

Thesis Title	Preparation and Characterization of Modified Siliceous Material for Dye Removal
Author	Miss Noratep Preechanukul
Degree	Master of Science (Chemistry)
Thesis Advisor	Associate Professor Dr. Surasak Watanesk

ABSTRACT

The adsorption of dyes on the modified siliceous material was study. The modified siliceous materials were prepared via the silylation reaction using two silylating agents, 3-aminopropyltrimethoxysilane and (3-(2-aminoethyl) aminopropyl) trimethoxysilane. From the zeta potential measurement, it was found that surface of the modified silica gels showed their positively charge at pH below 7.7 and 5.3 respectively. Then the chain ending of modified silica gels were changed from primary amine to quaternary ammonium ions to improve the stability of the materials. These immobilized quaternary ammonium ion attachment still showed their positively charged surface in pH range of 3-9.

When the modified silica gels were brought to study their adsorption behavior by using three types of dye with different functional characteristics namely, Acid Blue Dye (AB25), Congo red and Indigo Carmine, it was found that proper times allowed to reach equilibrium for AB25 and Indigo Carmine was 60 minutes and Congo red was 75 minutes. The study of adsorption isotherm of each dye at 30 °C in different initial concentrations showed that the adsorption of each dye on the modified silica gels was a monolayer type. The capacity of dye adsorption on the silica gels modified with 3-aminopropyltrimethoxysilane with converted chain ending (silica 2A) are 295, 188 and 176 $\mu\text{mol/g}$ for AB25, Congo red and Indigo Carmine, respectively.

Whereas, the capacity of these dyes adsorption on the silica gels modified with (3-(2-aminoethyl) aminopropyl)trimethoxysilane (silica 2B) are 363, 204 and 229 $\mu\text{mol/g}$. All types of dyes can be adsorbed on the silica 2A in a less amount than silica 2B due to the difference on the number of functional groups. The structure of dyes was found to have influence with the adsorption. AB25 is the smallest one, it can be adsorbed on the both types of the modified silica gels more than Indigo Carmine and Congo red. The influence of temperature on the adsorption of dyes on silica gel at three different temperatures (30-50 °C) showed large effect on the adsorption of Congo red and AB25 but slight effect for indigo Carmine onto both silica 2A and 2B. The dye-adsorption behavior of the modified silica tended to be the physical-endothermic.

The stability study of the adsorbed dye on the modified silica gels in various media was done. The stability of the adsorbed dyes depended on the type of solvent and the chemical structure of each dye. This study found that acid condition is the most stable condition for adsorbed dye but in basic solution is the opposite. AB25 can be dissolved to methanol more than ethanol, water and dioxane, respectively. Congo red can be leached to methanol more than water, ethanol and dioxane, respectively. For Indigo Carmine, it can be leached more in water than in methanol, ethanol and dioxane, respectively.

The study of dye removal in real dyeing wastewater sample was conducted both in batch and column operations and the removal was accomplished. However, in batch operation, it was found that the TOC value was increased after treatment. In column operation 270 and 320 mL of colorless water were produced when packing the column with the modified silica 2A and 2B, respectively.

ชื่อเรื่องวิทยานิพนธ์

การเตรียมและการหาลักษณะเฉพาะของวัสดุซิลิกาตัดแปรเพื่อ

การกำจัดสีขี้ม

ผู้เขียน

นางสาวนรเทพ ปรีชานุกูล

ปริญญา

วิทยาศาสตรมหาบัณฑิต (เคมี)

อาจารย์ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์

รองศาสตราจารย์ ดร. สุรศักดิ์ วัฒนศักดิ์

บทคัดย่อ

ได้ทำการศึกษาการดูดซับสีขี้มด้วยวัสดุซิลิกาตัดแปรที่เตรียมจากปฏิกิริยาไฮโดรเลชันโดยใช้ซิลิเลตติงเอเจนต์ 2 ชนิด ได้แก่ 3-อะมิโนโพรพิลไตรเมทอกซีไซเลน และ (3-(2-อะมิโนเอทิล)อะมิโนโพรพิล)ไตรเมทอกซีไซเลน จากการศึกษาเพื่อดูประจุมิติผิวของซิลิกาพบว่า ซิลิกาตัดแปรดังกล่าวมีประจุมิติผิวเป็นบวกที่พีเอชต่ำกว่า 7.7 และ 5.3 ตามลำดับ จากนั้นได้ทำการเปลี่ยนหมู่ฟังก์ชันที่ผิวซิลิกาตัดแปรจากไพรมารีเอมีนเป็นควอเตอร์นารีแอมโมเนียมไอออนเพื่อให้มีความเสถียรมากยิ่งขึ้น พบว่าซิลิกาตัดแปรที่ได้มีความเป็นบวกในช่วงพีเอช 3-9.

