



บทความวิจัย

งานประชุมวิชาการทางวิศวกรรมเคมีและเคมีประยุกต์แห่งประเทศไทย ครั้งที่ 26 (TichE2016)

ผลของการเติมโลหะชนิดทองแดงและเหล็กบนซีโอไลต์ Y ต่อประสิทธิภาพการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์

พัชรินทร์ วรณกุล* และ พีรดาพันธุ์ สายสุวัฒน์สิริ

ภาควิชาวิศวกรรมเคมี คณะวิศวกรรมศาสตร์ มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีพระจอมเกล้าพระนครเหนือ

* ผู้นิพนธ์ประสานงาน โทรศัพท์ 0-2555-2000 ต่อ 8242 อีเมล: patcharin.w@eng.kmutnb.ac.th DOI: 10.14416/j.kmutnb.2018.03.016

รับเมื่อ 1 มิถุนายน 2560 ตอรับเมื่อ 30 สิงหาคม 2560 เผยแพร่ออนไลน์ 29 มีนาคม 2561

© 2018 King Mongkut's University of Technology North Bangkok. All Rights Reserved.

บทคัดย่อ

ความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ที่เพิ่มขึ้นอย่างรวดเร็วส่งผลให้บรรยากาศของโลกร้อนขึ้น งานวิจัยนี้ศึกษาการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ รวมทั้งศึกษาปริมาณโลหะและสถานะที่เหมาะสมจากการสังเคราะห์ซีโอไลต์ชนิด Y ที่ใช้ซีโอไลต์ชานอ้อยเป็นแหล่งซิลิกาแทนโซเดียมซิลิเกต จากผลการเติมโลหะทองแดงและเหล็กบนซีโอไลต์ด้วยวิธีการจุ่มชุบแบบเปียกเพิ่มประสิทธิภาพการดูดซับ พบว่าที่อุณหภูมิ 300°C ซีโอไลต์ชนิด 5.5 wt.%Cu/Zeolite Y สามารถดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ได้ 67.06 เปอร์เซ็นต์ และซีโอไลต์ชนิด 1 wt.%Fe/Zeolite Y ดูดซับได้ 61.14 เปอร์เซ็นต์ และเมื่อศึกษาการเติมโลหะทั้ง 2 ชนิด ซีโอไลต์ 5.5wt%Cu-1wt%Fe/Zeolite Y สามารถดูดซับได้มากถึง 82.40 เปอร์เซ็นต์ ซึ่งมีประสิทธิภาพดีที่สุด และการศึกษาสถานะการดูดซับที่อุณหภูมิ 100, 300 และ 600°C พบว่าที่ 100°C มีแนวโน้มในการดูดซับดีที่สุด

คำสำคัญ: ซีโอไลต์ Y, เทคนิควิธีจุ่มชุบแบบเปียก, การดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์, ทองแดง, เหล็ก

การอ้างอิงบทความ: พัชรินทร์ วรณกุล และ พีรดาพันธุ์ สายสุวัฒน์สิริ, “ผลของการเติมโลหะชนิดทองแดงและเหล็กบนซีโอไลต์ Y ต่อประสิทธิภาพการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์,” *วารสารวิชาการพระจอมเกล้าพระนครเหนือ*, ปีที่ 28, ฉบับที่ 2, หน้า 373-381, เม.ย.-มิ.ย. 2561.

Effect of Copper and Iron Loading on Zeolite Y for Carbon Dioxide Adsorption

Patcharin Worathanakul* and Peeradaphan Saisuwansiri

Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, King Mongkut's University of Technology North Bangkok, Bangkok, Thailand

*Corresponding Author, Tel. 0-2555-2000 Ext. 8242, E-mail: patcharin.w@eng.kmutnb.ac.th DOI: 10.14416/j.kmutnb.2018.03.016

Received 1 June 2017; Accepted 30 August 2017; Published online: 29 March 2018

© 2018 King Mongkut's University of Technology North Bangkok. All Rights Reserved.

Abstract

The concentration of carbon dioxide is increasing significantly and it affected global warming. Therefore; this research was to study CO₂ adsorption and metal loading on zeolite Y. Bagasse ash was used as a source of silica instead of sodium silicate for NaY synthesis. CO₂ adsorption efficiency was improved using copper and iron loading into zeolite via incipient wetness impregnation method. The results showed that at 300°C with 5.5 wt.%Cu/Zeolite Y could adsorb 67.06% of CO₂ and 1 wt.%Fe/Zeolite Y could adsorb 61.14%. Moreover, Cu and Fe loading with 5.5wt%Cu-1wt.%Fe/Zeolite Y reached high CO₂ adsorption at 82.40%. For the adsorption temperature of 100°C, 300°C and 600°C, the highest efficiency of CO₂ adsorption was at 100°C.

