SYNTHESIS AND ACTIVITY OF Ti-Fe-SBA-15 FROM SILATRANE

Ratchadaporn Kaewmuang

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,
and Case Western Reserve University
2014

Thesis Title:	Synthesis and Activity of Ti-Fe-SBA-15 from Silatrane
By:	Ratchadaporn Kaewmuang
Program:	Polymer Science
Thesis Advisors:	Assoc. Prof. Sujitra Wongkasemjit
	Asst. Prof. Thanyalak Chaisuwan

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

..... College Dean
(Asst. Prof. Pomthong Malakul)

Thesis Committee:

..... (Assoc. Prof. Sujitra Wongkasemjit)

..... (Asst. Prof. Thanyalak Chaisuwan)

..... (Asst. Prof. Hathaikarn Manuspiya)

..... (Asst. Prof. Bussarin Ksapabutr)

ABSTRACT

5572018063: Polymer Science Program
Ratchadaporn Kaewmuang: Synthesis and Activity of Ti-Fe-SBA-15 from Silatrane.
Thesis Advisors: Assoc. Prof. Sujitra Wongkasemjit and Asst. Prof. Thanyalak Chaisuwan 78 pp.
Keywords: Silatrane/ SBA-15/ Bimetallic/ Iron/ Titanium/ Phenol hydroxylation/ Sol-gel process

Monomeric- and bimetallic-incorporated SBA-15 (Fe-SBA-15, Ti-SBA-15 and 0.01Fe-0.01Ti-SBA-15) were successfully synthesized via sol gel process at room temperature in highly acidic condition using silatrane, ferric chloride and titanium isopropoxide as a silica, iron, and titanium sources, respectively, Pluronic 123 as template. It was found that from SAXS patterns and Fe-SEM images all samples maintained their 2D hexagonal mesoporous structure. The result from N_2 adsorption-desorption measurement showed type (IV) isotherm with H1 hysteresis loop and uniform pores as well as high surface area (631–763 m^2/g), pore volume (0.621-0.971 cc/g), and large pore size (3.93–5.21 nm). DR-UV spectra confirmed the metal incorporation with no extraframework. Its catalytic activity was studied for phenol hydroxylation using H_2O_2 as oxidizing agent and showed that the highest phenol conversion at 37.96% with 100% selectivity of benzoquinone was obtained when using 1:1 molar ratio of phenol/H_2O_2 and 30 mg of 0.01Fe-0.01Ti-SBA-15 at 30 °C for 20 min.

บทคัดย่อ

รัชดาภรณ์ แก้วเมือง: ศึกษาการสังเคราะห์และการเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยา Ti-Fe-SBA-15 จากไซลาเทรน (Synthesis and Activity of Ti-Fe-SBA-15 from Silatrane) อาจารย์ที่ปรึกษา: รศ.ดร. สุจิตรา วงศ์เกษมจิตต์ และ ผศ.ดร. ธัญลักษณ์ ฉายสุวรรณ์ 78 หน้า

ตัวรองรับซิลิกาชนิด SBA-15 ที่มีการเติมโลหะเดี่ยวและโลหะผสม (Fe-SBA-15, Ti-SBA-15 and 0.01Fe-0.01Ti-SBA-15) สามารถสังเคราะห์ได้ผลอย่างดี โดยใช้กระบวนการโซลเจลที่อุณหภูมิห้องในสภาวะที่เป็นกรดแก่ ซึ่งใช้ไซลาเทรน, เฟอร์ริคคลอไรด์, และไททาเนียมไอโซโพรพ็อกไซด์ เป็นแหล่งของซิลิกา, เหล็กและไททาเนียม ตามลำดับ, ใช้ พลูโรนิค 123 เป็นตัวแม่แบบ จากการวิเคราะห์ด้วยเครื่องมือ เอ็กซเรย์สแกตเตอร์ริ่งชนิดสมอลแองเกิล (SAXS) และกล้องจุลทรรศน์อิเลคตรอนแบบส่องกราด (FESEM) พบว่า สารที่สังเคราะห์ได้ทุกตัวนั้นสามารถรักษาโครงสร้างที่มีรูพรุนขนาดกลางแบบหกเหลี่ยมสองมิติได้ และจากการวิเคราะห์ด้วยการดูดซับและการคายของก๊าซไนโตรเจนพบว่า สารที่สังเคราะห์ได้นั้นจัดอยู่ในไอโซเทอมประเภทที่สี่ชนิดเฮชหนึ่ง ซึ่งมีรูพรุนที่สม่ำเสมอ และมีพื้นที่ผิวสูง (631-763 ตารางเมตรต่อกรัม) โดยมีปริมาตรของรูพรุนที่สูง (0.621-0.971 ลูกบาศก์เซนติเมตรต่อกรัม) และมีรูพรุนขนาดใหญ่ (3.93-5.21 นาโนเมตร) ผลจากการวิเคราะห์ด้วยเครื่อง DR-UV ยืนยันได้ว่ามีโลหะอยู่เฉพาะแต่ในโครงสร้างของตัวรองรับ SBA-15 จากการศึกษาผลของการเร่งปฏิกริยาฟีนอลไฮดร็อกซีเลชั่น โดยใช้ไฮโดรเจนเปอร์ออกไซด์เป็นตัวออกซิเด้นท์ นั้น พบว่า สารรองรับ SBA-15 ที่มีการเติมโลหะผสม (0.01Fe-0.01Ti-SBA-15) สามารถเปลี่ยนฟีนอลเป็นผลิตภัณฑ์ได้มากสุดถึง 37.96 เปอร์เซนต์ โดยมีความสามารถในการเลือกจำเพาะของเบนโซควีโนนถึง 100 เปอร์เซ็นต์ เมื่อใช้ตัวเร่งนี้ในปริมาณ 30 มิลลิกรัม ทำปฏิกริยาที่อุณหภูมิ 30 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 20 นาที และใช้อัตราส่วนโดยโมลต่อลิตรระหว่างฟีนอลต่อไฮโดรเจเปอร์ออกไซด์ที่หนึ่งต่อหนึ่ง

ACKNOWLEDGMENTS

First of all, I would like to thank to my advisor, Assoc. Prof. Sujitra Wongkasemjit, who not only gave me a great opportunity to do a challenging research about the catalyst, but also taught me how to manage myself for solving the problem in the real situation. I would have not succeeded if I do not have her motivation, understanding, good advice, trusting in me and precious encouragement when I was in a big trouble. I really appreciate it and it will be one of my best memories in my life. Moreover, I would like to give special thanks to Asst. Prof. Thanyalak Chaisuwan, my co-adviser, Asst. Prof. Hathaikarn Manuspiya, and Asst. Prof. Bussarin Ksapabutr for kindly being dissertation committees, making valuable comments, and suggestions.

I am grateful for the scholarship and funding of the thesis work provided by The Petroleum and Petrochemical College; Chulalongkorn University; Thailand and The Center of Excellence on Petrochemical and Materials Technology, Thailand. All PPC's officers are appreciated for helping and facilitating me until I achieved this work.

I would like to thank all of my PPC's friends who continuously supported and encouraged me when I was in tough situations. I had the valuable and cheerful time when I worked with them.

Most of all, I would like to express my thankfulness to my family for their understanding, encouragement, support, limitless sacrifice, and advice, as always.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER PAGE

CHAPTER **PAGE**

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**