การแตกตัวของพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นสูงและพอลิโพรพิลีนบนตัวเร่งปฏิกิริยาผสมซีโอไลต์บีตา/อะลูมิเนียมเอชเอ็มเอส

นางสาวนุริยา กาเจ

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์
คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2550
ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

CRACKING OF HIGH DENSITY POLYETHYLENE AND POLYPROPYLENE OVER ZEOLITE BETA/Al-HMS MIXED CATALYSTS

Miss Nuriya Kache

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 2007

Copyright of Chulalongkorn University

501936

Thesis Title	CRACKING OF HIGH DENSITY POLYETHYLENE AND POLYPROPYLENE OVER ZEOLITEBETA/Al-HMS MIXED CATALYSTS
By	Ms. Nuriya Kache
Field of study	Petrochemistry and Polymer Science
Thesis Advisor	Assistant Professor Soamwadee Chaianansutcharit, 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 Supot Hannongbua, Ph.D.)

THESIS COMMITTEE

.....Chairman
(Associate Professor Sirirat Kokpol, Ph.D.)

.....Thesis Advisor
(Assistant Professor Soamwadee Chaianansutcharit, Ph.D.)

.....Thesis Co-Advisor
(Aticha Chaisuwan, Ph.D.)

.....Member
(Associate Professor Wimonrat Trakarnpruk, Ph.D.)

..... External Member
(Assistant Professor Vanchat Chuenchom, Ph D.)

นุริยา กาเจ: การแตกตัวของพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นสูงและพอลิโพรพิลีนบนตัวเร่งปฏิกิริยาผสมซีโอไลต์บีตา/อะลูมิเนียมเอชเอ็มเอส. (CRACKING OF HIGH DENSITY POLYETHYLENE AND POLYPROPYLENE OVER ZEOLITE BETA/Al-HMS MIXED CATALYSTS) อ.ที่ปรึกษา: ผศ. ดร. โสมวดี ไชยอนันต์สุจริต, อาจารย์ที่ปรึกษาร่วม: ดร.อธิชา ฉายสุวรรณ 102 หน้า

ได้ทำการแตกย่อยพลาสติกพอลิโพรพิลีนและพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นสูงด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาผสมซีโอไลต์บีตาและอะลูมิเนียมเอ็ชเอ็มเอส ได้สังเคราะห์ซีโอไลต์บีตาซึ่งมีอัตราส่วนองค์ประกอบโดยโมลในเจลเป็น $1SiO_2$: 0.0083 Al_2O_3: 0.73 TEAOH : 19 H_2O อัตราส่วนซิลิกาต่ออะลูมิเนียมเท่ากับ 60 ตกผลึกด้วยวิธีไฮโดรเทอร์มัลที่อุณหภูมิ 135 °C และอะลูมิเนียมเอ็ชเอ็มเอส มีอัตราส่วนองค์ประกอบโดยโมลในเจลเป็น $1SiO_2$: 0.0125 Al_2O_3: 0.25 HDA: 8.3 EtOH: 100 H_2O ตกผลึกด้วยวิธีโซลเจลที่อุณหภูมิห้อง นำอะลูมิเนียมเอ็ชเอ็มเอส มาทำการบำบัดด้วย แอมโมเนียมคลอไรด์ที่ความเข้มข้น 1 โมลาร์ ที่อุณหภูมิเดือดเป็นเวลา 3 ชั่วโมงเพื่อลดปริมาณอะลูมิเนียมในออกตะฮีดรัล ตรวจสอบตัวอย่างด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์กล้องจุลทรรศน์แบบส่องกราด ไอซีพี-เออีเอส อะลูมิเนียมนิวเคลียร์แมกเนติกเรโซแนนซ์ชนิดสปินมุมเฉพาะ การดูดซับไนโตรเจนและการคายแอมโมเนียโดยใช้อุณหภูมิที่ตั้งโปรแกรม ศึกษาการแตกย่อยของพอลิโพรพิลีนและพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นสูงภายใต้ภาวะที่แตกต่าง เมื่อใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาผสมซีโอไลต์บีตาและอะลูมิเนียมเอ็ชเอ็มเอส ในการแตกย่อย ภาวะที่เหมาะสมสำหรับการแตกย่อยพอลิโพรพิลีนคือ 95%อะลูมิเนียมเอ็ชเอ็มเอส ในตัวเร่งปฏิกิริยาผสม 10%โดยน้ำหนักของตัวเร่งปฏิริยา ที่อุณหภูมิ 380 องศาเซลเซียส ส่วนภาวะที่เหมาะสมสำหรับการแตกย่อยพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นสูง คือ 5%อะลูมิเนียมเอ็ชเอ็มเอส ในตัวเร่งปฏิกิริยาผสม 10%โดยน้ำหนักของตัวเร่งปฏิริยา ที่อุณหภูมิ 410 องศาเซลเซียส การเพิ่มอุณหภูมิจะช่วยเร่งปฏิกิริยาให้เกิดเร็วขึ้น แต่องค์ประกอบของผลิตภัณฑ์ที่ได้ไม่แตกต่างกัน ของเหลวที่ได้จากการแตกย่อยพอลิโพรพิลีนและพอลิเอทิลีนชนิดความหนาแน่นสูงมีช่วงจุดเดือดเดียวกันกับแกโซลีนมาตรฐาน ตัวเร่งปฏิกิริยาผสมที่ใช้งานแล้วสามารถทำให้กลับคืนสภาพเดิมได้ โดยให้ค่าการเปลี่ยนพลาสติกมากกว่าร้อยละ 80 สำหรับ 1-2 ครั้ง ซึ่งเป็นค่าที่ยอมรับได้ อย่างไรก็ตามควรระวังโครงสร้างที่มีรูพรุนขนาดกลางอะลูมิเนียมเอ็ชเอ็มเอสหลังจากนำตัวเร่งปฏิกิริยาที่นำกลับมาใช้ใหม่

