ZEOLITE SYNTHESIS DIRECTLY FROM ALUMATRANE AND SILATRANE VIA SOL-GEL PROCESS AND MICROWAVE TECHNIQUE

Ms. Mathavee Sathupunya

A Dissertation Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Doctor of Philosophy
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma,
and Case Western Reserve University
2002

ISBN 974-17-1367-3

Thesis Title	:	Zeolite Synthesis Directly from Alumatrane and Silatrane via Sol-Gel Process and Microwave Technique
By	:	Ms. Mathavee Sathupunya
Program	:	Polymer Science
Thesis Advisors	:	Assoc. Prof. Sujitra Wongkasemjit Prof. Erdogan Gulari

---

Accepted by the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, in partial fulfilment of the requirements for the Degree of Doctor of Philosophy

Kunchana Bunyakiat.
..... College Director

(Assoc. Prof. Kunchana Bunyakiat)

Thesis Committee:

Kunchana Bunyakiat.
.....

(Assoc. Prof. Kunchana Bunyakiat)

Sujitra Wongkasemjit
.....

(Assoc. Prof. Sujitra Wongkasemjit)

Erdogan Gulari
.....

(Prof. Erdogan Gulari)

.....

(Prof. Somchai Osuwan)

.....

(Assoc. Prof. Jumras Limtrakul)

บทคัดย่อ

นาง มาธาวี สาธุปัญญา: การสังเคราะห์ ซีโอไลท์ จากสารตั้งต้น อลูมาเทรน และ ไซลาเทรน ที่สังเคราะห์ได้ โดยผ่านกระบวนการโซล-เจล และการให้ความร้อนภายใต้ความดันโดยใช้ไมโครเวฟ เป็นแหล่งกำเนิดความร้อน (Zeolite Synthesis Directly from Alumatrane and Silatrane by Sol-Gel Process and Microwave Heating Technique) อ. ที่ปรึกษา: ผศ. ดร. สุจิตรา วงศ์เกษมจิตต์ และ ศ. ดร. เออร์โดแกน กูลารี 192 หน้า ISBN 974-17-1367-3

รายงานวิจัยฉบับนี้ได้กล่าวถึงความสำเร็จในการสังเคราะห์ ซีโอไลท์ หรือ โครงสร้างผลึกของ อลูมิโนซิลิเกต จาก สารตั้งต้น อลูมาเทรน และ ไซลาเทรน โดยกระบวนการ โซล-เจล และ การตกผลึกภายใต้อุณหภูมิและความดัน โดยในการทดลองนี้ ได้ใช้ คลื่นไมโครเวฟ เป็นแหล่งกำเนิดพลังงานความร้อน และใช้ สารละลายด่าง ของสารจำพวกโลหะแอลคาไลด์ เป็นตัวทำให้เกิดปฏิกิริยา ไฮโดรไลซิส ซึ่งอัตราการเกิดปฏิกิริยาโดยการใช้สารละลาย จำพวกแอลคาไลด์ด่างนั้นจะเร็วกว่าประมาณสองเท่าของการใช้สารละลายจำพวกเกลือแกง อุณหภูมิที่ใช้ในการสังเคราะห์สารจำพวกซีโอไลท์ ในตัวกลางที่เป็นด่างแต่ละชนิดนั้นไม่เท่ากัน ในตัวกลางที่เป็นสารละลายด่างของโพแทสเซียม จะเกิดที่อุณหภูมิสูง และต้องการพลังงานที่สูงกว่าสารละลายด่างของโซเดียม และลิเทียม ตามลำดับ ผลึกที่ได้นั้นจะมีลักษณะรูปร่างที่สมบูรณ์และมีขนาดใกล้เคียงกัน การเปลี่ยนแปลงอัตราส่วนต่างๆ มีผลทั้งต่อ รูปร่าง ชนิด และขนาดของผลผลิตที่ได้ เช่น การเปลี่ยนแปลงชนิดของสารละลายด่าง มีผลต่อ ชนิด รูปร่าง อุณหภูมิ และ ระยะเวลาของการสร้างผลึกแต่ละชนิด หรือ การเปลี่ยนแปลงอัตราส่วนของ ซิลิกา และ อลูมินา ก็มีผลต่อทั้งชนิดและรูปร่างของผลึกที่ได้เช่นกัน การเปลี่ยนแปลงความเข้มข้นของสารละลายด่าง จะมีผลต่อระยะเวลาการเกิดผลึกและรูปร่างของผลึก ในขณะที่การเปลี่ยนแปลงอัตราส่วนของน้ำ จะมีผลต่อขนาดและรูปร่าง ซึ่งเกิดเนื่องมาจากผลของการเกิดจำนวนผลึกตัวล่อที่ลดลง อันเป็นผลจากการเจือจางของสารละลายทั้งหมดที่ใช้ในการสังเคราะห์

