

## การแยกแก๊สไนโตรเจน/คาร์บอนไดออกไซด์/มีเทนในแก๊สธรรมชาติด้วยเมมเบรนฐานไคโตซาน Separation of Nitrogen/carbon dioxide/methane in Natural Gas by Chitosan Based Membrane

ณัฐศิษฐ์ ม่วงมันดี (Nattasid Muangmandee)\* ดร.ขันทอง สุนทรารากา (Dr.Khantong Soontarapa)\*\*

### บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้ใช้เมมเบรนฐานไคโตซานแบบเนื้อแน่นที่ผลิตในประเทศเพื่อศึกษาการแยกแก๊สไฮโดรคาร์บอนออกจากแก๊สอินทรีย์ เมมเบรนฐานไคโตซานได้จากการผสมผงซีโอไลต์ 4A ที่ผลิตในประเทศลงในสารละลายไคโตซานในปริมาณ 0, 10 และ 30% โดยน้ำหนัก ศึกษาเมมเบรนฐานไคโตซานทั้งชนิดไม่เชื่อมขวางและเชื่อมขวางด้วยกรดซัลฟิวริก ศึกษาลักษณะสมบัติของเมมเบรน ได้แก่ พื้นที่ผิวจำเพาะและขนาดรูพรุนของเมมเบรนด้วยเครื่อง BET โครงสร้างทางเคมีด้วยเครื่อง FTIR และลักษณะสัณฐานวิทยาด้วยเครื่อง SEM ศึกษาสมรรถนะการแยกแก๊สของเมมเบรนในทอมของค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สแต่ละชนิดและค่าการแยกคู่แก๊ส ณ อุณหภูมิห้องและความดันขาเข้าเท่ากับ 4 บาร์เกจ พบว่าเมมเบรนที่เหมาะสมในการใช้แยกแก๊สมีเทนออกจากแก๊สไนโตรเจนและคาร์บอนไดออกไซด์ คือเมมเบรนฐานไคโตซานแบบไม่เชื่อมขวางที่มีปริมาณซีโอไลต์ 30% โดยน้ำหนัก ซึ่งทำให้ค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สไนโตรเจน มีเทน และคาร์บอนไดออกไซด์เพิ่มขึ้นจาก 132.3±7.1, 189.4±15.7 และ 109.1±4.5 บาร์เรอร์ เป็น 461.0±15.3, 645.3±13.3 และ 291.6±9.4 บาร์เรอร์ ตามลำดับ และทำให้ค่าการแยกคู่แก๊สมีเทนต่อคาร์บอนไดออกไซด์เพิ่มขึ้นจาก 1.6±0.1 เป็น 2.2±0.1 เมื่อปริมาณซีโอไลต์เพิ่มขึ้นจาก 0 เป็น 30% โดยน้ำหนัก

### ABSTRACT

In this work, locally commercial dense chitosan based membranes were used to study separation of hydrocarbon gas from inorganic gases. Chitosan based membranes were prepared by adding locally commercial zeolite 4A powder into the chitosan solution in the amount of 0, 10 and 30% by weight. Both uncrosslinked and sulfuric acid crosslinked chitosan based membranes were studied. Membranes were characterized for surface area and pore size by BET, chemical structure by FTIR and morphology by SEM. Gas separation performances of membrane were measured in term of permeability coefficient of individual gas and separation factor of pair gas at room temperature and 4 barg. The results showed that the suitable membrane for separation of methane from nitrogen and carbon dioxide was uncrosslinked chitosan-30% zeolite membrane. It was found that the permeability coefficient of nitrogen, methane and carbon dioxide were increased from 132.3±7.1, 189.4±15.7 and 109.1±4.5 to 461.0±15.3, 645.3±13.3 and 291.6±9.4 Barrers, respectively. The separation factor of CH<sub>4</sub>/CO<sub>2</sub> was increased from 1.6±0.1 to 2.2±0.1 when increasing of zeolite content from 0 to 30%w/w.

**คำสำคัญ:** แก๊สธรรมชาติ การแยกแก๊ส เมมเบรนฐานไคโตซาน

**Keywords:** Natural gas, Gas separation, Chitosan based membrane

\* นิสิต หลักสูตรวิทยาศาสตร์มหาบัณฑิต สาขาวิชาเคมีเทคนิค คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

\*\* รองศาสตราจารย์ สาขาวิชาเคมีเทคนิค คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

