ภาณุวัฒน์ ลอแท : วิธีการกระตุ้นทางกายภาพแบบใหม่สำหรับการผลิตถ่านกัมมันต์ไมโครพอรัสและเมโซพอรัสที่มีคุณสมบัติความพรุนสูง (AN INNOVATIVE PHYSICAL ACTIVATION METHOD FOR PRODUCING MICROPOROUS-MESOPOROUS ACTIVATED CARBON WITH HIGH POROUS PROPERTIES) อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร. อติชาต วงศ์กอบลาภ, 217 หน้า.

คำสำคัญ : วิธีการกระตุ้นใหม่เชิงกายภาพ; ถ่านกัมมันต์; การกระจายขนาดรูพรุน; เมล็ดลำไย; คาร์บอนเจล; ไมโครพอรัส-เมโซพอรัสคาร์บอน; จลนพลศาสตร์ของแก๊สซิฟิเคชัน; การดูดซับ

วิทยานิพนธ์ฉบับนี้เสนอแนวทางใหม่ในการควบคุมรูพรุนขนาดกลางในถ่านกัมมันต์ที่เตรียมจากเมล็ดลำไยโดยใช้กระบวนการต่อเนื่องของการออกซิไดซ์ถ่านด้วยอากาศเพื่อสร้างหมู่ฟังก์ชันที่พื้นผิว การทำลายหมู่ฟังก์ชันด้วยความร้อน และ การกระตุ้นด้วยแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ ซึ่งเรียกว่าวิธี OTA การเตรียมถ่านกัมมันต์ด้วยเทคนิคนี้สามารถผลิตถ่านกัมมันต์ที่มีรูพรุนสูงและมีสัดส่วนของรูพรุนขนาดกลางที่สูงกว่าเมื่อเทียบกับวิธีการกระตุ้นทางกายภาพแบบสองขั้นตอน วิทยานิพนธ์ฉบับนี้ประกอบด้วยงานหลายส่วน ได้แก่ การเตรียมถ่านกัมมันต์ การศึกษาการดูดซับแก๊สและการพัฒนารูพรุนโดยใช้แบบจำลอง GCMC และ การประยุกต์ใช้ถ่านกัมมันต์ที่ผลิตได้ในกระบวนการดูดซับ

วิธี OTA ประกอบด้วยสามขั้นตอนต่อเนื่องกันคือ (1) การออกซิไดซ์ด้วยอากาศของไมโครพอรัสคาร์บอนเพื่อเพิ่มหมู่ฟังก์ชันบนพื้นผิวของคาร์บอน (2) การทำลายหมู่ฟังก์ชันด้วยความร้อนในบรรยากาศของแก๊สเฉื่อยที่อุณหภูมิสูง เพื่อทำลายพันธะเคมีของหมู่ฟังก์ชันนำไปสู่การเพิ่มจำนวนของอิเล็กตรอนอิสระซึ่งช่วยเพิ่มความว่องไวต่อการเกิดปฏิกิริยาแก๊สซิฟิเคชันบนพื้นผิวของรูพรุนขนาดเล็กที่มีอยู่ก่อน และ (3) การกระตุ้นด้วยแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ของคาร์บอนที่ผ่านการบำบัดด้วยความร้อน เพื่อสร้างรูพรุนขนาดเล็กและรูพรุนขนาดกลางในปริมาณที่มากขึ้น การวิเคราะห์การพัฒนารูพรุนของถ่านกัมมันต์ที่เตรียมได้โดยใช้แบบจำลอง GCMC ที่มีข้อบกพร่องบนพื้นผิวคาร์บอนเผยให้เห็นว่าการใช้วิธี OTA ในการผลิตถ่านกัมมันต์จะช่วยเพิ่มรูพรุนขนาดกลางโดยการขยายรูพรุนขนาดเล็กซึ่งเป็นผลมาจากความว่องไวในการเกิดปฏิกิริยาของรูพรุนขนาดเล็กที่เพิ่มขึ้นสำหรับปฏิกิริยาแก๊สซิฟิเคชัน นอกจากนี้ยังได้ศึกษาเทคนิคที่คล้ายคลึงกันกับวิธี OTA โดยการออกซิไดซ์ถ่านเมล็ดลำไยล่วงหน้าก่อนที่จะกระตุ้นด้วยแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ซึ่งพบว่าเทคนิคนี้สามารถเพิ่มอัตราการเกิดปฏิกิริยาแก๊สซิฟิเคชันของถ่านเมล็ดลำไยได้เป็นอย่างมากเมื่อเทียบกับถ่านที่ไม่ได้ผ่านออกซิไดซ์ด้วยอากาศ