ABSTRACT

4192001063 : POLYMER SCIENCE PROGRAM
Ms. Mathavee Sathupunya: Zeolite Synthesis Directly from Alumatrane and Silatrane via Sol-Gel Process and Microwave Technique
Thesis Advisors: Assoc. Prof. Sujitra Wongkasemjit and Prof. Erdogan Gulari, 192 pp.
ISBN 974-17-1367-3
Keywords : Zoelite synthesis/ Sol-Gel process/ Atranes/ Microwave preparation

Zeolites or crystalline aluminosilicate are successfully synthesized directly from alumatran and silatrane by sol-gel process using metal hydroxide: lithium, sodium or potassium hydroxide as hydrolytic agent and hydrothermal crystallization using microwave-heating technique. Hydrolysis rate in the sodium hydroxide system is approximately two times faster than that of sodium chloride system and crystallization occurred only in alkali base solution. For each metal hydroxide system, temperatures using for transforming to crystalline aluminosilicate are different. Potassium hydroxide system requires higher energy orderly as measured by DSC, and temperature than sodium and lithium hydroxide. Different hydrolytic agent resulted in different crystal, microwave heating temperature and time. Pure and nice crystal products are obtained with small particle size distribution. Varying Si:Al ratio mostly affected the type and morphology of synthesized product while varying metal hydroxide concentration mostly affected reaction time and crystal morphology. In case of lithium hydroxide, its concentration also influences on the type of synthesized product. Increasing water content ratio reduces the overall concentration and rate of nuclei generation.

ACKNOWLEDGMENTS

This acknowledgment is gratefully made to Thailand Research Fund, the author's sponsor for providing her a chance to get Royal Golden Jubilee Scholarship to continue her Ph.D. study including doing her research work at University of Michigan, USA.

The author greatly appreciates her research advisors for originating this dissertation work and giving her a chance in doing this job. She would like to give her special and sincere thanks to Assoc. Prof. Sujitra Wongkasemjit, her advisor for advising, criticizing and proofreading on all of her works, manuscripts and dissertation. She also appreciates for her inspiring, suggesting, helping and encouraging on her works. She also would like to give her best regard to Prof. Erdogan Gulari, her co-advisor for his advice, criticism and proofreading through out her works and for his best help, support and cooperation on everything, especially when she was in the University of Michigan, USA.

She would like to give a special thank to all of master and Ph.D. students for their valuable friendship, all of PPC staffs for their laboratory and official supports and all lecturers for their encouragement and cheerfulness.

She would like to express her thankfulness to her truly belove family, especially her mother, Asst. Prof. Surang, and her father, Asst. Prof. Netr Suwankrughasn, for their love, understanding, encouragement, well supporting, limitless sacrifice and advice, and well effort whenever she needs.

She also would like to deliver her grateful thank to her husband, Mr. Prinya Sathupunya, for his love and being beside her all the time. Finally she would like to thank herself for keeping high passion and never giving up on anything.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER **PAGE**

CHAPTER PAGE

CHAPTER **PAGE**

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES

FIGURE **PAGE**

Chapter II

FIGURE **PAGE**

Chapter III

FIGURE **PAGE**

Chapter IV

FIGURE **PAGE**

Chapter V

FIGURE **PAGE**

Chapter VI

FIGURE **PAGE**

Chapter VII

FIGURE **PAGE**

FIGURE **PAGE**