## บทนำ

แก๊สธรรมชาติเป็นเชื้อเพลิงฟอสซิลที่สำคัญถือเป็นเชื้อเพลิงที่ปลอดภัย (เนื่องจากมีน้ำหนักเบาที่อากาศจึงลอยขึ้นเมื่อรั่ว) และสะอาด ซึ่งโดยธรรมชาติไม่มีสี และไม่มีกลิ่น ใช้เป็นเชื้อเพลิงได้โดยตรงโดยไม่จำเป็นต้องผ่านกระบวนการต่าง ๆ เหมือนอย่างน้ำมันและแก๊สหุงต้ม หรือใช้เป็นวัตถุดิบในการผลิตผลิตภัณฑ์ปิโตรเคมีต่าง ๆ หลังผ่านกระบวนการแยกในโรงแยกแก๊สฯ ผลิตได้เองจากแหล่งในประเทศ จึงช่วยลดการนำเข้าพลังงานเชื้อเพลิงอื่น ๆ แก๊สธรรมชาติมีส่วนทั่วไปดังนี้ มีเทน 70 – 90% อีเทน โพรเพน และบิวเทนรวมกัน 0 – 20% คาร์บอนไดออกไซด์ 0 – 8% ออกซิเจน 0 – 0.2% ไนโตรเจน 0 – 0.5% ไฮโดรเจนซัลไฟด์ 0 – 5% และแก๊สอื่นๆ (อาร์กอน ซีเลียม นีออน ซีนอน) เล็กน้อย (วิกิพีเดีย, 2559) เพื่อเพิ่มค่าความร้อนของแก๊สมีเทนที่จะนำไปใช้เป็นเชื้อเพลิงควรมีการแยก แก๊สมีเทนออกจากแก๊สอินทรีย์อื่น ๆ ซึ่งทางเลือกหนึ่งคือการใช้เทคโนโลยีเมมเบรน เพราะเมื่อเปรียบเทียบกับกระบวนการอื่น ๆ มีราคาต้นทุนที่ต่ำกว่า ใช้พลังงานน้อยกว่า และกระบวนการไม่ซับซ้อน เพื่อการพัฒนาที่ยั่งยืน งานวิจัยนี้สนใจกระบวนการแยกแก๊สไฮโดรคาร์บอนออกจากแก๊สอินทรีย์ด้วยเมมเบรนไคโตซานแบบเนื้อแน่น (Dense membrane) ซึ่งพาณิชย์ที่ผลิตได้ในประเทศ นอกจากนั้นงานวิจัยนี้ยังสนใจใช้เมมเบรนไคโตซานที่อยู่ในลักษณะของมิกซ์เมทริกซ์เมมเบรน (Mixed matrix membrane) ซึ่งเป็นเมมเบรนที่เตรียมได้จากการเติมสารตัวเติมอินทรีย์ (Inorganic filler) เข้าไปแทรกอยู่ในโครงสร้างของพอลิเมอร์

เมมเบรนแบบเนื้อแน่นสามารถอธิบายการถ่ายโอนมวลที่เกิดขึ้นในเมมเบรนด้วยกลไกการละลาย-การแพร่ (Solution diffusion mechanism) ที่ประกอบด้วย 3 ขั้นตอน คือ 1) โมเลกุลแก๊สดูดซับบนผิวของเมมเบรนด้านขาเข้า 2) เกิดการแพร่ของโมเลกุลแก๊สผ่านเมทริกซ์ของพอลิเมอร์จากทางด้านขาเข้าไปยังด้านขาออก และ 3) โมเลกุลแก๊สระเหยออกจากเมมเบรนเป็นเพอร์มิเอตทางด้านขาออก สัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านเมมเบรน (P: permeability coefficient) จึงเป็นผลคูณของสัมประสิทธิ์การแพร่ (D: diffusion coefficient) และสัมประสิทธิ์การละลาย (S: solubility coefficient) ดังแสดงในสมการที่ (1) โดยในการแยกแก๊สด้วยเมมเบรนสามารถแสดงความสามารถในการแยกแก๊สผสมออกจากกันได้ด้วยค่าการแยกแก๊ส ( $\alpha_{A/B}$ : separation factor or permselectivity) นิยามตามสมการที่ (2)

$$P = DS \quad (1)$$

$$\alpha_{A/B} = \frac{P_A}{P_B} \quad (2)$$

โดย  $P_A$  และ  $P_B$  คือ ค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านเมมเบรนของแก๊ส A และ B ตามลำดับ

ทำให้ระบบการแยกแก๊สด้วยเมมเบรนมี 2 แบบ ขึ้นกับชนิดของโมเลกุลแก๊สและสมบัติของเมมเบรน คือแบบ Solubility-based gas separation เมื่อผลของการแยกเนื่องมาจากความแตกต่างของค่าสัมประสิทธิ์การละลายของโมเลกุลแก๊สในเมมเบรนเป็นหลัก และแบบ Diffusivity-based gas separation เมื่อผลของการแยกเนื่องมาจากความสามารถในการแพร่ของโมเลกุลแก๊สในเมมเบรนที่แตกต่างกัน (Freeman, Pinnau, 1999) เพื่อให้ได้ทั้งสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านเมมเบรน (P) และค่าการแยกแก๊ส ( $\alpha_{A/B}$ ) สูง งานวิจัยนี้ใช้มิกซ์เมทริกซ์เมมเบรน (Mixed matrix membrane) ของไคโตซาน-ซีโอไลต์ ซึ่งเตรียมได้จากการเติมผงซีโอไลต์ลงไปในสารละลายของไคโตซาน โดยคาดหวังว่าจะทำให้ค่าการแยกแก๊สเพิ่มขึ้น เนื่องจากซีโอไลต์เป็น สารประกอบอะลูมิเนียมซิลิเกต (Crystalline aluminosilicates) ที่มีหน่วยย่อยประกอบด้วย อะตอมของซิลิคอน (หรือ อะลูมิเนียม) หนึ่งอะตอม และออกซิเจนสี่อะตอม ( $\text{SiO}_4$  หรือ  $\text{AlO}_4$ ) สร้างพันธะกันเป็นรูปสามเหลี่ยมสี่หน้า (Tetrahedron) โดยมีอะตอมของซิลิคอน (หรือ

