

บทที่ 3

วิธีดำเนินการวิจัย

3.1 วัสดุ อุปกรณ์ เครื่องมือ แก๊สและสารเคมีที่ใช้ในการวิจัย

3.1.1 สารเคมีที่ใช้ในการวิจัย

- 1) แมกนีเซียมทูลไฮดรอกไซด์เฮกซะไฮเดรต หรือ Magnesium (II) nitrate hexahydrate ($\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) น้ำหนักโมเลกุล เท่ากับ 256.40 กรัมต่อโมล ผลิตโดยบริษัท เมอร์ค (Merck)
- 2) อลูมิเนียมทริไนเตรตโนนาไฮเดรต หรือ Aluminium (III) nitrate nonahydrate ($\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) น้ำหนักโมเลกุล เท่ากับ 375.13 กรัมต่อโมล ผลิตโดยบริษัท เมอร์ค (Merck)
- 3) โซเดียมไฮดรอกไซด์ หรือ Sodium hydroxide (NaOH) น้ำหนักโมเลกุล เท่ากับ 40.00 กรัมต่อโมล ผลิตโดยบริษัท เอแจ็กซ์ ไลน์เคม จำกัด มหาชน (Ajax Finechem Pty. Ltd.)
- 4) โซเดียมคาร์บอเนต หรือ Sodium carbonate (Na_2CO_3) น้ำหนักโมเลกุล เท่ากับ 105.99 กรัมต่อโมล ผลิตโดยบริษัท เอแจ็กซ์ ไลน์เคม จำกัด มหาชน (Ajax Finechem Pty. Ltd.)
- 5) เตตระเอทิลีนเพนตามีน (Tetraethylenepentamine) หรือ ทีอีพีเอ (TEPA) ($(\text{NH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NHCH}_2\text{CH}_2)_2\text{NH}$) น้ำหนักโมเลกุล เท่ากับ 189.30 กรัมต่อโมล ผลิตโดยบริษัท ซิกม่าอัลดริช จำกัด (Sigma-Aldrich Co. LLC.)
- 6) โซเดียมโดเดซิลซัลเฟต (Sodium dodecyl sulfate) หรือ เอสดีเอส (SDS) ($\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{11}\text{OSO}_3\text{Na}$) น้ำหนักโมเลกุล เท่ากับ 288.38 กรัมต่อโมล ผลิตโดยบริษัท เอแจ็กซ์ ไลน์เคม จำกัด มหาชน (Ajax Finechem Pty. Ltd.)

3.1.2 แก๊สที่ใช้ในการวิจัย

- 1) คาร์บอนไดออกไซด์ร้อยละ 10 โดยปริมาตร ในฮีเลียม (10% carbon dioxide (CO_2) in helium (He)) ผลิตโดยบริษัท แพร็กซ์แอร์ ประเทศไทย จำกัด (Praxair Thailand Co., Ltd.)
- 2) คาร์บอนไดออกไซด์ร้อยละ 30 โดยปริมาตร ในฮีเลียม (30% carbon dioxide (CO_2) in helium (He)) ผลิตโดยบริษัท แพร็กซ์แอร์ ประเทศไทย จำกัด (Praxair Thailand Co., Ltd.)

3) ฮีเลียมบริสุทธิ์สูงพิเศษ (Ultra-high purity helium, He) ร้อยละความบริสุทธิ์ 99.999 ผลิตโดยบริษัท ไทยอินดัสเตรียลแก๊ส จำกัด (TIG Co., Ltd.)

4) ไฮโดรเจนบริสุทธิ์สูงพิเศษ (Ultra-high purity hydrogen, H₂) ร้อยละความบริสุทธิ์ 99.999 ผลิตโดยบริษัท ไทยอินดัสเตรียลแก๊ส จำกัด (TIG Co., Ltd.)