เมื่อนำซิลิกาตัดแปรที่ได้มาศึกษาพฤติกรรมดูดซับสี 3 ชนิดที่มีหมู่ฟังก์ชันต่างกัน ได้แก่ สีอะซิติก (AB25), คองโกเรด และ อินดิโกคาร์มีน พบว่าต้องใช้เวลาในการดูดซับ 60 นาที สำหรับ AB25 และอินดิโกคาร์มีน และ 70 นาทีสำหรับคองโกเรด จึงจะถึงสมดุล การศึกษาไอโซเทอมของการดูดซับของแต่ละชนิดที่ 30 องศาเซลเซียส โดยใช้ความเข้มข้นเริ่มต้นต่างกัน พบว่าการดูดซับของแต่ละสีบนผิวซิลิกาตัดแปรเป็นแบบชั้นเดียว และความจุของการดูดซับของสี AB25, คองโกเรด และ อินดิโกคาร์มีนบนผิวของซิลิกาตัดแปรด้วย 3-อะมิโนโพรพิลไตรเมทอกซีไซเลนที่เปลี่ยนสภาพปลายสายโซ่ (ซิลิกา 2A) มีค่าเท่ากับ 298, 188 และ 176 ไมโครโมลต่อกรัมซิลิกา

ตามลำดับ ขณะที่ความจุของการดูดซับสีดังกล่าวบนผิวของซีลิกาที่ตัดแปรด้วย (3-(2-อะมิโนเอทิล)อะมิโนโพรพิล)ไตรเมทอกซีไซเลนที่เปลี่ยนสภาพปลายสายโซ่ (ซีลิกา 2B) มีค่า 363, 204 และ 229 ไมโครโมลต่อกรัมซีลิกา ซีลิกา 2A จะดูดซับสีทุกชนิดได้น้อยกว่าซีลิกา 2B เนื่องจากจำนวนหมู่ฟังก์ชันที่ต่างกัน โครงสร้างโมเลกุลของสีมีผลต่อการดูดซับ พบว่า AB25 ซึ่งมีขนาดเล็กที่สุดสามารถดูดซับบนซีลิกาตัดแปรทั้งสองชนิดได้ดีกว่าอินดิโกคาร์มีน และคองโกเรด ผลของอุณหภูมิที่มีต่อการดูดซับที่ 30-50 องศาเซลเซียส แสดงให้เห็นว่าอุณหภูมิมีผลต่อการดูดซับของคองโกเรด และ AB25 แต่มีผลน้อยต่อการดูดซับของอินดิโกคาร์มีนทั้งบนซีลิกา 2A และ 2B พฤติกรรมการดูดซับสีของซีลิกาตัดแปรมีแนวโน้มว่าเป็นการดูดซับทางกายภาพ และเป็นปฏิกิริยาดูดความร้อน

จากการศึกษาความเสถียรของสีที่ดูดซับอยู่บนผิวซีลิกาตัดแปรเมื่ออยู่ในตัวทำละลายชนิดต่างๆ พบว่าความเสถียรของสีที่ดูดติดขึ้นอยู่กับชนิดของตัวทำละลาย และโครงสร้างทางเคมีของสีแต่ละตัว โดยสีทุกตัวจะเสถียรที่สุดเมื่ออยู่ในสารละลายกรด และเสถียรน้อยที่สุดในสารละลายเบส AB25 สามารถละลายออกมาในเมทานอล ได้มากกว่าในเอทานอล, น้ำ และ ไดออกเซน ขณะที่คองโกเรดจะละลายออกมาในเมทานอล ได้ดีกว่าในน้ำ, เอทานอล และ ไดออกเซน สำหรับอินดิโกคาร์มีนจะถูกชะด้วยน้ำได้ดีกว่าเมทานอล, เอทานอล และ ไดออกเซน

เมื่อทำการศึกษากำจัดสีในน้ำตัวอย่างจากโรงงานย้อมผ้าทั้งระบบเบทซ์และระบบคอลลัมน์พบว่าสามารถกำจัดสีได้ แต่อย่างไรก็ตามเมื่อนำน้ำตัวอย่างที่ผ่านการกำจัดสีในระบบเบทซ์ไปวิเคราะห์ค่าคาร์บอนอินทรีย์รวมพบว่ามีค่าเพิ่มขึ้นจากเดิม ในการบำบัดโดยใช้คอลลัมน์ ที่บรรจุด้วยซีลิกา 2A และ 2B สามารถกำจัดสีในน้ำตัวอย่างได้ 270 และ 320 มิลลิลิตรตามลำดับ