Keywords: Zeolite Y, Incipient Wetness Impregnation, Carbon Dioxide Adsorption, Copper, Iron

1. บทนำ

การปล่อยก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ (CO_2) ออกสู่ชั้นบรรยากาศจัดเป็นปัญหาหนึ่งทางสิ่งแวดล้อมที่สำคัญของโลก โดยก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์มีความเข้มข้นเพิ่มขึ้นอย่างรวดเร็วส่งผลให้บรรยากาศของโลกร้อนขึ้นและก่อให้เกิดปัญหาอื่นๆ ตามมา ปัจจุบันการสังเคราะห์ซีโอไลต์และทดลองใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาชนิดต่างๆ ได้รับความสนใจมาก ซึ่งปัจจัยที่มีผลต่อความไวของตัวเร่งปฏิกิริยา คือ พื้นที่ผิว ความมีรูพรุน ลักษณะทางเรขาคณิตของพื้นผิว ความสามารถในการต้านการเสื่อมสภาพของตัวเร่งปฏิกิริยา ปัจจัยเหล่านี้ในปฏิกิริยาบางชนิดตัวเร่งปฏิกิริยาที่มีเฉพาะโลหะอย่างเดียวอาจไม่สามารถทำหน้าที่ได้ดี จึงมีการนำเอาตัวรองรับ (Support) มาศึกษา ดังนั้นการเลือกสารในการทำปฏิกิริยาเพื่อลดก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์จึงมีความสำคัญต่อการเกิดปฏิกิริยาเป็นอย่างยิ่ง

ในการศึกษาคุณสมบัติในการดูดซับและการแยกก๊าซของซีโอไลต์ พบว่าสัดส่วนโมลของซิลิกาต่ออลูมินา ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$) ต่ำ จะส่งผลให้มีแรงไฟฟ้าสถิตระหว่างก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์มากซีโอไลต์ [1] ซึ่งซีโอไลต์ Faujasite (FAU) ชนิด NaY มีสัดส่วนสัดส่วนโมลของซิลิกาต่ออลูมินาโดยประมาณ 2.4 [2] ซีโอไลต์ FAU เป็นซีโอไลต์ ที่มีรูพรุน 3 มิติ ขนาดรูพรุนประมาณ 7.4 อังสตรอม (Å) ซึ่งเหมาะสำหรับใช้เป็นตัวเร่งปฏิกิริยา ตัวดูดซับและการแยกโมเลกุลขนาดใหญ่เนื่องจากมีพื้นที่ผิวสัมผัสสูง และสามารถทนความร้อนสูง [3] ต่อมาในปี ค.ศ. 2004 มีการศึกษาการแยกก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์จากก๊าซไนโตรเจนโดยใช้ซีโอไลต์ 13 ชนิด พบว่า FAU (NaY) และ 13X มีประสิทธิภาพสูงสุด แต่เมื่อศึกษาการคายซับพบว่าซีโอไลต์ NaY มีประสิทธิภาพสูงกว่าและสามารถนำกลับมาใช้ใหม่ได้อีก [4]

การศึกษาคัดเลือกโลหะเพื่อเพิ่มประสิทธิภาพในการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ในงานวิจัยนี้ทำการเติมโลหะชนิดเหล็ก (Fe) และทองแดง (Cu) ลงบนตัวดูดซับ การศึกษาของ Park *et al.* [5] ในการเติมโลหะทองแดงในการสังเคราะห์เมทานอลและไดเมทิลอีเทอร์ด้วยปฏิกิริยาการเติมไฮโดรเจนของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์โดยใช้ตัวเร่ง

ปฏิกิริยา Cu/ZnO โดยพบว่ามีการเปลี่ยนแปลงของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์สูงสุดเท่ากับ 48.44% [5] ในงานวิจัยของ Rakpasert [6] ศึกษาการเติมโลหะชนิดทองแดง นิกเกิลและเหล็กลงบนซีโอไลต์ FAU พบว่าไม่ส่งผลให้ชนิดของซีโอไลต์ FAU เปลี่ยนแปลง ซึ่งศึกษาเกี่ยวกับปฏิกิริยารีดักชันก๊าซไนตริกออกไซด์ พบว่าเหล็กและทองแดงเป็นโลหะที่เหมาะสมสำหรับปฏิกิริยารีดักชันก๊าซไนตริกออกไซด์ [6] การศึกษาคัดเลือกโลหะเหล็กมีการนำมาใช้ในกระบวนการเติมไฮโดรเจนของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์บนตัวเร่งปฏิกิริยาชนิดซีโอไลต์ FAU ผลลัพธ์ที่เกิดขึ้นส่วนใหญ่คือ CH_4 และมีแนวโน้มเพิ่มขึ้น สรุปได้ว่าตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะเหล็กสามารถเพิ่มประสิทธิภาพการเร่งปฏิกิริยา [7] นอกจากนี้เหล็กจะช่วยในเรื่องของความไวในการเป็นตัวเร่งปฏิกิริยา ที่มีเสถียรภาพทางความร้อนที่ช่วยป้องกันการเกิดออกซิเดชัน (Oxidation) ของทองแดง และยังช่วยป้องกันการเกิดการเผาผนึก (Sintering) ได้ด้วย [8]

ดังนั้นงานวิจัยนี้จึงทำการศึกษาคัดเลือกโลหะชนิด Cu-Fe ในซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY เพื่อศึกษาปริมาณโลหะและสภาวะที่เหมาะสม รวมถึงคุณสมบัติทางกายภาพของซีโอไลต์ที่ส่งผลต่อกระบวนการการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์