อะลูมิเนียม) อยู่ตรงกลางล้อมรอบด้วยอะตอมของออกซิเจนที่มุมทั้งสี่ โครงสร้างสามเหลี่ยมที่หน้าจะเชื่อมต่อกันที่มุม (ใช้ออกซิเจนร่วมกัน) ก่อให้เกิดเป็น โครงสร้างที่ใหญ่ขึ้นและเกิดเป็น ช่องว่างระหว่างโมเลกุล (คนทำงาน, 2551)

### วัตถุประสงค์การวิจัย

ศึกษาผลการแยกแก๊สใน โครเจน/คาร์บอน ไดออกไซด์/มีเทน ด้วยเมมเบรนฐานไคโตซาน-ซีโอไลต์

### วิธีการวิจัย

#### วัสดุเมมเบรนและการศึกษาลักษณะสมบัติ

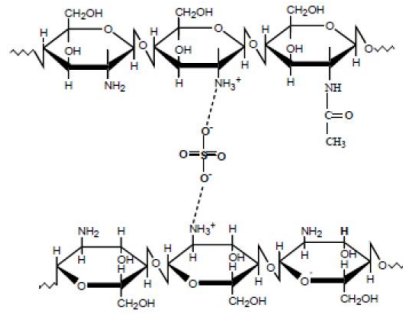
งานวิจัยนี้ใช้เมมเบรนฐานไคโตซานแบบเนื้อแน่น (Dense chitosan based membrane) ทั้งแบบไม่เชื่อมขวาง และแบบเชื่อมขวางที่มีปริมาณซีโอไลต์ 0, 10 และ 30% โดยน้ำหนัก ที่ได้รับความอนุเคราะห์จากบริษัท เอส เอส เมมเบรน จำกัด โดยเมมเบรนแบบเชื่อมขวางเป็นการเชื่อมขวางแบบไอออนิกของกรดซัลฟิวริกดังแสดงในรูปที่ 1 ซีโอไลต์ที่ใช้เป็น Zeolite Na-4A ชนิดผงที่มีขนาดอนุภาคเฉลี่ย 2.6 ไมครอน จากบริษัทไทยซิลิเกต เคมีคัล จำกัด ศึกษา พื้นที่ผิว และขนาดของรูพรุนในเมมเบรนด้วยเครื่อง BET รุ่น Quantachrome, Autosorb-1 ศึกษาโครงสร้างทางเคมีของเมมเบรนด้วย FTIR Thermo รุ่น Nicolet 6700 และตรวจสอบลักษณะพื้นฐานวิทยาทั้งพื้นที่ผิวและภาพตัดขวางของเมมเบรนด้วย FESEM รุ่น 7610F

#### อุปกรณ์การทดลอง

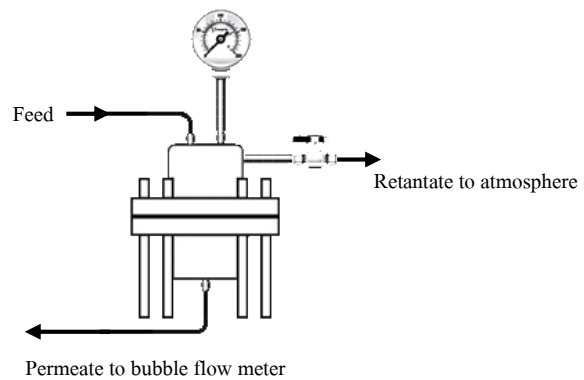
เครื่องมือที่ใช้ในการทดสอบค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านเมมเบรนของแก๊สในงานวิจัยนี้เป็นแบบทำงานความดันคงที่ ที่พัฒนาขึ้นเองโดยกลุ่มวิจัยดังแสดงในรูปที่ 2 ตัดเมมเบรนเป็นวงกลมมีขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางเท่ากับฐานรองรับของเซลล์เมมเบรนเท่ากับ 4.2 เซนติเมตร เมื่อวางโอริง (O ring) บนแผ่นเมมเบรนเพื่อการประกบหน้าแปลน เซลล์เมมเบรนให้แน่นสนิท ทำให้มีขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางของเมมเบรนที่สัมผัสกับแก๊สเท่ากับ 3.2 เซนติเมตร ผ่านแก๊สที่ต้องการทดสอบเข้าทางด้านบนของเซลล์เมมเบรน วัดอัตราการไหลของแก๊สที่ผ่านออกจากเมมเบรน นำมาคำนวณค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สตามสมการที่ (3) (จันทร์ทอง, 2547; Harlacher, Wessling, 2015) แสดงในหน่วย บาร์เรอร์ (โดย 1 บาร์เรอร์ =  $10^{-10}$  (cm<sup>3</sup><sub>STP</sub>×cm)/(s×cm<sup>2</sup>×cmHg)) และค่าการแยกคู่แก๊สตามสมการที่ (2) โดยในงานวิจัยนี้ทำการทดสอบค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สใน โครเจน แก๊สคาร์บอน ไดออกไซด์ และแก๊สมีเทน ทีละชนิด ที่ความดันขาเข้าเท่ากับ 4 บาร์เกจ (ความดันต่างเท่ากับ 4 บาร์) ณ อุณหภูมิห้อง

