

## Abstract

---

**Project Code :** TRG5280031

**Project Title :** Development of Hydrogen Production Catalysts Based on Spinel Oxides

**Investigator :** Dr. Kajornsak Faungnawakij

Senior Researcher, National Nanotechnology Center (NANOTEC),

National Science and Technology Development Agency (NSTDA)

**E-mail Address :** Kajornsak@nanotec.or.th

**Project Period :** 16 March 2009 to 16 March 2010

This research is aimed at studying and developing the spinel oxide catalysts for production of hydrogen applicable to fuel cells. We have investigated the structure of the catalyst prepared in sol-gel combustion, the crystal and surface species, influence of reactor configuration, feed rate and ratio of the reactants, namely dimethyl ether (DME; biomass-derived  $H_2$ -resource), steam, and oxygen. The results showed that the well-crystalline spinel was obtained in the range of 20 to 40 nm. Upon activation process, copper and corresponding metal oxide were formed, whilst the oxidation state of the copper was mainly zero and monovalent. With these characteristics combining with their strong chemical interaction and high dispersion, the excellent performance of the spinel catalysts, in terms of activity, selectivity, and stability, was achieved, as compared with conventional  $Cu/ZnO/Al_2O_3$  catalysts. The ratio of steam-to-DME and  $O_2$ -to-DME strongly affected the reformat quality. Typically the higher steam content gave rise to higher quality of  $H_2$ , lower byproduct formation, and good stability of the catalyst, while the higher  $O_2$  content gave the opposite results though improved energy efficiency was obtained.

Although the good experimental was received here, the spinel catalysts still showed extremely low surface area and experience sintering problem. The development of the catalyst into nano-structure, such as nanoporous and nanoparticles, should significantly improve its catalytic performance. The reaction tests under industrial conditions should also be studied in more detail. In summary the developed spinel catalysts exhibited good potential for using in the actual application.

**Keywords :** Spinel oxide catalyst, Nanocomposite, Hydrogen, Dimethyl ether, Copper iron spinel, Reforming, Fuel cell, Biomass

## บทคัดย่อ (ภาษาไทย)

รหัสโครงการ: TRG5280031

ชื่อโครงการ: การพัฒนาตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีโครงสร้างแบบสปีนเนลออกไซด์เพื่อผลิตไฮโดรเจน

ชื่อนักวิจัย: นายจรศักดิ์ เฟื่องนวกิจ

นักวิจัย 2, ศูนย์นาโนเทคโนโลยีแห่งชาติ สำนักงานพัฒนาวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยีแห่งชาติ

E-mail Address : kajornsak@nanotec.or.th

ระยะเวลาโครงการ: 16 มีนาคม พ.ศ. 2552 ถึง 16 มีนาคม พ.ศ. 2553

งานวิจัยนี้ทำการศึกษาและพัฒนาตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีโครงสร้างแบบสปีนเนลออกไซด์เพื่อผลิตไฮโดรเจนในปฏิกิริยาอีฟอรัมมิง โดยมุ่งเน้นการนำไปประยุกต์ใช้งานในเซลล์เชื้อเพลิงตัวแปรที่ศึกษาได้แก่ โครงสร้างของตัวเร่งปฏิกิริยาที่สังเคราะห์จากกระบวนการ sol-gel combustion สมบัติพื้นผิวของตัวเร่งฯ อิทธิพลของโครงสร้างเครื่องปฏิกรณ์ อัตราการไหลและอัตราส่วนของสารตั้งต้น อันได้แก่ ไดเมทิลอีเทอร์ (แหล่งไฮโดรเจนหลักจากชีวมวล) ไอน้ำและออกซิเจน เป็นต้น พบว่า ตัวเร่งปฏิกิริยาสปีนเนลออกไซด์มีขนาดผลึกอยู่ในช่วง 20-40 นาโนเมตร เมื่อเกิดปฏิกิริยาจะเปลี่ยนรูปเป็น โลหะคอปเปอร์และโลหะออกไซด์ โดยคอปเปอร์มีเลขออกซิเดชันบนพื้นผิวเป็น 0 และ +1 เป็นหลัก เมื่อรวมกับการกระจายตัวที่ดีและปฏิสัมพันธ์ทางเคมีระหว่างโลหะคอปเปอร์และโลหะออกไซด์ ทำให้ตัวเร่งปฏิกิริยามีความว่องไวในการเกิดปฏิกิริยาและเสถียรภาพสูงมากเมื่อเทียบกับตัวเร่งปฏิกิริยาทั่วไป เช่น  $\text{Cu/ZnO/Al}_2\text{O}_3$  เป็นต้น นอกจากนี้พบว่า อัตราส่วนของไอน้ำต่อไดเมทิลอีเทอร์ อัตราส่วนของออกซิเจนต่อไดเมทิลอีเทอร์ มีผลอย่างมากต่อคุณภาพของไฮโดรเจนที่ผลิตได้ โดยทั่วไป ไอน้ำที่มากขึ้นจะทำให้อายุการใช้งานของตัวเร่งปฏิกิริยาสูงขึ้น คุณภาพของไฮโดรเจนสูงและมีผลผลิตข้างเคียงต่ำ ในขณะที่เดียวกันออกซิเจนที่มากขึ้นจะให้ผลตรงกันข้ามแม้ว่าค่าประสิทธิภาพทางพลังงานของระบบจะสูงขึ้น

แม้ว่าการทดลองจะแสดงให้เห็นผลการศึกษเบื้องต้นที่ดี ปัญหาเรื่องพื้นที่ผิวที่ต่ำมากและการเกิด sintering ยังเป็นปัญหาสำคัญที่ต้องได้รับการพัฒนาต่อไป การศึกษาโครงสร้างนาโน ได้แก่ รูพรุนนาโน และอนุภาคนาโน น่าจะช่วยเพิ่มประสิทธิภาพของตัวเร่งปฏิกิริยาชนิดนี้ได้อย่างมาก การศึกษาปฏิกิริยาการผลิตไฮโดรเจนในสถานะจริงสำหรับอุตสาหกรรมก็จำเป็นต้องทดลองเพิ่มเติม โดยสรุปตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีโครงสร้างแบบสปีนเนลออกไซด์นี้แสดงให้เห็นความเป็นไปได้สูงที่จะประยุกต์ใช้ได้จริงในอนาคต

คำหลัก : ตัวเร่งปฏิกิริยาสปีนเนลออกไซด์, สารประกอบนาโน, ไฮโดรเจน, ไดเมทิลอีเทอร์, คอปเปอร์ ไอรอน สปีนเนล, รีฟอร์มมิง, เซลล์เชื้อเพลิง, ชีวมวล