

วิณา รองจะโปะ : การกำจัดพาราควอทและสารมลพิษอื่นด้วยการดูดซับและการเร่งปฏิกิริยาเชิงแสง (REMOVAL OF PARAQUAT AND OTHER POLLUTANTS BY ADSORPTION AND PHOTOCATALYSIS) อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร. จตุพร วิทยาคูณ, 167 หน้า.

เป้าหมายหลักของงานวิทยานิพนธ์นี้คือการศึกษากำจัดสารกำจัดศัตรูพืชที่ใช้อย่างแพร่หลายในจังหวัดนครราชสีมา ได้แก่ พาราควอทและอิมิดาคลอพริด จากสารละลายโดยการดูดซับและการเร่งปฏิกิริยาเชิงแสง นอกจากนี้ ได้ขยายขอบเขตการศึกษาไปยังการกำจัดของสารมลพิษอื่น ๆ ที่มีประจุบวกคล้ายกับพาราควอท สารที่มีประจุลบและสารประกอบที่เป็นกลางโดยใช้ไททาเนียมไดออกไซด์ ( $\text{TiO}_2$ ) ที่รองรับด้วยรีดิวซ์กราฟีนออกไซด์ (rGO)

ซิลิกาจากแกลบ (RHS) ซีโอไลต์ NaY ซีโอไลต์ NaX ซีโอไลต์ NaBEA MCM-41 และ Al-MCM-41 เป็นตัวดูดซับในการดูดซับของพาราควอทและอิมิดาคลอพริด การดูดซับของพาราควอทเกิดผ่านการแลกเปลี่ยนของไอออนบวก ค่าความจุในการดูดซับอยู่ในลำดับต่อไปนี้: NaY > NaBEA > MCM-41 > RHS เพื่อเพิ่มขีดความสามารถในการดูดซับ โดยใช้ตัวดูดซับที่มีปริมาณของ Al ในโครงสร้างที่สูงขึ้น ได้ศึกษาทั้งการดูดซับบนซีโอไลต์ NaX ซึ่งมีปริมาณของ Al ในโครงสร้างที่สูงกว่าในซีโอไลต์ NaY และ Al-MCM-41 ผลเป็นไปตามคาดหวังคือ การดูดซับบน Al-MCM-41 สูงกว่า MCM-41 อย่างไรก็ตาม ค่าความจุการดูดซับของ NaX ยังต่ำกว่าของ ซีโอไลต์ NaY จากการวิเคราะห์ลักษณะของ NaY และ NaX ทั้งก่อนและหลังดูดซับด้วยเทคนิคต่างๆ พบว่า โซเดียมไอออนในซีโอไลต์ NaX มีอันตรกิริยาที่แข็งแกร่งกับประจุลบที่อยู่ในโครงข่ายทำให้แลกเปลี่ยนไอออนได้น้อยลง

ในการสลายตัวด้วยการเร่งปฏิกิริยาเชิงแสงของพาราควอท ซีโอไลต์ NaY และ RHS เป็นตัวรองรับสำหรับตัวเร่งปฏิกิริยา  $\text{TiO}_2$  และมีปริมาณ  $\text{TiO}_2$  10 และ 30% โดยน้ำหนัก โดยเตรียมจากการใช้โซลของ  $\text{TiO}_2$  ตัวเร่งปฏิกิริยาเชิงแสง  $\text{TiO}_2/\text{NaY}$  มีประสิทธิภาพต่ำ เนื่องจากดูดซับพาราควอทได้มาก ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยาเชิงแสงที่มี RHS เป็นตัวรองรับสามารถสลายพาราควอทได้ดี ความสามารถในการสลายลดลงตามลำดับต่อไปนี้: 30 % $\text{TiO}_2/\text{RHS}$  >  $\text{TiO}_2$  > 10 % $\text{TiO}_2/\text{RHS}$

การศึกษากำจัดอิมิดาคลอพริดด้วยการดูดซับของ RHS NaY และ Al-MCM-41 และการสลายด้วยตัวเร่งปฏิกิริยาเชิงแสงของ 30 % $\text{TiO}_2/\text{NaY}$  และ 30 % $\text{TiO}_2/\text{RHS}$  การดูดซับไม่ได้เป็นวิธีการกำจัดที่เหมาะสม เนื่องจากอิมิดาคลอพริดจากตัวดูดซับ ถูกเคลื่อนย้ายกลับไปในสารละลายหลังจากเวลา 30 นาที สำหรับการสลายอิมิดาคลอพริดพบว่า อิมิดาคลอพริดถูกสลายได้ด้วยแสงและตัวเร่งปฏิกิริยาเชิงแสง โดยที่  $\text{TiO}_2/\text{NaY}$  และ  $\text{TiO}_2/\text{RHS}$  มีประสิทธิภาพใกล้เคียงกัน