$$P = \frac{QL}{A\Delta P} \quad (3)$$

โดย P = ค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊ส (Barrer; บาร์เรอร์)  
Q = อัตราการไหลของแก๊สผ่านเมมเบรน (Scgs; cm<sup>3</sup><sub>STP</sub> /s)  
L = ความหนาของเมมเบรน (cm)  
 $\Delta P$  = ความดันต่าง (cmHg)  
A = พื้นที่ของเมมเบรนที่ตั้งฉากกับทิศทางการไหล (cm<sup>2</sup>)



รูปที่ 1 โครงสร้างเชื่อมขวางแบบไอออนิกของไคโตซานด้วยกรดซัลฟิวริก (Lee et al., 1998)



รูปที่ 2 ชุดทดสอบการแพร่ผ่านแก๊ส

(ซ้าย) ภาพถ่ายชุดทดสอบ (ขวา) ไคอะแกรมชุดทดสอบ

## ผลการวิจัย

### ลักษณะสมบัติของเมมเบรน

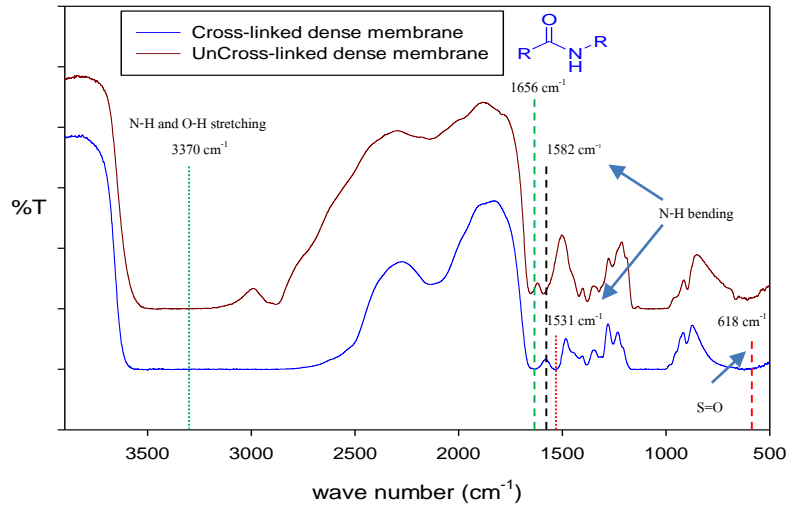
ตารางที่ 1 แสดงผลการหาพื้นที่ผิวจำเพาะและขนาดของรูพรุนของเมมเบรนฐานไคโตซานที่ใช้งานวิจัยนี้ พบว่าการเติมผงซีโอไลต์ลงไปในการละลายพอลิเมอร์ไคโตซาน เมื่อทำเป็นแผ่นเมมเบรน ทำให้เมมเบรนฐานไคโตซานทั้งแบบไม่เชื่อมขวางและแบบเชื่อมขวางมีพื้นที่ผิวจำเพาะเพิ่มขึ้นจาก 0.491 เป็น 0.706  $\text{m}^2/\text{g}$  และ 2.667 เป็น 2.965  $\text{m}^2/\text{g}$  ตามลำดับ โดยไม่ทำให้ขนาดรูพรุนเฉลี่ยของเมมเบรนเปลี่ยนไปมากนัก (22.52 และ 23.18 Å สำหรับเมมเบรนไคโตซานแบบไม่เชื่อมขวางที่มีปริมาณซีโอไลต์ 0 และ 30% ตามลำดับ หรือ 22.83 และ 22.87 Å สำหรับเมมเบรนไคโตซานแบบเชื่อมขวางที่มีปริมาณซีโอไลต์ 0 และ 30% ตามลำดับ) แต่ทั้งหมดมีค่าต่ำกว่าของผงซีโอไลต์ซึ่งเท่ากับ 3.127  $\text{m}^2/\text{g}$  แสดงว่าผงซีโอไลต์ที่เติมลงไปในการละลายพอลิเมอร์ไคโตซาน น่าจะกระจายแทรกตัวอยู่ในพอลิเมอร์เมทริกซ์ เพราะพื้นที่ผิวจำเพาะและขนาดของรูพรุนของเมมเบรนฐานไคโตซานที่วัดได้ใกล้เคียงกับเมมเบรนที่ไม่มีเติมซีโอไลต์มากกว่า นอกจากนี้ยังมีขนาดรูพรุนเฉลี่ยในเมมเบรนไคโตซานทั้งแบบ ไม่เชื่อมขวางและแบบเชื่อมขวางและที่ไม่มีและที่มีการผสมผงซีโอไลต์ใกล้เคียงกัน การที่เมมเบรนฐานไคโตซาน แบบเชื่อมขวางมีพื้นที่ผิวจำเพาะสูงกว่าเมมเบรนฐานไคโตซานแบบไม่เชื่อมขวาง คาดว่าเนื่องจากผลของการ เชื่อมขวางระหว่างสายโซ่พอลิเมอร์คนละสายโซ่ด้วยกรดซัลฟิวริกที่หมู่เอมีนดังแสดงในรูปที่ 1 ข้างต้น ทำให้เกิด ช่องว่างระหว่างสายโซ่ที่แข็งแรง (Rigid gap) ห่างขึ้น