2. วิธีการวิจัย

2.1 การสังเคราะห์ซีโอไลต์และการเติมโลหะ

2.1.1 การเตรียมซิลิกาจากซีโอไลต์

ซิลิกาจากซีโอไลต์เตรียมโดยอบซีโอไลต์ที่ได้ออกจากโรงงานที่ 105°C เป็นเวลา 24 ชั่วโมง ละลายด้วยสารละลายโซเดียมไฮดรอกไซด์ความเข้มข้น 2 โมลาร์ ที่อุณหภูมิ $70-80^\circ\text{C}$ เป็นเวลา 1 ชั่วโมง กรองและนำสารละลายที่ได้ไทเทรตกับกรดไฮโดรคลอริกเข้มข้น 1 โมลาร์ จนกระทั่ง pH เป็น 7 สารละลายจะเริ่มเกิดเป็นสารประกอบเจลทิ้งไว้ 18 ชั่วโมง และล้างด้วยน้ำปราศจากไอออน และอบตัวอย่างที่ได้ที่อุณหภูมิ 80°C เป็นเวลา 12 ชั่วโมง จะได้ซิลิกาจากซีโอไลต์แทนโซเดียมซิลิเกตสำหรับใช้สังเคราะห์ซีโอไลต์ [9]

2.1.2 การสังเคราะห์ซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY ด้วยกระบวนการไฮโดรเทอมัล

เตรียมสารละลาย Seed Gel และ Feed Stock Gel โดยนำส่วนของ Seed Gel เติมลงใน Feed Stock Gel กวนสารอย่างต่อเนื่อง 20 นาที นำสารประกอบของเจลที่ได้ตั้งทิ้งไว้ที่อุณหภูมิห้องเป็นเวลา 5 ชั่วโมง จะเกิดการแยกตัวของเจลและเป็นฝัาลอยอยู่บนผิวของสารละลาย ให้ความร้อนที่อุณหภูมิ 100°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง เพื่อให้ฝ้าที่เกิดหายไป และทิ้งไว้ที่อุณหภูมิห้อง และหลังจากนั้นนำผลิตภัณฑ์ที่ได้ ให้ความร้อนหลังจากขั้นตอนการตกผลึก และนำผลิตภัณฑ์ที่ได้เข้าเครื่องเหวี่ยงแยก กรอง ล้างด้วยน้ำกลั่น จนมีค่า pH ต่ำกว่า 9 และอบผลิตภัณฑ์ซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY ที่ได้

2.1.3 การเติมโลหะโดยวิธีจุ่มซุบแบบเปียก (Incipient Wetness Impregnation)

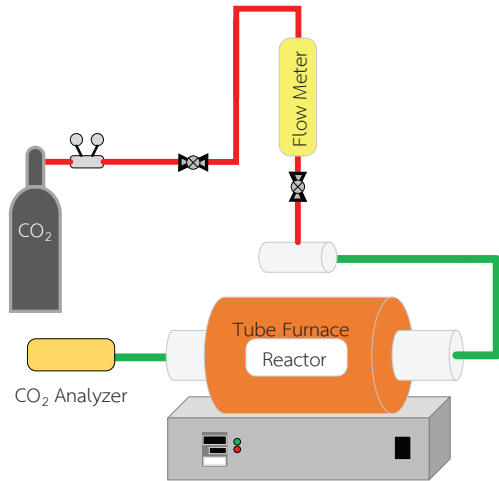
เตรียมสารเคมี $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.3\text{H}_2\text{O}$ และ $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ ตามสัดส่วน นำมาละลายน้ำหยดลงบนซีโอไลต์จนกระทั่งตัวรองรับเปียกอย่างทั่วถึง นำตัวเร่งปฏิกิริยาที่ได้อบที่อุณหภูมิ 120°C เป็นเวลา 24 ชั่วโมง และเผาที่อุณหภูมิ 600°C เป็นเวลา 5 ชั่วโมงในอากาศ

2.2 การทดสอบทางกายภาพ

2.2.1 เครื่องวัดการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (X-Ray Diffraction; XRD) ยี่ห้อ Philips รุ่น X'Pert ประเทศเนเธอร์แลนด์ เป็นเครื่องมือที่ใช้วิเคราะห์เฟสและชนิดของสารประกอบของสารตัวอย่างโดยใช้รังสี $\text{CuK}\alpha$ เชนเครื่องด้วยความต่างศักย์ 13 กิโลโวลต์

2.2.2 เครื่องฟูเรียร์ทรานสฟอร์มอินฟราเรดสเปกโตรมิเตอร์ (Fourier Transform Infrared Spectroscopy, FTIR) ยี่ห้อ PerkinElmer รุ่น Spectrum One ประเทศสหรัฐอเมริกา เป็นเครื่องมือที่ตรวจสอบและศึกษาเกี่ยวกับโครงสร้างของสาร เช่น หาหมู่ฟังก์ชันต่างๆ

2.2.3 เครื่องวัดความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ (Hand-held Carbon Dioxide) รุ่น GM70 จากบริษัท Vaisala เป็นเครื่องวิเคราะห์ก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์แบบพกพา ที่เหมาะสำหรับการตรวจวัดเฉพาะจุด



