วรพจน์ อินทร์ถมยา : ผลของหมู่ฟังก์ชันและจุดชำรุดบนพื้นผิวของตัวดูดซับคาร์บอนต่อการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์และมีเทน (EFFECTS OF FUNCTIONAL GROUP AND DEFECTIVE SURFACE OF CARBON ADSORBENTS ON ADSORPTION OF CARBON DIOXIDE AND METHANE) อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร.อติชาต วงศ์กอบลาภ, 134 หน้า.

วิทยานิพนธ์นี้มีวัตถุประสงค์เพื่อศึกษาถึงผลของหมู่ฟังก์ชันและจุดชำรุดบนพื้นผิวของถ่านกัมมันต์และท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวต่อการดูดซับแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์และมีเทน โดยทำการศึกษาไอโซเทิร์มการดูดซับทั้งในส่วนของการทดลองและการจำลองด้วยคอมพิวเตอร์ ถ่านกัมมันต์ที่ใช้ในการศึกษาผลิตจากเม็ดลำไย ซึ่งแบ่งเป็นสองชนิด คือถ่านกัมมันต์ที่ผ่านและไม่ผ่านการปรับปรุงพื้นผิวด้วยการเพิ่มหมู่ฟังก์ชัน ส่วนท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวทางการค้าที่ใช้มีสามชนิดคือ ท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวที่ไม่ได้ปรับปรุงพื้นผิว และท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวที่มีการเติมหมู่ฟังก์ชันคาร์บอกซิลและไฮดรอกซิลตามลำดับ ในการจำลองด้วยคอมพิวเตอร์ ตัวดูดซับถ่านกัมมันต์ถูกจำลองผนังเป็นแผ่นแกรไฟต์สองแผ่นขนานกัน ผนังแต่ละแผ่นประกอบด้วยชั้นแกรไฟต์สามชั้นรูปสี่เหลี่ยมจัตุรัสขนาด 60 Å ระยะห่างระหว่างผนังแต่ละด้านแทนขนาดรูพรุนตั้งแต่ 6.5 ถึง 30 Å พื้นผิวถ่านจำลองแตกต่างกันสองแบบคือ พื้นผิวแกรไฟต์แบบสมบูรณ์และแบบที่มีจุดชำรุด โดยในส่วนของท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวจะถูกจำลองเป็นแผ่นแกรไฟต์ที่ม้วนเป็นท่อทรงกระบอกจำนวนเจ็ดท่อโดยมีท่อหนึ่งท่ออยู่ตรงกลางและท่อที่เหลือหกท่ออยู่ในตำแหน่งมุมของรูปทรงหกเหลี่ยม (hexagonal) เพื่อทำการศึกษาพฤติกรรมการดูดซับแก๊สที่เปลี่ยนแปลงไปตามการเปลี่ยนแปลงของขนาดท่อและช่องว่างระหว่างท่อ

สำหรับการทดลองในห้องปฏิบัติการทดลองดูดซับแก๊สด้วยเครื่อง Intelligent Gravimetric Analyzer (IGA) ที่อุณหภูมิ 273 และ 300 K โดยปรับความดันแก๊สในระบบจาก 5 ถึง 5,000 mbar โดยทำการศึกษาการดูดซับแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์หรือมีเทนบริสุทธิ์และแก๊สผสมทั้งสองที่อัตราส่วนโดยปริมาตรเท่ากัน ในส่วนของการศึกษาด้วยคอมพิวเตอร์จะใช้แบบจำลอง Grand Canonical Monte Carlo (GCMC) ซึ่งผลที่ได้จากการทดลองและจากแบบจำลองจะถูกนำมาวิเคราะห์ถึงพฤติกรรมและกลไกการดูดซับของแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์และมีเทนในรูพรุนที่มีพื้นผิวแตกต่างกัน นอกจากนี้แบบจำลองการดูดซับแก๊สในรูพรุนขนาดต่าง ๆ ที่ได้ ยังสามารถนำมาใช้ในการทำนายหาการกระจายขนาดรูพรุนของถ่านกัมมันต์และท่อนาโนคาร์บอนได้

จากการศึกษาการดูดซับแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์และมีเทนในถ่านกัมมันต์และท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวในการทดลองพบว่า คาร์บอนไดออกไซด์สามารถดูดซับได้ดีกว่ามีเทนเนื่องจาก

โครงสร้างโมเลกุลและลักษณะแรงยึดเหนี่ยวที่แตกต่างกัน ซึ่งจะเห็นได้ชัดเจนขึ้นในผลการทำนายการดูดซับแก๊สผสมด้วยวิธี IAST ที่คาร์บอนไดออกไซด์จะถูกดูดซับในสัดส่วนที่สูงกว่ามีเทนอย่างเห็นได้ชัด ตัวดูดซับที่ผ่านการปรับปรุงพื้นผิวจนมีหมู่ฟังก์ชันเพิ่มขึ้นจะสามารถดูดซับแก๊สได้ดีกว่า การดูดซับแก๊สในถ่านกัมมันต์จะเกิดขึ้นได้ดีกว่าในท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวที่อุณหภูมิและความดันเดียวกัน การดูดซับแก๊สในการศึกษานี้เป็นการดูดซับทางกายภาพที่เมื่ออุณหภูมิสูงขึ้นแก๊สจะถูกดูดซับได้น้อยลง