3.1.3 อุปกรณ์ที่ใช้ในการวิจัย

1) อุปกรณ์ควบคุมอัตราการไหลของแก๊ส (Mass flow controller) ยี่ห้ออัลบร็อก (AALBROG) รุ่น GFC 1715

2) อุปกรณ์ควบคุมอุณหภูมิ ต่อเข้ากับตัววัดอุณหภูมิและเตาไฟฟ้าชนิดขดลวด (Temperature controller equipped with thermocouple and solenoid electric furnace)

3) มาตรวัดความดัน (Pressure gauge)

4) ท่อ ข้อต่อ และวาล์วเหล็กกล้าไร้สนิมชนิด 316 (Stainless steel 316 tube, fitting, and valve) ยี่ห้อสเวลล็อก (Swagelok)

5) ท่อแก้วควอตซ์ (Quartz tubes) ขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางภายใน 1/4 นิ้ว และ 6 มิลลิเมตร

6) เทปใยแก้วความร้อน (Heating tab)

7) อุปกรณ์ดักจับน้ำ (Glass water trap)

8) เตาไฟฟ้า (Electric oven)

9) เตาเผาอากาศนิ่ง (Static air muffle furnace)

10) อุปกรณ์ปรับความดันแก๊ส (Regulator)

11) แก๊สโครมาโตกราฟี (Gas chromatography, GC)

3.2 วิธีดำเนินการทดลอง

3.2.1 การเตรียมตัวดูดซับ (Sorbent preparation)

3.2.1.1 ตัวรองรับไฮดรอลไซต์ (Hydrotalcite support)

เตรียมโลหะออกไซด์ด้วยวิธีตกตะกอนร่วม เริ่มจากเตรียมสารละลายเกลือไนเตรตผสมของโลหะ ซึ่งประกอบด้วย แมกนีเซียมทูไนเตรตเฮกซะไฮเดรต ($\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) และอลูมิเนียมทรีไนเตรตโนนาไฮเดรต ($\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) ที่อัตราส่วนโมลาร์ของแมกนีเซียมต่ออลูมิเนียม (Mg/Al molar ratio) เท่ากับ 3 และอัตราส่วนโดยน้ำหนักของน้ำต่อเกลือไนเตรต (W/N ratio) เท่ากับ 4.50 เตรียมสารละลายผสมของโซเดียมไฮดรอกไซด์และโซเดียมคาร์บอเนต ที่

อัตราส่วนของคาร์บอนต่อผลรวมของอลูมิเนียมและแมกนีเซียม ($\text{CO}_3^{2-}/(\text{Al}+\text{Mg})$) เท่ากับ 0.67 อัตราส่วนของไฮดรอกไซด์ต่อผลรวมของอลูมิเนียมและแมกนีเซียม ($\text{OH}^-/(\text{Al}+\text{Mg})$) เท่ากับ 2.25 และอัตราส่วนโดยน้ำหนักของน้ำต่อโซเดียมไฮดรอกไซด์ผสมโซเดียมคาร์บอเนต (W/S ratio) เท่ากับ 8.32

นำสารละลายผสมของโซเดียมไฮดรอกไซด์และโซเดียมคาร์บอเนตไปให้ความร้อนในอ่างน้ำร้อนโดยควบคุมอุณหภูมิไว้ที่ 60 องศาเซลเซียสและกวนอย่างต่อเนื่องด้วยเครื่องกวนแบบแม่เหล็ก (Magnetic stirrer) หยดสารละลายเกลือในเตรตผสมของโลหะอย่างช้าๆ ลงในสารละลายผสมของโซเดียมไฮดรอกไซด์และโซเดียมคาร์บอเนต ทำการควบคุมอุณหภูมิและกวนต่อไปโดยทิ้งไว้เป็นเวลา 18 ชั่วโมง เมื่อครบเวลาดังกล่าวให้เย็นที่อุณหภูมิห้อง นำตะกอนที่ได้มากรองและล้างด้วยน้ำปราศจากไอออนในปริมาณมาก