รูปที่ 1 แผนภาพอุปกรณ์ทดสอบการดูดซับ

2.3 การทดสอบประสิทธิภาพการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์

ป้อนก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ 99.8 โมลเปอร์เซ็นต์ โดยปรับอัตราการไหลเท่ากับ 5 ลิตร/ชั่วโมง ที่อุณหภูมิห้อง เข้าไปในเครื่องปฏิกรณ์เบดนิ่ง เพื่อวัดความเข้มข้นก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ขาเข้าโดยที่ไม่มีตัวดูดซับ และบรรจุวัสดุดูดซับลงในท่อปฏิกรณ์เพื่อทำวัดประสิทธิภาพการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ ทำการปรับเปลี่ยนอุณหภูมิของเครื่องปฏิกรณ์ที่ค่าต่างๆ วัดค่าความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ หลังผ่านการดูดซับ 10 นาที โดยเก็บค่าทุกๆ 10 นาที ด้วยเครื่องวัดความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ ดังรูปที่ 1 คำนวณค่าเปอร์เซ็นต์การเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ (%CO₂ Conversion) สามารถคำนวณได้ดังสมการที่ (1)

$$\% \text{CO}_2 \text{ conversion (\%)} = \frac{n_{in} - n_{out}}{n_{in}} \times 100 \quad (1)$$

จากงานวิจัยการศึกษาปริมาณโลหะ Cu ที่เติมลงบนซีโอไลต์ชนิด SUZ-4 โดยน้ำหนัก 2 และ 5% ด้วยวิธีการจุ่มซุบในการกำจัดก๊าซไนโตรเจนออกไซด์ พบว่าโลหะ Cu 5% ให้ค่าผันแปรถึง 82.22% [10] และการศึกษาปริมาณโลหะชนิด Fe มีการศึกษาโดย Turapan *et al.* [11] พบว่า

การสังเคราะห์ซีโอไลต์ Fe/SUZ-4 ที่อัตราส่วน 1, 3, 5, 8 และ 10% พบว่าปริมาณ Fe ต่ำๆ จะมีการกระจายตัวของรูพรุนที่แคบและมีผลลักษณะรูเข็ม งานวิจัยนี้จึงสนใจการเติมโลหะ Cu และ Fe โดยเลือกศึกษาปริมาณ 2 ค่า ที่มีช่วงแตกต่างกันอย่างเห็นได้ชัดจากการศึกษาที่ผ่านมา [6], [10], [11]

การศึกษาของ Niklas *et al.* [12] ได้มีการรวบรวมงานวิจัยการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์โดยซีโอไลต์ชนิดต่างๆ อุณหภูมิที่เลือกนำมาใช้ในการทดลอง พบว่าการศึกษาของงานวิจัยที่เกี่ยวข้องกับการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ส่วนใหญ่ทำการศึกษาที่ 270°C ซึ่งไม่สามารถประยุกต์ใช้ได้กับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ที่ผ่านกระบวนการเผาไหม้ในอุตสาหกรรม ที่มีอุณหภูมิโดยประมาณ 330°C ขึ้นไป [12] ดังนั้นงานวิจัยนี้จึงเลือกทำการศึกษาที่อุณหภูมิ 100, 300 และ 600°C ดังตารางที่ 1 เพื่อเปรียบเทียบที่สภาวะต่ำ กลาง และสูง อย่างไรก็ตามสภาวะอุณหภูมิต่างๆ ควรได้มีการศึกษาต่อไปซึ่งขึ้นกับการประยุกต์ใช้งานที่สอดคล้องกัน

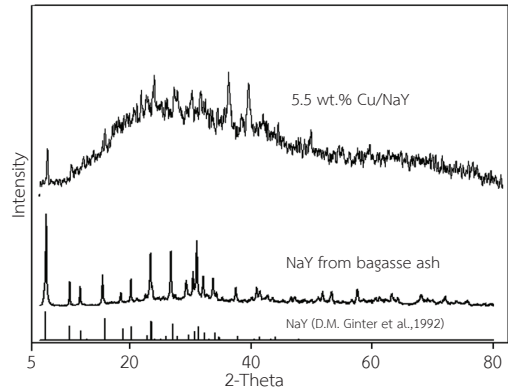
ตารางที่ 1 ขอบเขตสภาวะที่ใช้ในการศึกษาประสิทธิภาพการลดก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ ของตัวเร่งปฏิกิริยา Metals/Zeolite Y

ตัวแปร	ข้อมูลที่ใช้ในการทดลอง
ตัวเร่งปฏิกิริยา	2.3, 5.5 wt.% Cu/Zeolite Y 1.0, 5.0 wt.% Fe/Zeolite Y
เครื่องปฏิกรณ์	0.7752 cm.id. stainless steel tube
ความเข้มข้นสารขาเข้า	CO ₂ 99.8 mol%
น้ำหนักตัวดูดซับ	0.3 g
อุณหภูมิดูดซับ	100, 300, 600°C
ความดัน	1 atm
อัตราการไหล	5 L/hr

3. ผลการวิจัย

3.1 การวิเคราะห์ชนิดของซีโอไลต์ด้วยเครื่อง XRD

การวิเคราะห์ซีโอไลต์จากการสังเคราะห์ซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY โดยใช้ซิลิกาจากขี้เถ้าชานอ้อยที่สกัดได้เป็นแหล่ง