ตารางที่ 1 ผลการทดสอบพื้นที่ผิวจำเพาะและขนาดของรูพรุนของเมมเบรนฐานไคโตซานและผงซีโอไลต์

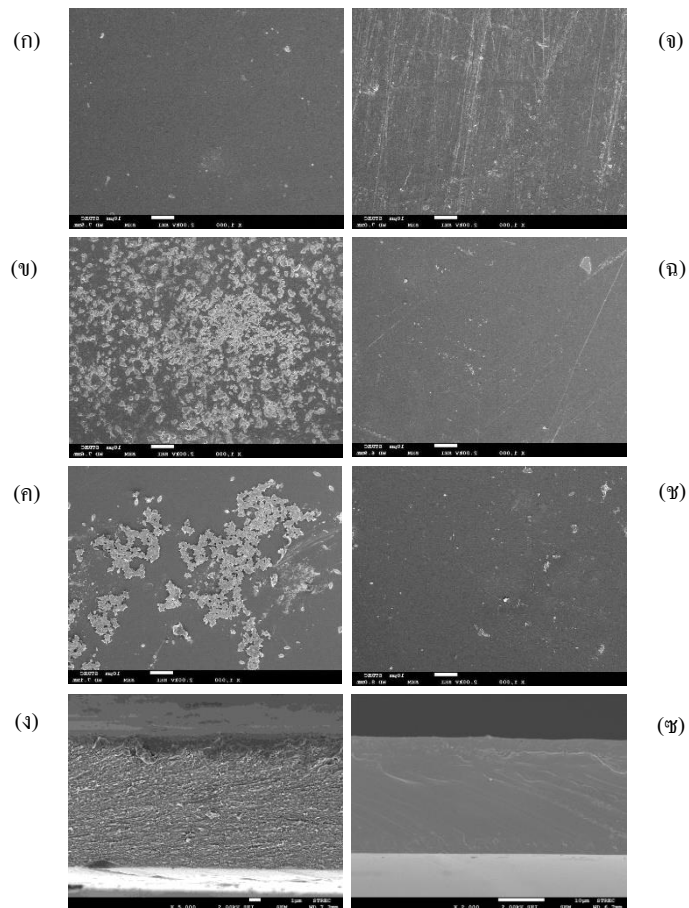
วัสดุ	Surface area (m <sup>2</sup> /g)	Average pore size (Å)
ผงซีโอไลต์	3.127	11.40
เมมเบรนแบบไม่เชื่อมขวาง (UCD)	0.491	22.52
เมมเบรนแบบไม่เชื่อมขวาง-ซีโอไลต์ 30% โดยน้ำหนัก (UCD 30% zeolite)	0.706	23.18
เมมเบรนแบบเชื่อมขวาง (CD)	2.667	22.83
เมมเบรนแบบเชื่อมขวาง-ซีโอไลต์ 30% โดยน้ำหนัก (CD 30% zeolite)	2.965	22.87

รูปที่ 3 แสดงโครงสร้างทางเคมีของเมมเบรนฐานไคโตซานแบบเชื่อมขวางและแบบไม่เชื่อมขวาง พบว่าเมมเบรนทั้งสองแบบปรากฏพีกสำคัญที่แสดงหมู่ฟังก์ชันของไคโตซาน คือพีกของหมู่ N-H และ O-H stretching ที่หมายเลขคลื่น 3370 cm<sup>-1</sup> และ Amine deformation (NH<sub>2</sub>) ที่หมายเลขคลื่น 1656 cm<sup>-1</sup> ผลการเชื่อมขวางเมมเบรนด้วยกรดซัลฟิวริกทำให้พบการเลื่อนของพีกหมู่ N-H bending จากที่หมายเลขคลื่น 1582 cm<sup>-1</sup> ไปที่หมายเลขคลื่น 1531 cm<sup>-1</sup> และเกิดพีกใหม่ที่หมายเลขคลื่น 618 cm<sup>-1</sup> ซึ่งเป็นพีกของหมู่ S-O จึงยืนยันได้ว่าเกิดพันธะของหมู่ซัลเฟตกับหมู่เอมีนของโครงสร้างไคโตซาน