ถ่านกัมมันต์ที่ผลิตจากวิธีการกระตุ้นทางกายภาพแบบสองขั้นตอนมีการกระจายตัวของขนาดรูพรุนส่วนใหญ่อยู่ในช่วงขนาด 0.65 ถึง 1.4 นาโนเมตร และ 3 ถึง 4 นาโนเมตร ในขณะที่

ถ่านกัมมันต์ที่ผลิตจากวิธี OTA มีการกระจายตัวของขนาดรูพรุนส่วนใหญ่อยู่ในช่วงขนาด 0.65 ถึง 1.4 นาโนเมตร และ 2 ถึง 3 นาโนเมตร จากการใช้งานถ่านกัมมันต์ในการศึกษาการดูดซับของเมทิลีนบลูออกจากสารละลาย พบว่าปริมาณเมทิลีนบลูที่ถูกดูดซับเพิ่มขึ้นตามระยะเวลาการดูดซับและพื้นที่ผิวของถ่านที่เพิ่มขึ้น ค่าการแพร่เชิงรูพรุนเฉลี่ยของถ่านที่เตรียมจากวิธี OTA มีค่าประมาณ 11.8 $\times 10^{-7}$ ตร. ซม./วินาที ซึ่งมีค่ามากกว่าถ่านที่เตรียมจากวิธีการกระตุ้นแบบสองขั้นตอนอย่างมีนัยสำคัญ ถ่านกัมมันต์ที่เตรียมจากวิธี OTA ซึ่งมีพื้นที่ผิวสูงสุดสามารถดูดซับเมทิลีนบลูได้สูงสุดประมาณ 1,000 มก./ก.

นอกจากนี้ยังมีการประยุกต์ใช้วิธี OTA กับคาร์บอนเจลเพื่อปรับปรุงคุณสมบัติรูพรุน จากการศึกษาพบว่าถ่านกัมมันต์ที่สังเคราะห์ด้วยวิธี OTA ช่วยปรับปรุงคุณสมบัติรูพรุนของคาร์บอนเจลให้สูงขึ้นมากเมื่อเปรียบเทียบกับถ่านกัมมันต์ที่เตรียมด้วยวิธีการกระตุ้นแบบดั้งเดิมภายใต้สภาวะการกระตุ้นเดียวกัน คุณสมบัติรูพรุนสูงสุดที่สังเคราะห์โดยใช้วิธี OTA ของปริมาตรรูพรุนขนาดเล็กคือ 1.19 ลบ.ซม./ก. ปริมาตรรูพรุนขนาดกลางคือ 1.81 ลบ.ซม./ก. และ พื้นที่ผิว 2,920 ตร.ม./ก. (การเผาไหม้ของคาร์บอน 72%) การเพิ่มคุณสมบัติรูพรุนของถ่านกัมมันต์ที่เตรียมโดยวิธี OTA นั้นเกิดจากผลของขั้นตอนการออกซิเดชันและการบำบัดด้วยความร้อนที่สามารถสร้างตำแหน่งการเกิดปฏิกิริยาได้เป็นจำนวนมากจึงนำไปสู่การพัฒนารูพรุนตลอดกระบวนการการกระตุ้นด้วยแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ได้อย่างมีประสิทธิภาพ

มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีสุรนารี

สาขาวิชาวิศวกรรมเคมี
ปีการศึกษา 2565

ลายมือชื่อนักศึกษา .....
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา .....
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม .....