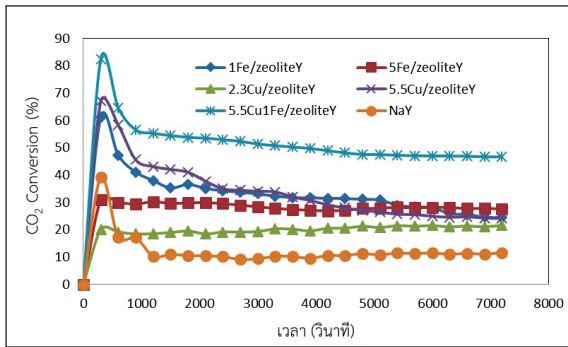


รูปที่ 2 ตัวอย่าง XRD pattern ของการสังเคราะห์ซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY

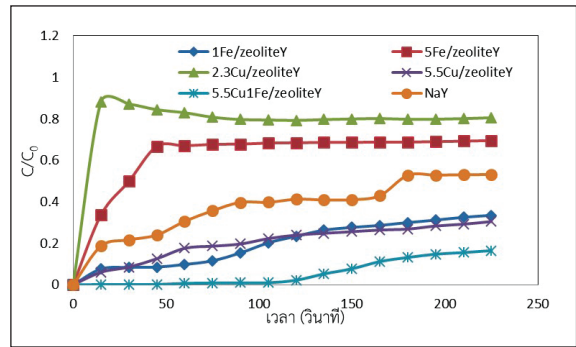
ของซิลิกาแทนโซเดียมซิลิเกต พบว่าเมื่อใช้ขี้เถ้าชานอ้อยเป็นแหล่งซิลิกาจะเกิดเป็นซีโอไลต์ NaY พบว่าเกิดพีคตรงกับพีคมาตรฐานหลักที่ตำแหน่ง 6, 15.8, 20.2, 23.5, 27 และ 31.3 ซึ่งเป็นชนิดซีโอไลต์ NaY [13] ดังรูปที่ 2 และจากการเติมโลหะทองแดง (Cu) ของตัวอย่าง 5.5 wt.%Cu/Zeolite Y ลงไปด้วยเทคนิควิธีจุ่มชุบแบบเปียกจะพบพีคของคอปเปอร์ออกไซด์ (CuO) ปรากฏอยู่ในโครงสร้างของซีโอไลต์ โดยยืนยันได้จากค่า 2θ ของพีคเทียบกับข้อมูล JCP ที่ 2θ ของ CuO ที่ตำแหน่ง 35.5, 38.7, 58.3, 61.6, 68.1 และพีคของซีโอไลต์ที่โหลดโลหะ ทองแดง Cu จะมีลักษณะเป็น Quasi-crystal ซึ่งบางส่วนเป็นอสัณฐาน บางส่วนเป็นผลึก NaY ทั้งนี้เนื่องจากขั้นตอนเตรียมสารตัวอย่างในการวัด และดังรูปที่ 2

3.2 ผลการทดสอบประสิทธิภาพการลดก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์

3.2.1 การศึกษาประสิทธิภาพการเติมโลหะชนิด Cu และ Fe บนซีโอไลต์ NaY เพื่อลดก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ จากการศึกษาการเปลี่ยนแปลงความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ที่อุณหภูมิ 300°C ดังรูปที่ 3 ซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY ที่ไม่เติมโลหะ (Pure NaY) ให้ค่าการเปลี่ยนแปลงร้อยละ 39.16 ในช่วงต้นและลดลงอย่างรวดเร็วเหลือร้อยละ 18.56 และมีแนวโน้มลดลงอย่างต่อเนื่อง



รูปที่ 3 ประสิทธิภาพการดูดซับ CO₂ ของแต่ละชนิดตัวดูดซับ ที่อุณหภูมิ 300°C ความดัน 1 บรรยากาศ และอัตราการไหลของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ 5 ลิตร/ชั่วโมง



รูปที่ 4 Breakthrough Curve ของการดูดซับ CO₂ ของแต่ละชนิดตัวดูดซับ ที่อุณหภูมิ 300°C ความดัน 1 บรรยากาศ อัตราการไหล 5 ลิตร/นาที

เมื่อศึกษาปริมาณ Cu บนซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY ซีโอไลต์ชนิด 2.3 wt.%Cu/Zeolite Y ให้เปอร์เซ็นต์การเปลี่ยนแปลงเพียงร้อยละ 19.98 ซึ่งซีโอไลต์ชนิด 5.5 wt.%Cu/Zeolite Y ให้ค่าการเปลี่ยนแปลงถึง 67.06 เปอร์เซ็นต์ ผลที่ได้จะสอดคล้องกับการแลกเปลี่ยนไอออนกับโลหะคอปเปอร์ (Cu) บนซีโอไลต์ SUZ-4 ของ Trisuwan [9] โดยเพิ่มปริมาณคอปเปอร์ ส่งผลให้พื้นที่ผิวจำเพาะมากและมีแนวโน้มทำให้พื้นที่ผิวและปริมาตรรูพรุนในช่วงไมโครพอร์ (Micropore) เพิ่มมากขึ้น [9]