รูปที่ 4 แสดงลักษณะสัณฐานวิทยาด้วยเทคนิค SEM ของเมมเบรนฐานไคโตซานแบบไม่เชื่อมขวาง (ก ถึง ง) ทั้งผิวหน้า (ก ถึง ค) และภาคตัดขวาง (ง) และของเมมเบรนฐานไคโตซานแบบเชื่อมขวาง (จ ถึง ช) ทั้งผิวหน้า (จ ถึง ข) และภาคตัดขวาง (ช) พบว่าเห็นผงซีโอไลต์ที่ผิวหน้าของเมมเบรนแบบไม่เชื่อมขวางมากกว่าบนผิวหน้าของเมมเบรนแบบเชื่อมขวาง อธิบายได้จากวิธีการเตรียมเมมเบรนแบบไม่เชื่อมขวาง หลังจากการละลายผสมกันของเกลือไคโตซานและผงซีโอไลต์ในสารละลายกรดแอสติกและขึ้นรูปเป็นแผ่นแล้ว จะแช่แผ่นเมมเบรนในสารละลายด่างโซเดียมไฮดรอกไซด์ ทำให้ซีโอไลต์เปลี่ยนรูปจาก H<sup>+</sup>-form กลับมาเป็นเกลือของโซเดียมตกผลึกบนผิวหน้าของเมมเบรน และหากมีปริมาณซีโอไลต์มากเกินไป เช่นที่ 30% โดยน้ำหนัก อาจสะสมเป็นชั้นบนผิวหน้าของเมมเบรนได้ ดังเห็นได้จากภาพภาคตัดขวางของเมมเบรนแบบไม่เชื่อมขวางที่ 30% โดยน้ำหนัก (CS-UCD 30% zeolite) ในรูปที่ 4 (ง) ขณะที่ซีโอไลต์ในเมมเบรนแบบเชื่อมขวางจะเปลี่ยนรูปจาก Na<sup>+</sup>-form กลับมาเป็น H<sup>+</sup>-form จากกรรมวิธีการเชื่อมขวางด้วยการแช่แผ่นเมมเบรนแบบไม่เชื่อมขวางในสารละลายกรดซัลฟิวริก ทำให้ซีโอไลต์ในรูปของ H<sup>+</sup>-form ละลายเข้าไปในเนื้อไคโตซาน และ/หรือละลายออกจากแผ่นเมมเบรนเข้าไปในสารละลายกรดซัลฟิวริกได้ ทำให้ไม่เห็นหรือเห็นน้อยมากของเกลือโซเดียมซีโอไลต์บนผิวหน้าของเมมเบรนแบบเชื่อมขวาง



รูปที่ 3 FT-IR spectra ของเมมเบรนไคโตซานแบบไม่เชื่อมขวางและแบบเชื่อมขวาง



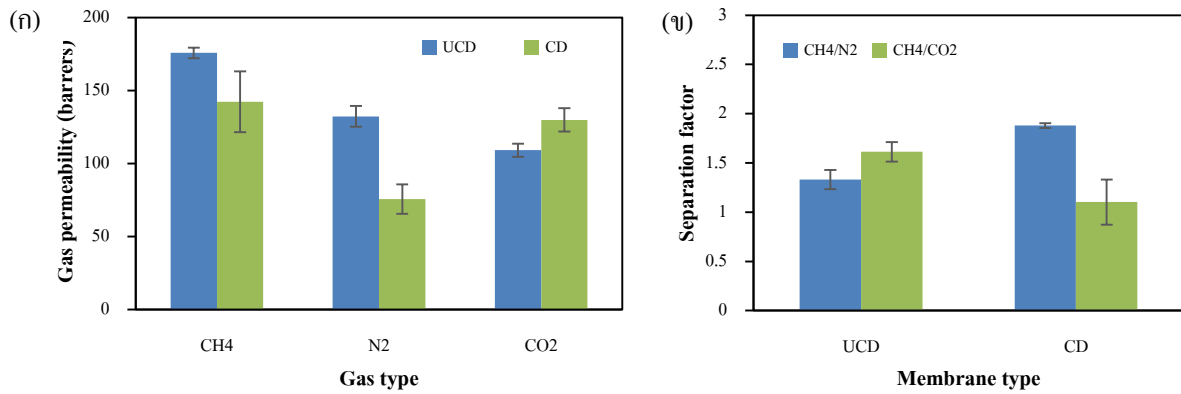
รูปที่ 4 ภาพ SEMของเมมเบรนฐานไคโตซาน

(ก) UCD 0% zeolite (ข) UCD 10% zeolite (ค) UCD 30% zeolite (ง) CS-UCD 30% zeolite

