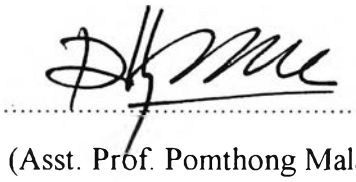
ETHYLENE EPOXIDATION IN A LOW-TEMPERATURE DIELECTRIC BARRIER DISCHARGE SYSTEM: EFFECT OF ELECTRODE GEOMETRY

Natthaworanan Permsin

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
2009

Thesis Title:	Ethylene Epoxidation in a Low-Temperature Dielectric Barrier Discharge System: Effect of Electrode Geometry
By:	Natthaworanan Permsin
Program:	Petrochemical Technology
Thesis Advisors:	Asst. Prof. Thammanoon Sreethawong
	Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej

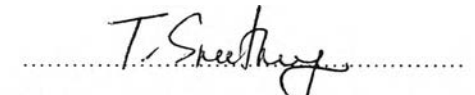
Accepted by the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, in partial fulfilment of the requirements for the Degree of Master of Science.



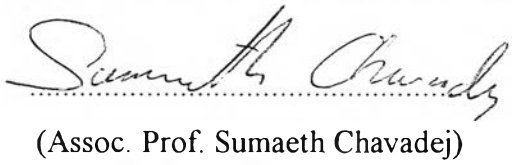
..... Dean

(Asst. Prof. Pomthong Malakul)

Thesis Committee:

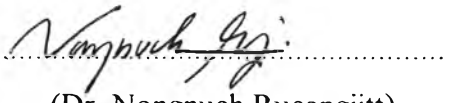


(Asst. Prof. Thammanoon Sreethawong)



(Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej)

(Assoc. Prof. Thirasak Rirksomboon)



(Dr. Nongnuch Rueangjitt)

ABSTRACT

5071014063: Petrochemical Technology Program
Natthaworanan Permsin: Ethylene Epoxidation in a Low-Temperature Dielectric Barrier Discharge System: Effect of Electrode Geometry
Thesis Advisors: Asst. Prof. Thammanoon Sreethawong and Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej, 70 pp.
Keywords: Epoxidation/ Ethylene Oxide/ Dielectric Barrier Discharge

Ethylene oxide is a valuable chemical feedstock in producing many industrial chemicals, such as ethylene glycol, solvents, antifreezes, and adhesives. Hence, the partial oxidation of ethylene to ethylene oxide, so-called ethylene epoxidation, has been of great interest in many global research studies. In this work, the epoxidation of ethylene under a cylindrical dielectric barrier discharge (DBD) reactor was initially studied to find the optimum operating conditions and then was compared with that under a parallel DBD reactor. For the cylindrical DBD system, it was found that the ethylene oxide yield increased with decreasing O_2/C_2H_4 molar ratio, under the O_2-lean condition, and decreasing feed flow rate; however, there were optimum applied voltage and input frequency to obtain the highest ethylene oxide yield. The highest ethylene oxide yield of 2.41% was achieved when an O_2/C_2H_4 molar ratio of 0.25:1 (1:4), an applied voltage of 15 kV, an input frequency of 500 Hz, a feed flow rate of 50 cm^3/min, and electrode gap distance of 5 mm were used. Under these optimum conditions, the power consumption was found to be 12.72×10^{-16} Ws/molecule of ethylene oxide produced. The optimum conditions were used to comparatively investigate the epoxidation performance with the parallel DBD system. It was found that at the optimum conditions, the cylindrical DBD system still exhibited higher epoxidation performance. Therefore, the cylindrical DBD system was found to exhibit a high potential to produce ethylene oxide from ethylene epoxidation reaction.

บทคัดย่อ

ณัฐวรนันท์ เพิ่มสิน: การอีพอกซิเดชันของเอธีลีนภายใต้ระบบพลาสมาอุณหภูมิต่ำชนิดไดอิเล็คทริคแบริเออร์ดิสชาร์จ: ผลของการวางตัวของขั้วไฟฟ้า (Ethylene Epoxidation in a Low-Temperature Dielectric Barrier Discharge System: Effect of Electrode Geometry) อ. ที่ปรึกษา : ผศ. ดร. ธรรมนูญ ศรีทะวงศ์ และ รศ. ดร. สุเมธ ชวเดช 70 หน้า