ผลการศึกษาปริมาณ Fe บนซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY พบว่า เมื่อปริมาณโลหะ Fe มากขึ้นส่งผลให้ดูดซับได้น้อยลง ซีโอไลต์ชนิด 5 wt.%Fe/ Zeolite Y ให้ค่าการเปลี่ยนแปลง 31.02 เปอร์เซ็นต์ สำหรับซีโอไลต์ชนิด 1 wt.%Fe/Zeolite Y ให้ค่าการเปลี่ยนแปลง 61.14 เปอร์เซ็นต์ ซึ่งผลที่ได้จะสอดคล้องกับการเติมโลหะ Fe/SUZ-4 ของงานวิจัย Pornrattanapimolchai [14] ศึกษาการเปลี่ยนแปลงไนตริกออกไซด์ (NO Conversion) พบว่าเมื่อปริมาณโลหะเพิ่มมากขึ้นค่าการเปลี่ยนแปลงจะลดลง [14] เนื่องจากปริมาณของโลหะเพิ่มมากขึ้นจะเกิดการรวมกลุ่มกันเป็นเหล็กออกไซด์หน่วงการเร่งปฏิกิริยา [15]

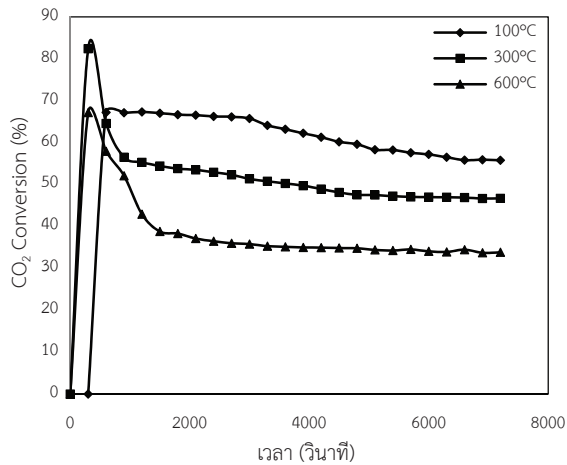
การศึกษาการเติมโลหะทั้ง 2 ชนิด บนซีโอไลต์ NaY โดยเลือกปริมาณที่ส่งผลประสิทธิภาพในการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์มากที่สุด พบว่า 5.5Cu 1Fe wt.%/Zeolite Y

ให้ค่าการเปลี่ยนแปลงมากที่สุดคือ 82.40 เปอร์เซ็นต์

3.2.2 ศึกษา Breakthrough Curve ของการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์

ผลศึกษา Breakthrough Curve ที่อุณหภูมิ 300°C จากรูปที่ 4 พบว่าในช่วงแรกนั้น จะมีค่าความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ด้านขาออกต่อค่าความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ด้านขาเข้า (C/C₀) หลังผ่านตัวดูดซับมีค่าต่ำ ซึ่งหมายความว่าซีโอไลต์แต่ละชนิดสามารถดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ได้ หลังจากนั้นค่าความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ด้านขาเข้าของ 2.3 wt.% Cu/Zeolite Y และ 5.0 wt.% Fe/Zeolite Y จะเพิ่มขึ้นอย่างรวดเร็ว จนกระทั่งเวลาผ่านไป 50 วินาที ค่าความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ด้านขาออกต่อค่าความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ด้านขาเข้าจะมีค่าการเปลี่ยนแปลงเริ่มเข้าสู่สภาวะคงที่ ซึ่งหมายความว่าซีโอไลต์เริ่มมีการหยุดการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์หรืออิ่มตัวแล้ว นอกจากนั้นผลของซีโอไลต์อื่นๆ มีแนวโน้มที่สามารถดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ได้อย่างต่อเนื่องจนกระทั่งเวลาผ่านไป 180 วินาที จะเริ่มมีการเปลี่ยนแปลงเริ่มเข้าสู่สภาวะคงที่

จากรูปที่ 5 การศึกษาการเติมโลหะเพื่อเพิ่มประสิทธิภาพการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์พบว่าการเติมโลหะทั้ง 2 ชนิด คือซีโอไลต์ 5.5wt.%Cu-1%Fe/ Zeo-

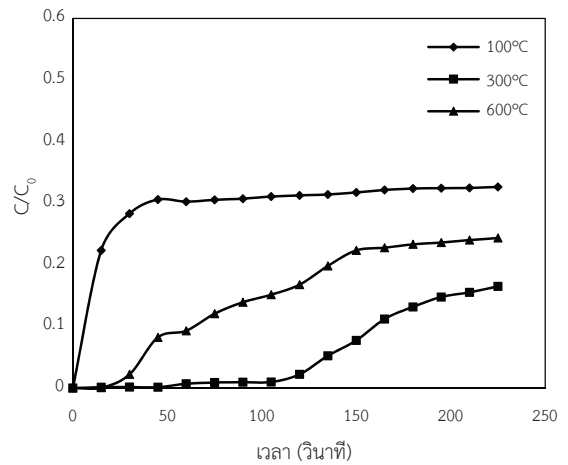


รูปที่ 5 ผลของอุณหภูมิต่อประสิทธิภาพการดูดซับ CO_2 ของซีโอไลต์ 5.5Cu1Fe wt.% / Zeolite Y