3.2.1.2 ตัวรองรับไฮโดรทัลไซต์โลค์ที่ปรับปรุงพื้นผิวด้วยโซเดียมโดเดซิลซัลเฟต

เตรียมสารละลายโซเดียมโดเดซิลซัลเฟตในเอทานอลที่อัตราส่วนของแข็งต่อของเหลว 1:2 และร้อยละโดยมวลของโซเดียมโดเดซิลซัลเฟตต่อตัวดูดซับ (โซเดียมโดเดซิลซัลเฟตต่อผลรวมของโซเดียมโดเดซิลซัลเฟตเตตระเอทิลีนเพนตามีนและตัวรองรับไฮโดรทัลไซต์โลค์) ของเท่ากับ 1 ถึง 10 จากนั้นเติมตัวรองรับไฮโดรทัลไซต์โลค์ในปริมาณตามร้อยละโดยมวลของโซเดียมโดเดซิลซัลเฟตต่อตัวดูดซับ แล้วกวนผสมเป็นเวลา 30 นาทีที่ความเร็วรอบ 120 รอบต่อนาที รอจนแห้งหมาดๆ เก็บไว้ในส่วนการดัดแปรด้วยเตตระเอทิลีนเพนตามีนต่อไป

3.2.1.3 ตัวดูดซับไฮโดรทัลไซต์โลค์ที่ปรับปรุงพื้นผิวด้วยโซเดียมโดเดซิลซัลเฟตและดัดแปรด้วยเตตระเอทิลีนเพนตามีน

นำไฮโดรทัลไซต์โลค์ที่ปรับปรุงพื้นผิวด้วยโซเดียมโดเดซิลซัลเฟตที่แห้งหมาดๆ มาเติมเอทานอล 15 มิลลิลิตร แล้วทำการกวนต่อเนื่องนาน 10 นาทีที่ความเร็วรอบ 120 รอบต่อนาที จากนั้นเติมเตตระเอทิลีนเพนตามีน (TEPA) ในอัตราส่วนโดยน้ำหนักของเตตระเอทิลีนเพนตามีน ต่อตัวดูดซับ (เตตระเอทิลีนเพนตามีนต่อผลรวมของโซเดียมโดเดซิลซัลเฟต เตตระเอทิลีนเพนตามีนและตัวรองรับไฮโดรทัลไซต์โลค์) เท่ากับ 30 ถึง 50 แล้วทำการกวนผสมต่ออีกเป็นเวลา 30 นาที จากนั้นนำไปอบแห้งที่ภายใต้ความดันบรรยากาศอุณหภูมิ 60 องศาเซลเซียสเป็นเวลาหนึ่งคืน

3.2.2 การทดสอบความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์

การดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ดำเนินการโดยใช้เครื่องปฏิกรณ์แบบเบดนิ่งหรือคอลัมน์การดูดซับ ภายใต้ภาวะความดันบรรยากาศ ควบคุมอัตราการไหลของแก๊สเข้าโดยใช้เครื่องควบคุมอัตราการไหล (AALBROG model: GFC 1715) และอุณหภูมิที่ใช้ดำเนินการควบคุมโดยใช้เทปเพิ่มความร้อนในการให้ความร้อนแก่ระบบ ตรวจจับอุณหภูมิภายในเครื่องปฏิกรณ์โดยใช้อุปกรณ์ควบคุมอุณหภูมิ และตรวจวัดความเข้มข้นของคาร์บอนไดออกไซด์ขาออกด้วยเครื่องแก๊สโครมาโทกราฟี (Shimadzu GC-2014) ด้วยวิธีออนไลน์ ส่วนของคอลัมน์การดูดซับใช้ท่อควอตซ์ขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางภายนอก 1/4 นิ้ว ความยาว 60 เซนติเมตร

การดำเนินการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ในภาวะแห้ง บรรจุตัวดูดซับสังเคราะห์ 0.3 กรัมในคอลัมน์การดูดซับ ก่อนเริ่มทำการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์จะทำการให้ความร้อนเริ่มต้นเพื่อทำความสะอาดพื้นผิวของตัวดูดซับ โดยทำการเพิ่มอุณหภูมิไปที่ 110 องศาเซลเซียส และคงอุณหภูมิไว้เป็นเวลา 30 นาที พร้อมกับผ่านแก๊สฮีเลียมเข้าสู่คอลัมน์การดูดซับที่อัตราการไหล 20 มิลลิลิตรต่อนาที จากนั้นลดอุณหภูมิของระบบการดูดซับจนถึงระดับที่ต้องการ ที่อุณหภูมิ 40-80 องศาเซลเซียส และเปลี่ยนแก๊สเข้าจากแก๊สฮีเลียมเป็นแก๊สผสมซึ่งประกอบด้วยคาร์บอนไดออกไซด์คู่ด้วยฮีเลียมที่ความเข้มข้นร้อยละ 10-30 โดยปริมาตร เข้าสู่ระบบ ทำการตรวจวัดคาร์บอนไดออกไซด์ขาออกทุกๆ 2 นาทีด้วยเครื่องแก๊สโครมาโทกราฟี สิ้นสุดการดูดซับที่ภาวะสมดุล โดยความเข้มข้นคาร์บอนไดออกไซด์ขาออกเท่ากับความเข้มข้นคาร์บอนไดออกไซด์ขาเข้า การคำนวณหาความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ในหน่วยของมิลลิโมลคาร์บอนไดออกไซด์ต่อกรัมของตัวดูดซับ ($\text{mmol CO}_2 / \text{g sorbent}$) กระทำโดยใช้การอินทิเกรตพื้นที่ใต้กราฟของเส้นโค้งทะลุผ่าน (Breakthrough curves) กับเส้นของความเข้มข้นเริ่มต้นของแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์

3.2.3 การออกแบบการทดลองและการวิเคราะห์ทางสถิติ (Design of experiments and statistical analysis)

เพื่อหาสภาวะที่เหมาะสมที่ให้ค่าความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์สูงสุดในด้วยการออกแบบพื้นที่ผิวตอบสนอง (FCCCD-RSM) การออกแบบการทดลองแบบแฟคทอเรียลเต็มรูปแบบสองระดับหรือ Full four-level factorial design (สี่ปัจจัยและสองระดับ) ที่มีสามจุดกลางได้ดำเนินการในส่วนแรก (แบบสุ่มโดยสมบูรณ์ของการทำงาน) เพื่อประเมินอิทธิพลของแต่ละปัจจัยที่ส่งผลต่อความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ เมื่อ

เปลี่ยนแปลงปัจจัยหนึ่งที่อยู่ในระดับของปัจจัยอื่นๆ สี่ปัจจัยที่เป็นอิสระ ได้แก่ ปริมาณเอมีนในตัวดูดซับ อัตราส่วนน้ำหนักตัวดูดซับต่ออัตราเร็วสายป้อน อุณหภูมิในการดักจับ และความเข้มข้นของแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ในแก๊สผสมขาเข้า ในหน่วยวัดเดิมจะถูกเข้ารหัสในตัวแปรไร้มิติ (Dimensionless variables) ซึ่งในแต่ละปัจจัยจะนำเสนอเป็นระดับต่ำ (-1), จุดกลาง (0) และระดับสูง (+1) และกำหนดให้ความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ของตัวดูดซับที่ใช้เป็นผลตอบสนอง (Responses) ปัจจัยอื่นๆ ที่อาจส่งผลกระทบต่อผลตอบสนองจะถูกจำกัดไว้ ได้แก่ ความดันในระบบ ณ ความดันบรรยากาศ และสภาวะการดูดซับในสภาวะแห้ง การทดสอบทั้งหมดได้ดำเนินการทดสอบซ้ำสามซ้ำและข้อมูลที่แสดงเป็นค่าเฉลี่ยของทั้งสาม

