

ACETYLENE HYDROGENATION ON Pd-Ag/Al₂O₃ CATALYST

Mr. Kornthape Prasirtsiriphan

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment 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
and Case Western Reserve University

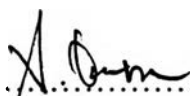
1998

ISBN 974-638-470-8

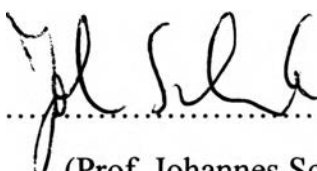
I18134518

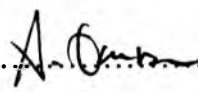
Thesis Title : Acetylene Hydrogenation on Pd-Ag/Al₂O₃ Catalyst
By : Mr. Kornthape Prasirtsiriphan
Program : Petrochemical Technology
Thesis Advisors : Prof. Johannes Schwank
Prof. Somchai Osuwan

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


..... Director of the College
(Prof. Somchai Osuwan)

Thesis Committee


.....
(Prof. Johannes Schwank)


.....
(Prof. Somchai Osuwan)


.....
(Dr. Thirasak Rirksomboon)

ABSTRACT

##961007 : PETROCHEMICAL TECHNOLOGY PROGRAM

KEY WORDS : Palladium-silver catalyst/ Acetylene hydrogenation

Kornthape Prasirtsiriphan : Acetylene Hydrogenation on Pd-Ag/Al₂O₃ Catalyst. Thesis Advisors : Prof. Johannes Schwank, and Prof. Somchai Osuwan, 34 pp. ISBN 974-638-470-8

Acetylene hydrogenation was studied over a Pd-Ag/Al₂O₃ commercial catalyst. The steady state kinetic experiments were conducted in a differential flow-through reactor at 18 kg/cm² (255 psi). Temperature programmed desorption was carried out to check the effect of hydrogen reduction . Tests of external mass transfer limitations were conducted to find the flow rate in the region of no external limitation. The acetylene concentration was varied to study the effect of acetylene concentration on catalyst deactivation. It was found that the degree of deactivation increased with increasing acetylene concentration. In the presence of ethylene, the selectivity increased with acetylene concentration. The effects of temperature and time on catalyst regeneration were also studied. Regeneration was favored by high temperatures but too high a temperature caused a loss of catalyst surface, thus lowered the catalyst activity.

บทคัดย่อ

กรเทพ ประเสริฐศิริพันธ์ : การศึกษาการเกิดปฏิกิริยาไฮโดรจีเนชันของอะเซทิลีนบนตัวเร่งปฏิกิริยาพัลลาเดียมและเงินบนตัวรองรับอลูมินา (Acetylene Hydrogenation on Pd-Ag/Al₂O₃ Catalyst) อ. ที่ปรึกษา : ศ.ดร. โจฮันเนส ชวานค์ (Johannes Schwank) และ ศ.ดร. สมชาย โอสุวรรณ 34 หน้า ISBN 974-638-470-8

งานวิจัยนี้ศึกษาการเกิดปฏิกิริยาไฮโดรจีเนชันของอะเซทิลีนบนตัวเร่งปฏิกิริยาพัลลาเดียมและเงินบนตัวรองรับอลูมินา โดยทำการทดลองที่ความดัน 18 กิโลกรัมต่อตารางเซนติเมตร โปรแกรมการเพิ่มอุณหภูมิเพื่อการหลุดจากผิวดูดซับถูกใช้เพื่อศึกษาผลกระทบของสถานะการเกิดปฏิกิริยารีดักชันของไฮโดรเจน อัตราการไหลรวมของก๊าซถูกนำมาทดสอบเพื่อหาอัตราที่ไม่มีผลต่อข้อจำกัดภายนอก การศึกษาผลกระทบของความเข้มข้นของอะเซทิลีนที่มีต่อการเสื่อมสภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา พบว่าการลดลงของความสามารถในการเกิดปฏิกิริยา (degree of deactivation) เพิ่มขึ้นเมื่อความเข้มข้นของอะเซทิลีนเพิ่มขึ้น และการเลือกผลิตภัณฑ์ของปฏิกิริยาไปเป็นเอทิลีนจะเพิ่มขึ้นตามความเข้มข้นของอะเซทิลีนที่เพิ่มขึ้นในปฏิกิริยาที่มีทั้งอะเซทิลีนและเอทิลีน การนำตัวเร่งปฏิกิริยากลับมาใช้ใหม่จะได้ผลดีเมื่อใช้อุณหภูมิที่สูง แต่อุณหภูมิที่สูงเกินไปอาจจะทำให้เกิดการสูญเสียพื้นที่ผิวของตัวเร่งปฏิกิริยา ทำให้ความสามารถในการเกิดปฏิกิริยาลดลงได้