อีกส่วนหนึ่งของงานวิจัยนี้คือการปรับปรุงการเร่งปฏิกิริยาเชิงแสงของ  $\text{TiO}_2$  ทางการค้า (P25) ด้วย rGO สำหรับการสลายสารมลพิษอินทรีย์ การศึกษาแบ่งออกเป็นสองส่วน ในส่วนแรกศึกษาผลการเร่งปฏิกิริยาเชิงแสงของ 1%rGO/P25 ในสารมลพิษอินทรีย์สามกลุ่ม ได้แก่ กลุ่มของประจุลบ ประจุบวก และสารมลพิษที่เป็นกลาง rGO/P25 ทั้งหมด มีผลการเร่งปฏิกิริยาสำหรับออกซิเดชันเชิงแสงไม่ดีกว่า P25 ในส่วนที่สองทำการศึกษาประสิทธิภาพของ rGO/P25 โดยปริมาณ rGO แตกต่างกัน (1-10% โดยน้ำหนัก) ในการสลาย  $\text{CCl}_4$  และการผลิต  $\text{H}_2$  ผ่านปฏิกิริยารีดักชันและการสลายเมทิลีนบลู ผ่านปฏิกิริยาออกซิเดชัน rGO/P25 ทั้งหมดเป็นตัวเร่งปฏิกิริยาที่ดีกว่า P25 สำหรับปฏิกิริยารีดักชัน อย่างไรก็ตาม P25 เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาเชิงแสงที่เป็นออกซิเดชันที่ดีที่สุดสำหรับการสลายเมทิลีนบลู ที่ความเข้มข้นเมทิลีนบลูสูง เนื่องจากการแข่งขันการใช้อิเล็กตรอนไฮดรอกซิล ระหว่างการสลายเมทิลีนบลู และ rGO



สาขาวิชาเคมี

ปีการศึกษา 2558

ลายมือชื่อนักศึกษา \_\_\_\_\_

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา \_\_\_\_\_

WINA RONGCHAPO : REMOVAL OF PARAQUAT AND OTHER  
POLLUTANTS BY ADSORPTION AND PHOTOCATALYSIS  
THESIS ADVISOR : ASSOC. PROF. JATUPORN WITTAYAKUN,  
Ph.D. 167 PP.

ZEOLITE NaY/ZEOLITE NaX/RHS/MCM-41/Al-MCM-41/TITANIUM DIOXIDE/  
PARAQUAT/ADSORPTION/PHOTOCATALYSIS

The main goal of this thesis was to study removal of pesticides from aqueous solution including paraquat and imidachloprid which are widely used in Nakhon Ratchasima by adsorption and photocatalysis. The study was also extended to the removal of other pollutants with positive charge similar to paraquat, negative charge and neutral compounds using titanium dioxide (TiO<sub>2</sub>) supported on reduce graphene oxide (rGO).

On the adsorption of paraquat and imidacloprid, the adsorbents were rice husk silica (RHS), zeolite NaY, NaX, NaBEA, MCM-41 and Al-MCM-41. The adsorption of paraquat occurred through cation exchange. The adsorption capacities were in the following order: NaY > NaBEA > MCM-41 > RHS. To increase the adsorption capacity, adsorbents with higher Al contents were studied including NaX which had a higher Al content than NaY and Al-MCM-41. As expected, the adsorption on Al-MCM-41 was higher than MCM-41 but the capacity on NaX was lower than NaY. The bare and paraquat containing zeolites (NaY and NaX) were characterized by several techniques. Sodium ion in NaX had a stronger interaction with the framework negative charge, making it less exchangeable with paraquat.

On the photocatalytic degradation of paraquat,  $\text{TiO}_2$  was dispersed on zeolite NaY and RHS with 10 and 30 wt. % by grafting with  $\text{TiO}_2$  sol. The NaY-supported catalysts showed low activity due to paraquat high adsorption. The degradation ability on RHS-supported ones decreased in the following order: 30 % $\text{TiO}_2$ /RHS > unsupported  $\text{TiO}_2$  > 10 % $\text{TiO}_2$ /RHS.

The removal of imidacloprid was studied by adsorption on RHS, NaY and Al-MCM-41 and photocatalysis with 30% $\text{TiO}_2$ /NaY and 30% $\text{TiO}_2$ /RHS. The adsorption was not the appropriate removal method because imidacloprid from the adsorbent was transferred back to the solution after 30 min. Imidacloprid was degradable under light and photocatalysts where  $\text{TiO}_2$ /NaY and  $\text{TiO}_2$ /RHS showed similar activity.

The last part focused on improvement of commercial  $\text{TiO}_2$  (P25) by rGO for photocatalytic degradation of organic pollutants. The study was divided into two parts. In the first part, rGO/P25 with 1 wt. % of rGO was tested for three groups of organic pollutants including anionic, cationic and neutral pollutants. The rGO/P25 did not show higher photooxidation than P25. In the second part, the activity of rGO/P25 was investigated with varying the rGO content (1-10 wt. %) for  $\text{CCl}_4$  degradation and  $\text{H}_2$  production via reduction and the methylene blue degradation via oxidation. All rGO/P25 catalysts exhibited higher performance than P25 for the reduction. However, P25 was the best oxidation photocatalyst at high methylene blue concentration probably due to competition to use  $\text{OH}\cdot$  between degradation of methylene blue and rGO.

School of Chemistry

Student's Signature \_\_\_\_\_

Academic Year 2015

Advisor's Signature \_\_\_\_\_