PANUWAT LAWTAE : AN INNOVATIVE PHYSICAL ACTIVATION METHOD FOR PRODUCING MICROPOROUS-MESOPOROUS ACTIVATED CARBON WITH HIGH POROUS PROPERTIES. THESIS ADVISOR : ASSOC. PROF. ATICHAT WONGKOBLAP, Ph.D., 217 PP.

Keywords : Novel activation method; Activated carbon; Pore size distribution; Longan seed; Carbon gels; Microporous-mesoporous carbons; Gasification kinetics; Adsorption

In this thesis, a new approach was proposed for controlling mesoporosity in activated carbon from longan seed by the consecutive process of carbon char oxidation with air to form surface functional groups, thermal destruction of the functional groups, and carbon activation with CO_2, being called as the OTA method. The preparation technique was able to produce highly porous activated carbons with a higher proportion of mesopore volume, as compared to the conventional two-step activation method. This thesis work consisted of several tasks, including the preparation of activated carbon, the study of gas adsorption and pore development by GCMC simulation, and the applications of the produced activated carbons in adsorption processes.

The OTA method consisted of three consecutive steps: (1) air oxidation of an initial microporous carbon to introduce additional oxygen-containing functional groups, (2) thermal destruction of the existing functional groups in an inert atmosphere at a high temperature to disrupt the chemical bonds of those functional groups, leading to an increase in the number of unpaired electrons which enhances the reactivity of pre-existing micropore surfaces, and (3) activating the heat-treated carbon with CO_2 to create increasing amounts of both micropores and mesopores. The analysis of pore development in the prepared microporous-mesoporous activated carbon based on GCMC simulation and a surface defect model revealed that the use of the OTA method increased the mesopore volume by the widening of the reactive micropores by gasification reaction. By employing a similar technique to the OTA method, the pre-oxidation of longan-seed char prior to CO_2 activation could increase the gasification rate of the char substantially, as compared to the non-oxidized char.

Microporous and mesoporous activated carbons were produced from the longan fruit seeds by the conventional activation method and the OTA method, respectively. The analysis of pore size distributions in activated carbons via the GCMC simulation indicated that most pores consisted of micropores in the size range of 0.65–1.4 nm and mesopores in the size range of 3–4 nm, with mesopore volume concentrating in the smaller mesopore size range of 2–3 nm for the OTA-carbons. For the study on the removal of methylene blue (MB) from an aqueous solution, it was found that the amount of MB adsorbed increased with the increase in the adsorption time and the carbon surface area. The average pore diffusivity of the mesoporous-activated carbon was about an order of magnitude larger than that of the microporous-activated carbon, with a value of 11.8×10^{-7} cm^2/s. The mesoporous-activated carbon produced by the OTA method having the highest surface area yielded the maximum MB adsorption capacity of about 1000 mg/g carbon.

The OTA method was used to improve the porous properties of mesoporous carbon produced from carbon gels. The findings showed that the activated carbons derived from the OTA procedure provided improved porous properties of activated carbon gels when compared with those prepared through the traditional activation method under the same activation conditions. Under the best preparation conditions, the maximum values of micropore volume, mesopore volume, and BET surface area achievable using the OTA method were 1.19 cm^3/g, 1.81 cm^3/g, and 2,920 m^2/g, respectively, at a 72% carbon burn-off. The large increase in the porous properties of activated carbon gels prepared by the OTA method was attributed to the incorporation of the oxidation and heat treatment steps that could produce a larger number of reaction sites, hence promoting pore development over the course of the gasification process.

School of Chemical Engineering
Academic Year 2022

Student's Signature .....
Advisor's Signature .....
Co-advisor's Signature .....