เอธีลีนออกไซด์เป็นผลิตภัณฑ์ปิโตรเคมีขั้นกลางที่มีบทบาทสำคัญอย่างยิ่งในการผลิตผลิตภัณฑ์อุตสาหกรรมหลากหลายชนิด เช่น เอธีลีนไกลคอล, ตัวทำละลาย, สารต้านการเยือกแข็ง, และสารที่ใช้สำหรับการเชื่อมติด ด้วยเหตุนี้กระบวนการอีพอกซิเดชันของเอธีลีนไปเป็นเอธีลีนออกไซด์ซึ่งเป็นกระบวนการออกซิเดชันที่ไม่สมบูรณ์ของสารอินทรีย์ จึงเป็นกระบวนการที่น่าสนใจอย่างยิ่งสำหรับการศึกษาเพื่อผลิตเอธีลีนออกไซด์อย่างกว้างขวาง ในงานวิจัยนี้กระบวนการอีพอกซิเดชันของเอธีลีนไปเป็นเอธีลีนออกไซด์ถูกทำการทดลองในเครื่องปฏิกรณ์พลาสมาชนิดไดอิเล็คทริคแบริเออร์ดิสชาร์จแบบทรงกระบอกเพื่อศึกษาสภาวะต่างๆที่เหมาะสมในการเกิดปฏิกิริยาเป็นลำดับแรก และทำการเปรียบเทียบประสิทธิภาพกับเครื่องปฏิกรณ์พลาสมาชนิดไดอิเล็คทริคแบริเออร์ดิสชาร์จแบบทรงสี่เหลี่ยมด้านขนาน จากการทดลองพบว่า สำหรับระบบพลาสมาชนิดไดอิเล็คทริคแบริเออร์ดิสชาร์จแบบทรงกระบอก ผลได้ของเอธีลีนออกไซด์เพิ่มขึ้นเมื่อทำการลดอัตราส่วนของออกซิเจนต่อเอธีลีนภายใต้สภาวะขาดแคลนออกซิเจน และลดอัตราการไหลของสารตั้งต้น อย่างไรก็ตาม จากผลทดลองพบอีกว่าค่าความต่างศักย์และค่าความถี่ที่เหมาะสมที่ทำให้ได้ค่าผลผลิตของเอธีลีนออกไซด์สูงที่สุด ซึ่งผลได้ของเอธีลีนออกไซด์มากที่สุดคือ 2.41 เปอร์เซ็นต์ เมื่อใช้อัตราส่วนของออกซิเจนต่อเอธีลีนเป็น 0.25:1 (1:4), ความต่างศักย์ 15 กิโลโวลต์ ค่าความถี่ 500 เฮิรตซ์ ด้วยอัตราไหลของสารตั้งต้นเป็น 50 ลูกบาศก์เซนติเมตรต่อนาที และระยะห่างระหว่างขั้วไฟฟ้า 5 มิลลิเมตร ภายใต้สภาวะที่เหมาะสมดังกล่าว พลังงานที่ใช้ในการผลิตเอธีลีนออกไซด์ เท่ากับ 12.72×10^{-16} วัตต์วินาทีต่อโมเลกุล นอกจากนี้ เมื่อทำการเปรียบเทียบประสิทธิภาพการเกิดปฏิกิริยาอีพอกซิเดชันกับระบบพลาสมาชนิดไดอิเล็คทริคแบริเออร์ดิสชาร์จแบบทรงสี่เหลี่ยมด้านขนาน ผลการทดลองพบว่า ภายใต้สภาวะที่เหมาะสมเครื่องปฏิกรณ์พลาสมาอุณหภูมิต่ำชนิดไดอิเล็คทริคแบริเออร์ดิสชาร์จแบบทรงกระบอกให้ประสิทธิภาพการเกิดปฏิกิริยาอีพอกซิเดชันดีกว่า ดังนั้น ระบบพลาสมาชนิดไดอิเล็คทริคแบริเออร์ดิสชาร์จแบบทรงกระบอกจึงมีศักยภาพสูงสำหรับใช้ในการผลิตเอธีลีนออกไซด์จากปฏิกิริยาอีพอกซิเดชันของเอธีลีน

ACKNOWLEDGEMENTS

This work has been memorable, interesting, and enjoyable experience. This work would not have been possible without the assistance of the following individuals and organization.

First of all, the author would like to thank Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej and Asst. Prof. Thammanoon Sreethawong, who provided useful recommendations, creative comments, and encouragement throughout the course of my research work.

The scholarship and funding of this thesis work were provided by the Ratchadapisek Somphot Endowment Fund, Chulalongkorn University, Thailand; the Sustainable Petroleum and Petrochemicals Research Unit, Center for Petroleum, Petrochemicals, and Advanced Materials, Chulalongkorn University, Thailand; and the Petrochemical and Environmental Catalysis Research Unit under the Ratchadapisek Somphot Endowment Fund, Chulalongkorn University, Thailand.

I deeply appreciate and thank Dr. Nongnuch Rueangjitt, Dr. Siriphong Rojluechai, Mr. Witan Kiatubolpaiboon, Mr. Anothai Tansuwan, and Mr. Thanapoom Suwannabat for their valuable suggestions throughout this research work.

I would like to take this opportunity to thank all of my PPC friends for their friendly assistance, cheerfulness, creative suggestions, and encouragement. I had the most enjoyable time working with all of them.

Finally, I am also greatly indebted to my parents and my family for their support, love, and understanding.

TABLE OF CONTENTS

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**