HYDROGEN PRODUCTION FROM OXIDATIVE STEAM REFORMING OF METHANOL OVER $Au/CeO_2–Fe_2O_3$ CATALYSTS

Umpawan Satitthai

A Thesis Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Master of Science
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma,
Case Western Reserve University, and Institut Français du Pétrole
2012

Thesis Title:	Hydrogen Production from Oxidative Steam Reforming of Methanol over $Au/CeO_2–Fe_2O_3$ Catalysts
By:	Umpawan Satitthai
Program:	Petrochemical Technology
Thesis Advisors:	Assoc. Prof. Apanee Luengnaruemitchai
	Prof. Erdogan Gulari

Accepted by the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, in partial fulfilment of the requirements for the Degree of Master of Science.

..... College Dean

(Asst. Prof. Pomthong Malakul)

Thesis Committee:

.....

(Assoc. Prof. Apanee Luengnaruemitchai)

.....

(Prof. Erdogan Gulari)

.....

(Assoc. Prof. Pramoch Rangsunvigit)

.....

(Assoc. Prof. Vissanu Meeyoo)

ABSTRACT

5371033063: Petrochemical Technology
Umpawan Satitthai: Hydrogen Production from Oxidative Steam Reforming of Methanol over Au/CeO_2–Fe_2O_3 Catalysts
Thesis Advisors: Assoc. Prof. Apanee Luengnaruemitchai, And Prof. Erdogan Gulari
Keywords: Oxidative Steam Reforming/ Methanol/ Gold Catalyst/ Hydrogen Production/ CeO_2–Fe_2O_3

Oxidative steam reforming of methanol (OSRM) over a Au/CeO_2–Fe_2O_3 catalyst prepared by a deposition-precipitation (DP) method was investigated to produce hydrogen for proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) applications. The supports (CeO_2, Fe_2O_3, and CeO_2–Fe_2O_3) were prepared by precipitation and co-precipitation methods. The 3%Au/CF(0.25) exhibited the highest activity under optimum conditions of temperatures from 200 °C to 400 °C. The reduction of Au_xO_y species and the reduction of Fe_2O_3 to Fe_3O_4 of 3%Au/CF(0.25) shifted to a lower temperature, resulting in strong metal-metal and metal-support interactions on the prepared catalysts. In addition, the $O_2/H_2O/CH_3OH$ molar ratio of 0.6/2/1 gave the highest catalytic performance.

บทคัดย่อ

อำพวรรณ สถิตไทย : กระบวนการผลิตก๊าซไฮโดรเจนจากปฏิกิริยาเปลี่ยนรูปเมทานอลด้วยไอน้ำและก๊าซออกซิเจนโดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาทองบนซีเรียออกไซด์และไอรอนออกไซด์ (Hydrogen Production from Oxidative Steam Reforming of Methanol over $Au/CeO_2–Fe_2O_3$ Catalysts) อ. ที่ปรึกษา : รศ. ดร. อาภาณี เหลืองนฤมิตชัย และ ศ. ดร. เออโด แกน กูลารี่

งานวิจัยนี้ศึกษากระบวนการผลิตก๊าซไฮโดรเจนด้วยกระบวนการเปลี่ยนรูปเมทานอลด้วยไอน้ำและก๊าซออกซิเจน โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาทองบนตัวรองรับชนิดซีเรียออกไซด์และไอรอนออกไซด์ ที่เตรียมด้วยวิธีการยึดเกาะควบคู่กับการตกผลึก (Deposition–precipitation) เพื่อนำไปประยุกต์ใช้ใน proton exchange membrane fuel cell (PEMFC) โดยตัวรับรอง (CeO_2, Fe_2O_3, and $CeO_2–Fe_2O_3$) เตรียมด้วยวิธีการตกผลึก ตัวแปรที่ศึกษาที่มีอิทธิผลต่อค่าการเปลี่ยนแปลงของเมทานอล (methanol conversion) เช่น อัตราส่วนโดยโมลของตัวรองรับ อุณหภูมิที่ใช้ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา (calcination temperature) ปริมาณของทองที่ใช้ในการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา และช่วงของอุณหภูมิที่ใช้ในการเกิดปฏิกิริยาในเตาปฏิกรณ์ขนาดเล็ก ผลการศึกษาพบว่าตัวเร่งปฏิกิริยา 3 wt% $Au/CeO_2–Fe_2O_3$ เตรียมที่อุณหภูมิ 300 °C ให้ผลในการเกิดปฏิกิริยาสูงที่สุด ตลอดทุกช่วงอุณหภูมิที่ทดสอบ (200°C ถึง 400 °C) เนื่องจากที่สภาวะนี้มีการยึดเกาะที่แข็งแรงของโลหะกับโลหะ และโลหะกับตัวรองรับ ยิ่งไปกว่านั่นอัตราส่วนโดยโมลของ $O_2/H_2O/CH_3OH$ ที่ 0.6/2/1 เป็นสภาวะที่เหมาะสมที่สุดต่อการเกิดปฏิกิริยาดังกล่าว

ACKNOWLEDGEMENTS

The author gratefully acknowledge for the scholarship and funding of the thesis work provided by the Petroleum and Petrochemical College, and by the Center of Excellence on Petrochemicals and Materials Technology, Thailand.

I would like to thankfulness to my advisors and member group. Especially Assoc. Prof. Apanee Luengnaruemitchai that provides suggestion and gives me an idea to troubleshoot problem, I am so appreciate to intimacy for teaching and helping me to understand and get the knowledge. Also for special senior students in the Petroleum and Petrochemical College, Mr. Phatchanon Pipatpratanporn that I would like to thanks for his kind of teaching and helping in laboratory.

My sincere thank to Assoc. Prof. Pramoch Rangsunvigit and Assoc. Prof. Vissanu Meeyoo for being my thesis committee and comment. And this thesis would not have been possible without the knowledge received from all the lecturers and staffs at the Petroleum and Petrochemical College

Finally, I would like to thanks my family for spirit and finance during my study in the Petroleum and Petrochemical College along two years.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER **PAGE**

CHAPTER **PAGE**

CHAPTER **PAGE**

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**