(จ) CD 0% zeolite (ฉ) CD 10% zeolite (ช) CD 30% zeolite (ซ) CS-CD 30% zeolite

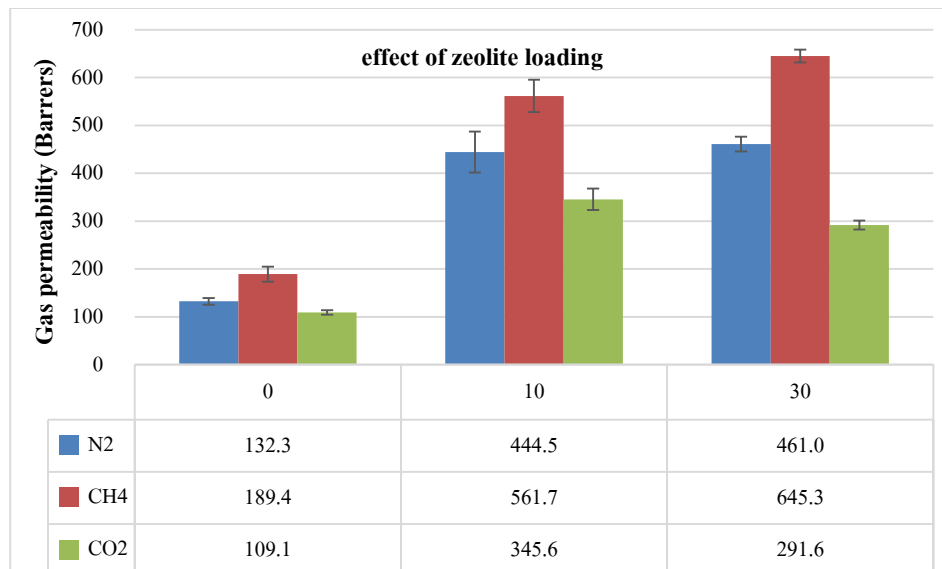
**สมรรถนะการแยกแก๊สของเมมเบรน**

สมรรถนะการแยกแก๊สของเมมเบรนสามารถแสดงในเทอมของค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สแต่ละชนิด และค่าการแยกแก๊ส โดยรูปที่ 5 แสดงเปรียบเทียบผลของชนิดเมมเบรน โคลิตซานเมื่อไม่มีซีโอไลต์ของแบบไม่เชื่อมขวางกับแบบเชื่อมขวาง รูปที่ 6 และ 7 แสดงผลของปริมาณซีโอไลต์ต่อค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊ส และ ค่าการแยกแก๊ส ตามลำดับ ของเมมเบรนฐานโคลิตซานแบบไม่เชื่อมขวาง แต่สำหรับเมมเบรนฐานโคลิตซาน แบบเชื่อมขวางพบว่าไม่มีแก๊สเพอร์มิเอตแพร่ผ่านเมมเบรนออกมาเมื่อเติมซีโอไลต์ลงไปในเมมเบรนทั้ง 2 สัดส่วน คือ 10% และ 30 % โดยน้ำหนัก

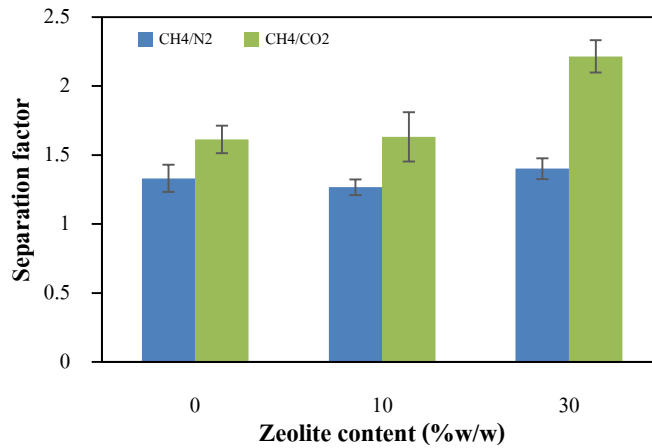


รูปที่ 5 สมรรถนะการแยกแก๊สของเมมเบรนแบบ ไม่เชื่อมขวางและแบบเชื่อมขวาง

(ก) ค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊ส (ข) ค่าการแยกแก๊ส



รูปที่ 6 ผลของปริมาณซีโอไลต์ต่อค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สของเมมเบรนฐานโคลิตซานแบบ ไม่เชื่อมขวาง



รูปที่ 7 ผลของปริมาณซีโอไลต์ต่อค่าการแยกคู่แก๊สของเมมเบรนฐานไคโตซานแบบไม่เชื่อมขวาง

### อภิปรายและสรุปผลการวิจัย

ค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สของเมมเบรนไคโตซานแบบไม่เชื่อมขวางที่แสดงในรูปที่ 5(ก) แสดงว่าการเคลื่อนที่ของโมเลกุลแก๊สผ่านเมมเบรนเป็นแบบ Knudsen diffusion เพราะมีค่า Mean free path (ตารางที่ 2) มากกว่าขนาดรูพรุนซึ่งมากกว่า 20 Å (ตารางที่ 1) และเป็นไปตามสมการของ Knudsen (May-Britt Hägg, 2009) ในสมการที่ (4) กล่าวคือสัมประสิทธิ์การแพร่เป็นสัดส่วนผกผันกับน้ำหนักโมเลกุล

$$D_{Kn} = \frac{d_p}{3} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M_A}} \quad (4)$$