ในส่วนที่สองถัดมาเป็นการออกแบบพื้นที่ผิวตอบสนอง FCCCD-RSM เพื่อหาสภาวะที่เหมาะสมที่ให้ค่าความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์สูงสุด ขนาดของความแตกต่างในผลการทดลองที่ได้จากผลการประเมินถูกใช้ในการสะท้อนให้เห็นถึงความถูกต้องของแบบจำลองและรายงานผลในรูปแบบของร้อยละความผิดพลาด (Percentage error)

การทดสอบทั้งหมดได้ดำเนินการทำซ้ำสามซ้ำและข้อมูลเฉลี่ยวิเคราะห์ที่ระดับความเชื่อมั่นร้อยละ 95 ด้วยโปรแกรมสำเร็จรูปดีไซด์เอ็กซ์เพิร์ต 7.0 (Design-Expert 7.0 software package, Stat Ease Inc. Minneapolis, USA) รวมทั้งการวิเคราะห์ความแปรปรวน หรือ Analysis of variance (ANOVA) ร้อยละความผันแปร (Percentage of contribution) แผนภูมิพาเรโต (Pareto chart) ของผลกระทบมาตรฐานสัมบูรณ์ (Absolute standardized effects) และแผนภูมิส่วนตกค้าง (Residual plot) ผลกระทบของแต่ละปัจจัยที่ทดสอบโดยใช้การทดสอบแบบสตูเดนต์ (Student test) ที่สอดคล้องกับค่า P-value ปัจจัยที่มีค่า P-value น้อยกว่า 0.05 ได้รับการพิจารณาให้เป็น “นัยสำคัญทางสถิติ”

3.2.4 การทดสอบความสามารถในการเลือกดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์

การดำเนินการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ในภาวะแห้ง บรรจุตัวดูดซับสังเคราะห์ 0.3 กรัมในคอลัมน์การดูดซับ ก่อนเริ่มทำการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์จะทำการให้ความร้อนเริ่มต้นเพื่อทำความสะอาดพื้นผิวของตัวดูดซับ โดยทำการเพิ่มอุณหภูมิไปที่ 110 องศาเซลเซียส และคงอุณหภูมิไว้เป็นเวลา 30 นาที พร้อมกับผ่านแก๊สฮีเลียมเข้าสู่คอลัมน์การดูดซับที่อัตราการไหล 20 มิลลิลิตรต่อนาที จากนั้นลดอุณหภูมิของระบบการดูดซับจนถึงระดับที่ต้องการ ที่อุณหภูมิ 80 องศาเซลเซียส และเปลี่ยนแก๊สขาเข้าจากแก๊สฮีเลียมเป็นแก๊สผสมซึ่งประกอบด้วยคาร์บอนไดออกไซด์ดูลด้วยไฮโดรเจนที่ความเข้มข้นร้อยละ 30 โดยปริมาตร เข้าสู่ระบบ ทำการ

ตรวจวัดคาร์บอนไดออกไซด์ขาออกทุกๆ 2 นาทีด้วยเครื่องแก๊สโครมาโทกราฟี สิ้นสุดการดูดซับที่ภาวะสมดุล โดยความเข้มข้นคาร์บอนไดออกไซด์ขาออกเท่ากับความเข้มข้นคาร์บอนไดออกไซด์ขาเข้า และคำนวณหาความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ในหน่วยของมิลลิโมลคาร์บอนไดออกไซด์ต่อกรัมของตัวดูดซับ ($\text{mmol CO}_2/\text{g sorbent}$)

3.2.5 การทดสอบความคงทนของตัวดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์

การดำเนินการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ในภาวะแห้ง บรรจุตัวดูดซับสังเคราะห์ 0.3 กรัมในคอลัมน์การดูดซับ ก่อนเริ่มทำการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์จะทำการให้ความร้อนเริ่มต้นเพื่อทำความสะอาดพื้นผิวของตัวดูดซับ โดยทำการเพิ่มอุณหภูมิไปที่ 110 องศาเซลเซียส และคงอุณหภูมิไว้เป็นเวลา 30 นาที พร้อมกับผ่านแก๊สฮีเลียมเข้าสู่คอลัมน์การดูดซับที่อัตราการไหล 20 มิลลิลิตรต่อนาที จากนั้นลดอุณหภูมิของระบบการดูดซับจนถึงระดับที่ต้องการ ที่อุณหภูมิ 80 องศาเซลเซียส และเปลี่ยนแก๊สขาเข้าจากแก๊สฮีเลียมเป็นแก๊สผสมซึ่งประกอบด้วยคาร์บอนไดออกไซด์ดูลด้วยฮีเลียมที่ความเข้มข้นร้อยละ 30 โดยปริมาตร เข้าสู่ระบบ ทำการตรวจวัดคาร์บอนไดออกไซด์ขาออกทุกๆ 2 นาทีด้วยเครื่องแก๊สโครมาโทกราฟี สิ้นสุดการดูดซับที่ภาวะสมดุล โดยความเข้มข้นคาร์บอนไดออกไซด์ขาออกเท่ากับความเข้มข้นคาร์บอนไดออกไซด์ขาเข้า การคำนวณหาความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ในหน่วยของมิลลิโมลคาร์บอนไดออกไซด์ต่อกรัมของตัวดูดซับ ($\text{mmol CO}_2/\text{g sorbent}$)

การดำเนินการคายซับคาร์บอนไดออกไซด์ โดยปิดการป้อนแก๊สทุกชนิดและทำการเพิ่มอุณหภูมิไปที่ 110 องศาเซลเซียส จากนั้นป้อนแก๊สฮีเลียมที่อัตราการไหล 20 มิลลิลิตรต่อนาที ทำการตรวจวัดคาร์บอนไดออกไซด์ขาออกทุกๆ 2 นาทีด้วยเครื่องแก๊สโครมาโทกราฟี จนสิ้นสุดการคายซับที่ความเข้มข้นคาร์บอนไดออกไซด์เป็นศูนย์ และคำนวณหาความสามารถในการดูดซับคาร์บอนไดออกไซด์ในหน่วยของมิลลิโมลคาร์บอนไดออกไซด์ต่อกรัมของตัวดูดซับ ($\text{mmol CO}_2/\text{g sorbent}$)

ดำเนินการทดลองซ้ำในส่วนการดูดซับ/คายซับคาร์บอนไดออกไซด์เป็นวัฏจักรจนครบ 6 รอบ

3.3 การวิเคราะห์คุณลักษณะตัวดูดซับ

การวิเคราะห์คุณลักษณะของตัวดูดซับไฮโดรทาลไซต์ที่ปรับปรุงด้วยโซเดียมโดเดซิลซัลเฟตและดัดแปรด้วยเตตระเอทิลีนเพนตามีน ประกอบด้วย

- หาหมู่ฟังก์ชันบนตัวดูดซับด้วยเทคนิคฟูเรียร์ทรานสฟอร์มอินฟราเรดสเปกโตรสโคป (Fourier transform infrared spectroscopy, FTIR)
- หาปริมาณเอมีนในตัวดูดซับด้วยซีเอชเอ็นอานาไลเซอร์ (CHN analyzer)
- ศึกษาลักษณะโครงสร้างผลึกของตัวดูดซับด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ (X-ray diffractometer, XRD)
- หาพื้นที่ผิวจำเพาะ ปริมาตรรูพรุน และขนาดเส้นผ่าศูนย์กลางเฉลี่ยของรูพรุนด้วยเทคนิคบีอีที (The Brunauer-Emmet-Teller, BET)