

54404207 : MAJOR : CHEMICAL ENGINEERING

KEY WORDS : FLAME SPRAY PYROLYSIS/ COPPER/ CERIUM/ ALUMINA/  
METHANOL STEAM REFORMING

PAWINEE EAMPRAPI : EFFECT OF CERIUM OXIDE ON  
HYDROGEN PRODUCTION FROM METHANOL USING COPPER-ALUMINA  
AND COPPER-ZINC OXIDE-ALUMINA CATALYST PREPARED BY FLAME  
SPRAY PYROLYSIS. THESIS ADVISOR : ASST. PROF. CHOOWONG  
CHAIKUN, D.ENG. 93 pp.

The performance of Cu-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Cu-ZnO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts with various CeO<sub>2</sub> loading was investigated using the methanol steam reforming (MSR) at 200-350 °C. All the catalysts were prepared by flame spray pyrolysis (FSP) method and characterized by XRD and TPR. The 20Cu-3CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> showed the highest methanol conversion and promoted hydrogen production rate. At CeO<sub>2</sub> loading as 10 wt%, the behavior of MSR reaction could be changed which methanol conversion and hydrogen production rate were decreased. The 20Cu-10CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst exhibits the poorest performance of these catalysts with a maximum methanol conversion of 46%. The presence of CO<sub>2</sub> byproduct indicated that the CeO<sub>2</sub>-containing catalysts favored the methanol steam reforming reaction. Addition of ZnO at low loading (1wt.%), Cu-ZnO-CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst demonstrated much better catalytic performance than those of the catalyst without CeO<sub>2</sub> loading. On the other hand, addition of CeO<sub>2</sub> at high ZnO loading (10wt.%) over Cu-ZnO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> the catalyst behavior became similar to Cu-ZnO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Moreover, for ZnO impregnated on Cu-CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts, the methanol decomposition can be promoted more than the methanol steam reforming.



---

Department of Chemical Engineering

Student's signature .....

Thesis Advisor's signature .....

Graduate School, Silpakorn University

Academic Year 2013

54404207 : สาขาวิชาวิศวกรรมเคมี

คำสำคัญ : เฟลมสเปรย์ไพโรไลซิส/ ทองแดง/ ซีเรียม/ อะลูมินา/ปฏิริยารีฟอร์มมิ่งของเมทานอล  
ด้วยไอน้ำ

ภาวณิ เอี่ยมประไพ : ผลของซีเรียมออกไซด์ที่มีต่อปฏิริยการผลิตไฮโดรเจนจากเมทานอลโดยใช้ตัวเร่งปฏิริยาคอปเปอร์บนอะลูมินาและคอปเปอร์-ซิงค์ออกไซด์บนอะลูมินาซึ่งเตรียมโดยวิธีเฟลมสเปรย์. อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์ : ผศ.ดร.ชวงค์ ชัยสุข. 93 หน้า.

ประสิทธิภาพเชิงเร่งปฏิริยาของคอปเปอร์บนตัวรองรับอะลูมินาและคอปเปอร์-ซิงค์ออกไซด์บนตัวรองรับอะลูมินาที่มีการเปลี่ยนแปลงปริมาณซีเรียมออกไซด์ถูกศึกษาในปฏิริยารีฟอร์มมิ่งของเมทานอลด้วยไอน้ำที่อุณหภูมิ 200-350 องศาเซลเซียส ตัวเร่งปฏิริยาทั้งหมดถูกเตรียมด้วยวิธีเฟลมสเปรย์ไพโรไลซิสและวิเคราะห์คุณลักษณะด้วยวิธีการกระเจิงของรังสีเอกซ์และการวัดการรีดิวซ์แบบโปรแกรมอุณหภูมิ ตัวเร่งปฏิริยา 3 เปอร์เซ็นต์ซีเรียมออกไซด์ที่รวมกับทองแดง 20 เปอร์เซ็นต์บนอะลูมินาแสดงค่าการเปลี่ยนแปลงเมทานอลสูงสุดและส่งเสริมอัตราการผลิตไฮโดรเจน ที่ปริมาณซีเรียมออกไซด์เป็น 10 เปอร์เซ็นต์ พฤติกรรมของปฏิริยารีฟอร์มมิ่งของเมทานอลด้วยไอน้ำถูกเปลี่ยนแปลงซึ่งค่าการเปลี่ยนแปลงเมทานอลและอัตราการผลิตไฮโดรเจนลดลง ตัวเร่งปฏิริยา 10 เปอร์เซ็นต์ซีเรียมออกไซด์ที่รวมกับทองแดง 20 เปอร์เซ็นต์บนอะลูมินาแสดงประสิทธิภาพเชิงเร่งปฏิริยาค่าที่สุดของตัวเร่งปฏิริยาเหล่านี้กับค่าการเปลี่ยนแปลงเมทานอลสูงสุดที่ 46% การมีอยู่ของคาร์บอนไดออกไซด์ซึ่งเป็นผลพลอยได้ ซึ่งชี้ให้เห็นว่าตัวเร่งปฏิริยาที่มีซีเรียมออกไซด์เป็นองค์ประกอบสนับสนุนปฏิริยารีฟอร์มมิ่งของเมทานอลด้วยไอน้ำ การเติมซิงค์ออกไซด์ที่ปริมาณน้อย (1 เปอร์เซ็นต์) คอปเปอร์-ซิงค์ออกไซด์-ซีเรียมออกไซด์บนตัวรองรับอะลูมินาแสดงประสิทธิภาพเชิงเร่งปฏิริยาคือว่าตัวเร่งปฏิริยาที่ไม่มีปริมาณซีเรียมออกไซด์ ในทางตรงกันข้าม การเติมซีเรียมออกไซด์ที่ปริมาณซิงค์ออกไซด์มาก (10 เปอร์เซ็นต์) บนตัวเร่งปฏิริยาคอปเปอร์-ซิงค์ออกไซด์บนตัวรองรับอะลูมินามีพฤติกรรมเหมือนกับคอปเปอร์-ซิงค์ออกไซด์บนตัวรองรับอะลูมินา มากไปกว่านั้น การเคลือบฝังซิงค์ออกไซด์บนคอปเปอร์-ซีเรียมออกไซด์บนตัวรองรับอะลูมินา ส่งเสริมปฏิริยาคีคอมโพสิชันของเมทานอลมากกว่าปฏิริยารีฟอร์มมิ่งของเมทานอลด้วยไอน้ำ

ภาควิชาวิศวกรรมเคมี

บัณฑิตวิทยาลัย มหาวิทยาลัยศิลปากร

ลายมือชื่อนักศึกษา.....

ปีการศึกษา 2556

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์.....

## Acknowledgements

This work was supported by the Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering and Industrial Technology, Silpakorn University for this project are thankfully admitted. In addition, I would like to thank SU Graduate school thesis grant for the financial support.

The author thanks my advisor, Assistant Professor Dr. Choowong Chaisuk, for valuable suggestions, useful discussions on this research to resolve this thesis completed and thank Assistant Professor Dr. Okorn Mekasuwandumrong for suggestions useful in my project. Moreover, I would like to thank Dr. Tarawipa Puangpet who has been the chairman of the committee, Associate Professor Dr. Joongjai Panpranot (members of the Center of Excellence on Catalysis and Catalytic Reaction Engineering, Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Chulalongkorn University), Assistant Professor Dr. Okorn Mekasuwandumrong who have been members of the committee.

Finally, I wish to thanks my family, my friends, member of Chemical Engineering Reaction Laboratory at Silpakorn University for furtherance and support.