lite Y มีประสิทธิภาพที่ดีที่สุด จึงเลือกนำไปศึกษาสภาวะที่เหมาะสมในการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ พบว่าให้ค่าการเปลี่ยนแปลงความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ช่วงเริ่มต้นที่อุณหภูมิการดูดซับ 300°C มีเปอร์เซ็นต์การเปลี่ยนแปลงมาก แต่เมื่ออุณหภูมิการดูดซับ 100°C คงที่มีแนวโน้มการดูดซับได้ดีที่สุด เป็นไปตามการศึกษาสภาวะที่เหมาะสมของ Niklas *et al.* [12] การดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์จะมีประสิทธิภาพในสภาวะอุณหภูมิต่ำ เนื่องจากที่อุณหภูมิต่ำพลังงานในระบบน้อยกว่าเมื่อเทียบกับที่อุณหภูมิสูง ทำให้โมเลกุล CO_2 สามารถแพร่เข้าไปในซีโอไลต์มีความเสถียรมากกว่า [12]

ผลการศึกษา Breakthrough Curve ของการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ ที่อุณหภูมิ 100, 300, 600°C จากรูปที่ 6 พบว่า ในช่วง 250 นาทีแรก ที่ทุกอุณหภูมิมิมีแนวโน้มที่สามารถดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ได้อย่างต่อเนื่อง

สำหรับที่อุณหภูมิ 300°C ในช่วงต้นค่าความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ด้านขาออกต่อค่าความเข้มข้นของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ด้านขาเข้า (C/C_0) หลังผ่านตัวดูดซับมีค่าต่ำที่สุด ซึ่งสามารถดูดซับได้ดีที่สุด ดังรูปที่ 5 และเมื่อเข้าสู่สภาวะสมดุลพบว่าที่อุณหภูมิ 100°C กลับมีแนวโน้มดูดซับได้ดีที่สุด



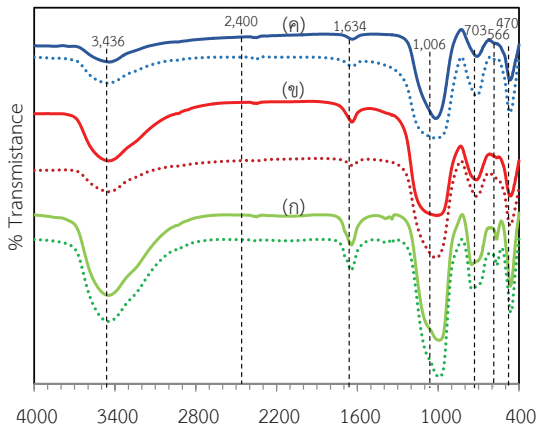
รูปที่ 6 Breakthrough Curve ของซีโอไลต์ 5.5-1wt.% Cu-Fe/Zeolite Y ในการดูดซับ CO_2 ที่อุณหภูมิ 100, 300, 600°C ความดัน 1 บรรยากาศ อัตราการไหล 5 ลิตร/นาที

3.3 การวิเคราะห์หมู่ฟังก์ชันด้วยเครื่อง FTIR

เมื่อนำซีโอไลต์ชนิด Zeolite Y ที่ไม่ผ่านกระบวนการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์และที่ผ่านกระบวนการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ วิเคราะห์ด้วยเครื่อง FTIR รูปที่ 7 พบพีคที่ความยาวคลื่นประมาณ 3436, 1634, 1006, 703, 566 และ 470 cm^{-1} เป็นพีคของซีโอไลต์ Zeolite Y นอกจากนี้ยังเกิดพีคที่ตำแหน่งประมาณ $2,400\text{ cm}^{-1}$ ซึ่งเป็นความยาวคลื่นที่แสดงการดูดซับของคาร์บอนไดออกไซด์ (CO_2) เช่นเดียวกัน จึงสามารถสรุปเบื้องต้นได้ว่า ซีโอไลต์ชนิด Zeolite Y สามารถดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ได้ในสภาวะอุณหภูมิต่ำ ซึ่งสอดคล้องผลสรุปที่ว่า การดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ จะมีความสามารถดูดซับได้ในสภาวะอุณหภูมิต่ำ

4. อภิปรายผลและสรุป

ซีโอไลต์สามารถใช้เป็นแหล่งของซิลิกาแทนโซเดียมซิลิเกตในการสังเคราะห์ซีโอไลต์ NaY เมื่อนำเติมโลหะชนิด Cu และ Fe เพื่อใช้ในกระบวนการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ 5.5 wt.% Cu/Zeolite Y และ 1 wt.% Fe/Zeolite Y เป็นสัดส่วนการเติมโลหะที่เหมาะสม



รูปที่ 7 FTIR-spectra ของแต่ละตัวดูดซับ (ก) 1Fe/Zeolite Y (ข) 5.5Cu/Zeolite Y (ค) 5.5Cu1Fe/Zeolite Y สำหรับที่ไม่ผ่านกระบวนการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ (เส้นประ) และที่ผ่านกระบวนการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ (เส้นทึบ)

