ ตัวเร่งปฏิกิริยาอีทีเอส-10 ที่มีโซเดียม (TRANSESTERIFICATION OF PALM OIL USING ETS-10, ETGeS-10 AND Na-LOADED ETS-10 CATALYSTS) อ. ที่ปรึกษา: ดร. ดวงกมล นันทศรี, อ. ที่ปรึกษาร่วม: ดร. อธิชา ฉายสุวรรณ, 98 หน้า.

ตัวเร่งปฏิกิริยาเอนเกลฮาร์ดทิทาโนซิลิเกต-10 (อีทีเอส-10) สังเคราะห์โดยการตกผลึกที่อุณหภูมิสูง ซึ่งใช้ไทเทเนียมไดออกไซด์ และ คอลลอยดัลซิลิกา หรือ สารละลายโซเดียมซิลิเกต เป็นแหล่งของไทเทเนียมและแหล่งของซิลิกาตามลำดับ ทำการสังเคราะห์โดยปราศจากสารอินทรีย์ต้นแบบและสารก่อผลึก สามารถสังเคราะห์ตัวเร่งปฏิกิริยาอีทีเอส-10 ที่แทนที่ด้วยโลหะเจอมาเนียม (อีทีจีอีเอส-10) ได้โดยตรงที่อัตราส่วนโดยโมลของเจอมาเนียมต่อไทเทเนียม 0.15 ถึง 0.5 นอกจากนั้นตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีการปรับปรุงด้วยเบส สามารถเตรียมด้วยวิธีการแลกเปลี่ยนไอออนและการอิมเพรกเนชันด้วยสารประกอบโซเดียม เพื่อเพิ่มความแรงและตำแหน่งของเบสของตัวเร่งปฏิกิริยา นำผลิตภัณฑ์ที่สังเคราะห์ได้มาตรวจสอบลักษณะเฉพาะด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ กล้องจุลทรรศน์แบบส่องกราด ดิฟฟิวส์รีเฟลกแทนซ์อัลตราไวโอเลต การดายรังสีจากอะตอมโดยใช้พลาสมาเหนี่ยวนำ การดูดกลืนรังสีของอะตอม และการดูดซับแก๊สไนโตรเจน ตัวเร่งปฏิกิริยาที่สังเคราะห์ได้ประกอบด้วยอีทีเอส-10 ที่มีรูปร่างคล้ายสี่เหลี่ยม และขนาดโพรงประมาณ 0.6 นาโนเมตร ปริมาณเจอมาเนียมที่มากเกินไปมีผลให้ทำให้เกิดการสลายตัวของโครงสร้างของตัวเร่งปฏิกิริยา ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมได้ถูกนำไปประยุกต์กับปฏิกิริยาแทรนส์เอสเทอริฟิเคชันของน้ำมันปาล์มกับเมทานอล เพื่อผลิตเมทิลเอสเทอร์ของกรดไขมันหรือไบโอดีเซล ได้ศึกษาผลของภาวะต่างๆเช่น ปริมาณของตัวเร่งปฏิกิริยา อัตราส่วนโดยโมลของเมทานอลต่อน้ำมัน เวลาและอุณหภูมิในการเกิดปฏิกิริยา ได้วิเคราะห์ปริมาณไบโอดีเซลและกลีเซอรอลด้วยเทคนิคแก๊สโครมาโทกราฟี เมื่อใช้อีทีเอส-10ที่ผ่านการแลกเปลี่ยนไอออนและที่ทำอิมเพรกเนชันด้วยสารประกอบโซเดียมเป็นตัวเร่งปฏิกิริยา ได้ปริมาณผลิตภัณฑ์เมทิลเอสเทอร์สูงสุดที่ 77.57% และ 79.80% ตามลำดับ ได้ศึกษาความว่องไวในการเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยาที่ผ่านการใช้งานแล้วและที่ปรับสภาพเหมือนใหม่อีกด้วย

สาขาวิชา ปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์ ลายมือชื่อนิสิต สาธิมา สาระนาค

ปีการศึกษา 2549 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา ดวงกมล นันทศรี

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม อธิชา ฉายสุวรรณ

4772512623: MAJOR PETROCHEMISTRY AND POLYMER SCIENCE
KEY WORD: ETS-10 / ETGeS-10 / TRANSESTERIFICATION / BIODIESEL

SATIMA SARANARK: TRANSESTERIFICATION OF PALM OIL USING ETS-10, ETGeS-10 AND Na-LOADED ETS-10 CATALYSTS. THESIS ADVISOR: DUANGAMOL NUNTASRI, Ph.D. THESIS CO-ADVISOR: ATICHA CHAISUWAN, Ph.D., 98 pp.