โดย  $D_{Kn}$  = สัมประสิทธิ์การแพร่ (Diffusion coefficient),  $m^2/s$

$d_p$  = ขนาดรูพรุนเฉลี่ย (Average pore diameter), m

R = ค่าคงที่แก๊ส

T = อุณหภูมิสัมบูรณ์, K

$M_A$  = น้ำหนักโมเลกุลของโมเลกุลแก๊ส A, g/mol

ค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สของเมมเบรนไคโตซานแบบเชื่อมขวางที่แสดงในรูปที่ 5(ก) แสดงว่า การเคลื่อนที่ของโมเลกุลแก๊สผ่านเมมเบรนเป็นแบบ Solution diffusion โดยแก๊สมีเทนและแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ มีค่า Polarizability ในตารางที่ 2 ใกล้เคียงกัน และมีค่าการแยกคู่แก๊สในรูปที่ 5(ข) เท่ากับ 1.1

ผลของการเติมซีโอไลต์จาก 0 เป็น 30% โดยน้ำหนัก ทำให้ค่าสัมประสิทธิ์การแพร่ผ่านแก๊สในโตรเจน มีเทน และคาร์บอนไดออกไซด์เพิ่มขึ้นจาก 132.3±7.1, 189.4±15.7 และ 109.1±4.5 Barrers เป็น 461.0±15.3, 645.3±13.3 และ 291.6±9.4 Barrers ตามลำดับ แม้ว่าค่าการแยกคู่แก๊สมีเทนต่อในโตรเจน ไม่เปลี่ยนแปลงไปจากเดิมมากนัก แต่ค่าการแยกคู่แก๊สมีเทนต่อคาร์บอนไดออกไซด์เพิ่มขึ้นจาก 1.6±0.1 เป็น 2.2±0.1

สรุปได้ว่า เมมเบรนที่เหมาะสมในการใช้แยกแก๊สในโตรเจน/คาร์บอนไดออกไซด์/มีเทน คือเมมเบรนฐานไคโตซานแบบไม่เชื่อมขวางที่มีปริมาณซีโอไลต์ 30% โดยน้ำหนัก



ตารางที่ 2 สมบัติทางเคมีกายภาพ (Physico-chemical properties) ของโมเลกุลแก๊ส (Marco et al., 2009)

Molecule	Kinetic diameter (Å)	Polarizability (Å <sup>3</sup> )	Dipole moment (D)	Quadrupole moment (D Å)	Mean free path (Å)*
CH <sub>4</sub>	3.80	2.448	0.0	0.02	390
N <sub>2</sub>	3.64	1.710	0.0	1.54	481
CO <sub>2</sub>	3.30	2.507	0.0	4.30	588

หมายเหตุ: Å = Angstrom, D = Debye, \*(Hirschfelder et al., 1954)

### กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบคุณบริษัท เอส เอส เมมเบรน จำกัด และจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

### เอกสารอ้างอิง

ชั้นทอง สุนทรภา. เทคโนโลยีการแยกด้วยเมมเบรน. กรุงเทพฯ: สำนักพิมพ์แห่งจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย; 2547.

คนทำงาน. ซีโอดี [ออนไลน์] 24 กันยายน 2551 [อ้างเมื่อ 17 ธันวาคม 2559]. จาก <http://www.vcharkarn.com/vblog/38694>

วิกิพีเดีย. แก๊สธรรมชาติ [ออนไลน์] 2559 [อ้างเมื่อ 17 ธันวาคม 2559]. จาก <https://th.wikipedia.org/wiki/แก๊สธรรมชาติ>

Freeman BD, Pinnau I. Polymer Membranes for Gas and Vapor Separation. Washington, DC: American Chemical Society; 1999.

Harlacher T, Wessling M. Chapter 13 Gas - Gas Separation by Membranes. Progress in Filtration and Separation, Elsevier; 2015. p. 557–584.

Hirschfelder JO, Curtiss CF, Bird RB. Molecular Theory of Gases and Liquids. Wiley, Chapman & Hall; 1954.

Marco T, David F, Susana V, Sonia A, Ugo R, Caterina R, et al. Natural Gas Treating by Selective Adsorption: Material Science and Chemical Engineering Interplay. Chemical Engineering Journal 2009; 39(155): 553–566.

May-Britt Hägg. Chapter 4 Membranes in Gas Separation. Handbook of Membrane Separations: Chemical, Pharmaceutical, Food, and Biotechnological Applications. Taylor & Francis Group; 2009. p. 65–106.

Lee YM, Park HB, Nam SY, Won JM, Kim H. Separation Science and Technology 1998; 20(33): 1255–1269.