ในส่วนของพฤติกรรมและกลไกการดูดซับของแก๊สทั้งสองชนิดในถ่านกัมมันต์และมัดท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวที่ได้จากแบบจำลองคอมพิวเตอร์พบว่า การดูดซับในรูพรุนขนาดเล็กจะเกิดขึ้นได้เร็วกว่ารูพรุนขนาดใหญ่ อีกทั้งการดูดซับแก๊สในถ่านกัมมันต์ที่มีพื้นผิวสมบูรณ์จะเกิดได้ดีกว่าในพื้นผิวชำรุดที่ความดันในช่วงเริ่มแรกแต่เมื่อความดันเพิ่มสูงขึ้นปริมาณการดูดซับแก๊สในพื้นผิวชำรุดจะมีค่าสูงกว่าอันเกิดจากโมเลกุลแก๊สเข้าไปบรรจุอยู่ในบริเวณช่องว่างของพื้นผิวที่เสียหายได้มากขึ้น และในส่วนของการดูดซับแก๊สในท่อนาโนคาร์บอนผนังเดี่ยวในแบบจำลองพบว่าท่อนาโนคาร์บอนที่มีขนาดเล็กจะเกิดการดูดซับได้เร็วกว่าในท่อนาโนคาร์บอนขนาดใหญ่ และหากช่องว่างระหว่างท่อมีขนาดเล็ก การดูดซับจะเกิดขึ้นที่ภายนอกท่อก่อนอันเป็นผลมาจากแรงยึดเหนี่ยวระหว่างโมเลกุลของแก๊สกับพื้นผิวดูดซับที่สูงในท่อขนาดเล็กและช่องว่างระหว่างท่อที่แคบกว่า จากการเปรียบเทียบผลการทดลองและแบบจำลองปรากฏว่าไอโซเทิร์มการดูดซับจากแบบจำลองมีความสอดคล้องกันดีกับผลที่ได้จากการทดลอง การศึกษานี้จะช่วยให้เข้าใจพฤติกรรมการดูดซับของแก๊สได้ดียิ่งขึ้น เข้าใจถึงผลของความไม่สม่ำเสมอของพื้นผิวต่อการดูดซับ และประโยชน์ของการใช้แบบจำลองในการศึกษาการดูดซับแก๊ส

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

สาขาวิชา วิศวกรรมเคมี ลายมือชื่อนักศึกษา อรพรรณ อินทรโสมดา

ปีการศึกษา 2560 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา

WORAPOJ INTHOMYA: EFFECTS OF SURFACE FUNCTIONALITY AND DEFECT OF CARBON ADSORBENTS ON ADSORPTION OF CARBON DIOXIDE AND METHANE. THESIS ADVISOR: ASST. PROF. ATICHAT WONGKOBLAP, Ph.D., 134 PP.

ADSORPTION/FUNCTIONAL GROUPS/DEFECT/GCMC SIMULATION

This thesis aimed to study the effects of surface functionality and defect of activated carbon and single-walled carbon nanotube on the adsorption of carbon dioxide, methane and their binary mixture. This research was carried out both experimental and simulation studies. For experiment, Longan seed activated carbon (LAC) prepared in our laboratory has been used in two forms, original (LACO) and modified surface (LACM). While the commercial single-walled carbon nanotubes (SWCNT) used in this study are unmodified SWCNT, nanotubes with carboxyl group (SWCNT-COOH) and that with hydroxyl group (SWCNT-OH). For molecular simulation study, activated carbon is assumed to be a parallel pair of finite length wall with perfect and defective surface, each wall composed of three graphene layers while carbon nanotubes are assumed to be seven cylinders in a bundle, each cylinder composes of one graphene layer. The experimental isotherms are obtained by using the Intelligent Gravimetric Analyzer (IGA) at 273 and 300 K. For simulation, a Grand Canonical Monte Carlo (GCMC) simulation is used to study the adsorption isotherm of CO_2 and CH_4 in any solid model and then simulation results will be compared with the experimental data by using optimization function from MATLAB code to characterize the adsorbent and also checking the agreement between experiment and simulation.

From experiments, the adsorption ability of CO_2 and CH_4 in modified surface adsorbents with functional group is higher than that on original adsorbents and adsorbed amount of these gases in activated carbons is also higher than that in single-walled carbon nanotubes. For simulation study, the adsorption density occurred at lower pressures in narrow pore widths. It was found that gases molecules are able to adsorb on perfect surface better than that on the defective surface during initial pressure range. Then, pore density on defective surface is greater at higher pressures. For gases adsorbed in carbon nanotubes bundle, CO_2 and CH_4 shows greater adsorption capacity if the adsorption take places in narrow tube size and the tube wall distance due to the greater interaction between fluid and carbon atoms.

Finally, the result of pore characterization of each adsorbent and adsorption isotherms obtained from simulation are in good agreement with experimental data. The outcome of this study yields better understanding of surface heterogeneity on the adsorption behavior.

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

School of Chemical Engineering

Academic Year 2017

Student's Signature Worapoj Inthomya

Advisor's Signature