สำหรับซีโอไลต์ FAU ชนิด NaY ภายใต้ขอบเขตการศึกษาวิจัยนี้ ซึ่งเมื่อทำการเติมโลหะทั้งสองชนิดทำให้ค่าการเปลี่ยนแปลงสูงถึง 82.40 เปอร์เซ็นต์ และพบว่าอุณหภูมิที่เหมาะสมกับกระบวนการดูดซับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์สำหรับการศึกษาในงานวิจัยครั้งนี้

5. กิตติกรรมประกาศ

งานวิจัยนี้ได้รับการสนับสนุนจากเงินอุดหนุนโครงการทุนวิจัยสนับสนุนนักวิจัยทั่วไปประจำปี 2559 มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีพระจอมเกล้าพระนครเหนือ (รหัสโครงการ KMUTNB-GEN-59-06)

เอกสารอ้างอิง

[1] G. Calleja, J. Pau, and J. A. Calles, “Pure and multicomponent adsorption equilibrium of carbon dioxide, ethylene, and propane on ZSM-5 zeolites with different Si/Al ratios,” *Journal of Chemical & Engineering Data*, vol. 43, pp. 994–1003, 1998.

- [2] V. Niklakis, G. Xomeritakis, A. Abibi, M. Dickson, M. Tsapatsis, and D. G. Vlachos, “Growth of a faujasite-type zeolite membrane and its application in the separation of saturated/unsaturated hydrocarbon mixtures,” *Journal of Membrane Science*, vol.184, pp. 209–219, 2001.
- [3] A. Ghoufi, L. Gaberova, J. Rouquerol, D. Vincent, P. L. Llewellyn, and G. Maurin, “Adsorption of CO₂, CH₄ and their binary mixture in Faujasite NaY: A combination of molecular simulations with gravimetry–manometry and microcalorimetry measurements,” *Microporous and Mesoporous Materials*, vol. 119, no. 1–3, pp. 117–128, 2009.
- [4] P. J. E. Harlick and F. Handan Tezel, “CO₂-N₂ and CO₂-CH₄ binary adsorption isotherms with H-ZSM5: The importance of experimental data regression with the concentration pulse method,” *Microporous and Mesoporous Materials*, vol. 76, pp. 71–79, 2004.
- [5] N. Park, M. J. Park, Y. J. Lee, K. S. Ha, and K. W. Jun, “Kinetic modeling of methanol synthesis over commercial catalysts based on three-site adsorption,” *Fuel Processing Technology*, vol. 125, pp. 139–147, 2014.
- [6] N. Rakpasert, *Preparation of Different Metals Loading on FAU Zeolite for NO Reduction*. Bangkok: KMUTNB Textbook Publishing Center, 2012 (in Thai).
- [7] S. J. Schmiege, B. K. Cho, and S. H. Oh, “Selective catalytic reduction of nitric oxide with acetaldehyde over NaY zeolite catalyst in lean exhaust feed,” *Applied Catalysis B: Environmental*, vol.49, pp. 113–125, 2004.
- [8] Y. K. Park, S. W. Baek, and S. K. Ihm, “CO₂



- Hydrogenation over copper-based hybrid catalysts for the synthesis of oxygenates,” *Fuel Chemistry Division Preprints*, vol. 47, 2002.
- [9] D. Trisuwan, *Technique for SUZ-4 zeolite Powder Synthesis Derived from Bagasse Ash*. Bangkok: KMUTNB Textbook Publishing Center, 2010 (in Thai).
- [10] S. Lerduraivong and P. Kongkachuichay, “Effect of sol-gel synthesis parameters and Cu loading on the physicochemical properties of a new SUZ-4 zeolite,” presented at the 20th National Graduate Research Conference, 6–7 October, 2012.
- [11] S. Turapan, P. Kongkachuichay, and P. Worathanakul, “Synthesis and characterization of Fe/SUZ-4 Zeolite,” *Procedia Engineering*, vol. 32, pp.191–197, 2012.
- [12] N. Hedin, L. Andersson, L. Bergstrom, and J. Yan, “Adsorbents for the post-combustion capture of CO₂ using rapid temperature swing or vacuum swing adsorption,” *Applied Energy*, vol. 104, pp. 418–433, 2013.
- [13] D. M. Ginter, A. Bell, T. Radke, C. J. Ocelli, M. L. Robson, H. E., D. M. Ginter, A. T. Bell, C. J. Radke, M. L. Ocelli, and H. E. Robson, “Synthesis of Microporous Materials,” in *Molecular Sieves*. Van Nostrand Reinhold. New York, vol. 1, pp. 6, 1992.
- [14] C. Pornrattanapimolchai, *Different Sequence of Copper and Iron Loadings on SUZ-4 Zeolite with Impregnation Method for NO Reduction*. Bangkok: KMUTNB Textbook Publishing Center, 2010 (in Thai).
- [15] X. Y. Cheng, “Effects of O₂, CO₂ and H₂O on NO_x adsorption and selective catalytic reduction over Fe/ZSM-5,” *Applied Catalysis B: Environmental*, vol. 102, no. 1–2, pp. 163–171, 2011.