Engelhard titanosilicate-10 (ETS-10) was synthesized via hydrothermal crystallization using TiO_2 and colloidal silica or water glass solution as sources of Ti and Si, respectively. The synthesis was performed in the absence of organic template and seeds. Germanium substituted ETS-10 (ETGeS-10) can be directly synthesized at Ge/Ti mole ratio of 0.15 to 0.5. In addition, base-modified ETS-10 was able to be prepared by ion-exchange and impregnation methods with sodium compounds to increase the basic strength and basic site of catalyst. The synthesized products were characterized using XRD, SEM, DR-UV, ICP-AES, AAS and N_2 adsorption techniques. The catalyst consists of ETS-10 with cubic-liked particles and pore size around 0.6 nm. The excess loading of germanium leads to the structural destruction of catalyst. All synthesized products were applied to transesterification reaction of palm oil with methanol to produce fatty acid methyl esters (biodiesel). The various reaction conditions such as catalyst amount, methanol to oil mole ratio including reaction time and temperature were studied. Biodiesel yield and glycerol were analyzed by GC technique. The highest transesterification activity was achieved when the Na-exchanged ETS-10 and Na-impregnated ETS-10 were used as catalyst, the methyl ester yield can be reached to 77.57% and 79.80%, respectively. Moreover, catalytic activities of regenerated and Na-reloaded catalysts were also investigated.

Field of Study Petrochemistry and Polymer Science Student's Signature Satima Saranark
Academic year 2006 Advisor's Signature D. Nuntasri
Co-advisor's Signature A. Chaisuwan

ACKNOWLEDGEMENTS

The success of this thesis can be attributed to the extensive support, valuable suggestion and assistance from my thesis advisor, Dr. Duangamol Nuntasri. I am grateful to my thesis co-advisor, Dr. Athicha Chaisuwan for valuable advice of this research. I deeply thank them for kindness throughout this study.

I would like to give my gratitude to the chairman and member of this thesis committee, respectively, for all of their kindness and useful advice in the research.

I would like to gratefully thank OLEEN, Co., Ltd and C. Thai Chemicals Sodium Silicate Manufacture for supporting the palm oil details and water glass solution, respectively. In addition, I also thank to the financial support from Energy Policy and Planning Office, Ministry of Energy, Thailand with award number 021/2549, Rachadapisek Sompoch Endowment Chulalongkorn University and research grant from the Graduate School. Moreover, I am grateful to Program of Petrochemistry and Polymer Science, Faculty of Science, Chulalongkorn University for the valuable knowledge and experience. I also would like to thank the members of Materials Chemistry and Catalysis Research Unit and my friend for their encouragement and friendship.

Finally, I would like to express my deepest gratitude to my family for their entirely care, understanding and financial support.

CONTENTS

Page

Page

Page

LIST OF FIGURES

Figure **page**

LIST OF SCHEMES

LIST OF TABLES

LIST OF ABBREVIATIONS

Btu	British thermal unit
K	Kelvin
°C	Degree Celsius
μm	Micrometer
nm	Nanometer
rpm	Rounds per minute
ppm	Part per million
M	Molar
Å	Angstrom unit
CCD	Couple charge detector
eV	Electron volt
R.T.	Room temperature
CS	Colloidal silica
WG	Water glass (sodium silicate solution)
XRD	X-ray diffraction
XPS	X-ray photoelectron spectroscopy
DR-UV	Diffuse reflectance-ultraviolet spectroscopy
CO_2-TPD	Carbon dioxide-temperature programmed desorption
NMR	Nuclear magnetic resonance
GC	Gas chromatography
SEM	Scanning electron microscopy
SEM-EDX	Scanning electron microscopy-energy dispersive X-ray fluorescence
ETS-10	Engelhard titanosilicate-10
ETGeS-10	Germanium substituted Engelhard titanosilicate-10
ZSM-5	Zeolite Soconyl Mobil-5
h	Hour or hours
min	Minute or minutes
wt%	Percent by weight
MO	Methyl oleate
MP	Methyl palmitate

ML	Methyl linoleate
MS	Methyl stearate