ACKNOWLEDGMENTS

This thesis could not have been completed without the help of a number of individuals. I would like to thank all of them for making this thesis a success.

I would like to express my special gratitude to Prof. Johannes Schwank, my advisor, for his guidance, suggestions, support and patience from the beginning to the very end of this work. I sincerely thank Prof. Somchai Osuwan, my co-advisor, who gave me invaluable suggestions and support.

Acknowledgment is made to National Petrochemical Public Company, Limited for donating the catalysts used in this thesis.

I greatly appreciate all professors who guided me through their courses establishing knowledge used in this work. I also thank the staff of the Petroleum and Petrochemical College for their assistance.

I would like to express my deepest gratitude to my family who always give me love, support and encouragement.

I simply say thank you to all of my friends who made the two years at the college such a memorable experience. This support and encouragement played an important role in finishing up this work. Most of all, thank you so much for always being there for me when came the hard times.

TABLE OF CONTENTS

	PAGE
Title Page	i
Abstract	iii
Acknowledgments	v
List of Tables	viii
List of Figures	ix
CHAPTER	
I	INTRODUCTION
1.1	General Knowledge 1
1.2	Research Objective 2
II	LITERATURE SURVEY
2.1	Acetylene Hydrogenation 4
2.2	Hydrogen Adsorption on Pd 7
III	EXPERIMENTAL SECTION
3.1	Materials 10
3.2	Catalyst Preparation 11
3.3	Apparatus 11
3.3.1	Gas Blending System 11
3.3.2	Differential Flow Reactor 13
3.3.3	Analytical Instrumentation 13
3.4	Reaction Studies 13

CHAPTER		PAGE
	3.4.1 External Limitation	14
	3.4.2 Deactivation Studies	14
	3.4.3 Acetylene Hydrogenation in the Presence of Ethylene	14
	3.5 Temperature Programmed Desorption (TPD)	15
	3.6 Catalyst Regeneration	15
	3.7 Evaluation of the Experimental Data	16
IV	RESULTS AND DISCUSSION	
	4.1 Reaction Studies	18
	4.1.2 External Limitation	18
	4.1.2 Acetylene Hydrogenation	18
	4.1.3 Acetylene Hydrogenation in the Presence of Ethylene	24
	4.2 Temperature Programmed Desorption (TPD)	24
	4.3 Catalyst Regeneration	28
V	CONCLUSIONS	31
	REFERENCES	32
	CURRICULUM VITAE	34

LIST OF TABLES

TABLE		PAGE
3.1	Catalyst characterization data	10
3.2	Operating conditions for acetylene hydrogenation in the presence of ethylene	15
4.1	Volume-pore size summary by BET method	30

LIST OF FIGURES

FIGURE		PAGE
3.1	Schematic flow diagram of the experimental system	12
4.1	The test of external limitation for acetylene hydrogenation	19
4.2	Deactivation curve for total flow rate dependence of acetylene hydrogenation	20
4.3	Deactivation curve for acetylene dependence of acetylene hydrogenation	21
4.4	The relation between the degree of deactivation and acetylene concentration	22
4.5	Deactivation curve for acetylene dependence of acetylene hydrogenation	23
4.6	The selectivity versus acetylene concentration	25
4.7	The temperature program desorption curve at 15 minutes exposure time	26
4.8	The temperature program desorption curve at 2 hours reduction time	27
4.9	The conversion of acetylene for the cycle runs	29