สาขาวิชา ปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์ ลายมือชื่อนิสิต.....นุริยา กาเจ.....
ปีการศึกษา.....2550..... ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา.....
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม.....

4872339523: MAJOR PETROCHEMISTRY AND POLYMER SCIENCE
KEYWORD: CRACKING / ZEOLITE BETA/ Al-HMS/ POLYPROPYLENE/ POLYETHYLENE

NURIYA KACHE: CRACKING OF HIGH DENSITY POLYETHYLENE AND POLYPROPYLENE OVER ZEOLITE BETA/Al-HMS MIXED CATALYSTS. THESIS ADVISOR: ASSIST. PROF. Soamwadee Chaianansutcharit, Ph.D. THESIS CO-ADVISOR: ATICHA CHAISUWAN, Ph. D, 102 pp.

PP and HDPE cracking were investigated over zeolite beta/Al-HMS mixed catalysts. Zeolite beta with gel the mole composition of 1SiO_2: 0.0083 Al_2O_3: 0.73 TEAOH : 19 H_2O (Si/Al = 60) were synthesized by hydrothermal crystallization at 135°C whereas Al-HMS with the gel mole composition of 1SiO_2: 0.0125 Al_2O_3: 0.25 HDA: 8.3 EtOH: 100 H_2O were synthesized by sol-gel method and crystallization at room temperature. Octahedral aluminium from Al-HMS was removed by treating with 1M NH_4Cl at boiling temperature for 3 h. The catalysts were characterized by X-ray power diffraction, scanning electron microscope, ICP-AES, ^{27}Al-MAS-NMR, nitrogen adsorption and ammonia-temperature programmed desorption techniques. Catalytic cracking of PP over mixed catalysts between zeolite beta and Al-HMS were studied with various conditions. The optimal condition for PP cracking was 95%Al-HMS in the presence of mixed catalysts, 10%wt catalyst and at the reaction temperature of 380°C whereas for HDPE was 5%Al-HMS in the presence of mixed catalyst, 10%wt catalyst and at the reaction temperature of 410°C. With increasing reaction temperature, degradation rate were faster but the products distribution of gas and liquid fraction were not different. The liquid products had the same boiling point range compared to that of standard gasoline. The regeneration of catalysts was acceptable for 1-2 cycles due to a high conversion of PP and HDPE cracking over 80%. However, the structure of mesoporous Al-HMS should be aware after reusing of catalyst.

Field of study Petrochemistry and Polymer Science. Student's signature Nuriya Kache

Academic year.....2007..... Advisor's signature S. Chaianansutcharit

Co-Advisor's signature A. Chaisuwan

ACKNOWLEDGEMENTS

The success of this thesis can be attributed to the extensive support and assistance from Assistant Professor Soamwadee Chaianansutcharit and Dr. Aticha Chaisuwan, my thesis advisor and thesis co-advisor. I deeply thank them for their valuable advice and guidance in this research and their kindness throughout this study.

I would like to gratitude to Associate Professor Sirirat Kokpol, Associate Professor Wimonrat Trakarnpruk and Assistant Professor Vanchat Chuenchom as 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 PTT Chemical Public Company Limited for supporting the standard mixtures for GC analysis. Moreover, I would like to thank Department of Chemistry and Program of Petrochemistry and Polymer Science, Faculty of Science, Chulalongkorn University for the valuable knowledge and experience. I would like to thank Thailand Japan Technology Transfer Project for supporting instruments. Furthermore, I would like to thank the members of Materials Chemistry and Catalysis Research Unit for generosity.

For all of my friends, I greatly appreciate their help and encouragement throughout the course of my research and study.

CONTENTS

CHAPTER **page**

CHAPTER **page**

Page

LIST OF TABLES

Page

Page

Page

Page

LIST OF SCHEMES

LIST OF ABBREVIATIONS

BET	Brunauer-Emmett-Teller method
HMS	Hexagonal Mesoporous Silica
MCM-41	Mobil's Composite of Matters-41
°C	degree Celsius
GC	gas chromatography
g	gram (s)
h	hour (s)
ICP	Inductively Coupled Plasma Emission
min	minute
SEM	Scanning Electron Microscopy
TPD	Temperature-programmed desorption
XRD	X-ray diffraction