

Preparation and Optimization of Carbon Molecular Sieves for Carbon Monoxide Adsorption

Reza Zahedi

Ph.D. Student of Environmental Pollution,
Department of environment, Damavand
Branch, Islamic Azad University, Damavand,
Iran.

Hossein Ghafourian

* Professor, Department of environment
Engineering, Tehran North Branch, Islamic
Azad University, Tehran, Iran. (Corresponding
Author):

Email: ghafourian25@yahoo.com

Yahya Zamani

Assistant Professor, Gas research division
Research Institute of Petroleum Industry
(RIPI), Tehran, Iran.

Shahrzad Khoramnejhadian

Associate Professor, Department of
environment, Damavand Branch, Islamic
Azad University, Damavand, Iran.

Reza Dabbagh

Associate Professor, Nuclear Fuel cycle
Research School, Nuclear Sciences &
Technology Research Institute (NSTRI),
Tehran, Iran.

Received: 2022/01/17

Accepted: 2022/04/04

Document Type: Research article

ABSTRACT

Background and Aim: The carbon monoxide is an important compound which can convert to different chemical materials which is harmful to environment and humans. Selecting the mechanism and absorbent to absorption pollutant gases is very important due to the efficiency. This study aimed to optimize the carbon molecular sieves prepared which cause the adsorption of more carbon monoxide.

Materials and methods: In this study, a walnut shell was used to prepare a carbon molecular sieve and activate the carbon was used physical method. The adsorbents were optimized during two modifying and coating processes after granulation. The adsorbents were modified at pH = 4.5, 6.5, and 9 which layered with oil-kerosene and oil-thinner mixtures (1: 1 ratio). The adsorption capacity of carbon monoxide by the adsorbents was measured by the volumetric method under the same conditions (2g of adsorbent, 25 °C temperature, and 2 bar pressure).

Results: The highest efficiency among those with modified adsorbents for CMS_(Ac) with 0.281 mmol CO/g adsorbents and among those coated with oil-kerosene adsorbents for CMS_(Al-K) with 0/591 mmol CO/g adsorbent and among the adsorbents coated with oil-thinner and among all adsorbents for CMS_(Al-T) with 0.858 mmol CO/g adsorbents.

Conclusion: A carbon molecular sieve can absorb and reduce the concentration of CO, which is an environmental pollutant. Optimization causes to increase the adsorption efficiency.

Keywords: Adsorption Capacity, Carbon molecular sieve, CO, Coating, Modifying

► **Citation:** Zahedi R, Ghafourian H, Zamani Y, Khoramnejhadian Sh, Dabbagh R. Preparation and optimization of carbon molecular sieves for carbon monoxide adsorption. *Journal of Research in Environmental Health*. Summer 2022; 8(2): 113-122.

ساخت و بهینه‌سازی غربال‌های مولکولی کربنی به منظور جذب مونوکسید کربن

چکیده

زمینه و هدف: مونوکسید کربن ترکیب مهمی است که قابلیت تبدیل به مواد شیمیایی مختلف و آسیب رساندن به محیط زیست و انسان را دارد. انتخاب مکانیزم و جاذب جهت جذب گازهای آلاینده از لحاظ کارایی و هزینه، اهمیت بسزایی دارد. در مطالعه حاضر بهینه‌سازی غربال‌های مولکولی کربن ۱ ساخته شده با هدف جذب بیشتر مونوکسید کربن انجام شد.

مواد و روش‌ها: در این تحقیق از پوست گردو برای ساخت غربال مولکولی کربن و از روش فیزیکی برای فعال‌سازی کربن استفاده شد. بهینه‌سازی جاذب‌های دانه‌بندی شده طی دو فرآیند فرآوری و لایه‌گذاری انجام شد. جاذب‌ها در میزان درصد اسیدیته و قلیائیت (pH) برابر ۴/۵، ۶/۵ و ۹ فرآوری و با مخلوط‌های روغن - نفت و روغن - تینر (نسبت ۱:۱) لایه‌گذاری شدند. ظرفیت جذب مونوکسید کربن توسط جاذب‌ها در شرایط یکسان (۲ گرم جاذب، دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد و فشار ۲ بار) به روش حجمی اندازه‌گیری شد. **یافته‌ها:** بیشترین راندمان در میان جاذب‌های فرآوری شده، برای جاذب با $\text{pH} = 4/5$ CMS_(Ac) با ۰/۲۸۱ میلی‌مول مونوکسید کربن بر گرم و در میان جاذب‌های فرآوری شده و لایه‌گذاری شده با روغن - نفت برای جاذب با $\text{pH} = 9$ و لایه‌گذاری شده با روغن - نفت CMS_(Al-K) با ۰/۵۹۱ میلی‌مول مونوکسید کربن بر گرم و در میان جاذب‌های فرآوری شده و لایه‌گذاری شده با روغن - تینر و در میان تمام جاذب‌ها برای جاذب با $\text{pH} = 9$ و لایه‌گذاری شده با روغن - تینر CMS_(Al-T) با ۰/۸۵۸ میلی‌مول مونوکسید کربن بر گرم به‌دست آمد.

نتیجه‌گیری: غربال مولکولی کربن، توانایی جذب و کاهش غلظت مونوکسید کربن که از آلاینده‌های محیط زیست محسوب می‌شود را دارد. بهینه‌سازی، راندمان جذب را افزایش می‌دهد.

کلید واژه‌ها: ظرفیت جذب، غربال مولکولی کربنی، فرآوری، لایه‌گذاری، مونوکسید کربن

رضا زاهدی

دانشجوی دکتری تخصصی آلودگی محیط زیست، گروه محیط زیست، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد دماوند، دماوند، ایران.

حسین غفوریان

* استاد، گروه مهندسی محیط زیست، دانشکده علوم و فنون دریایی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران شمال، تهران، ایران (مسئول):

پست الکترونیک: ghaforian25@yahoo.com

یحیی زمانی

استادیار، پژوهشکده گاز، پژوهشگاه صنعت نفت، تهران، ایران.

شهرزاد خرم نژادیان

دانشیار، گروه محیط زیست، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد دماوند، دماوند، ایران.

رضا دباغ

دانشیار، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، تهران، ایران.

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۱۰/۲۷

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۱/۱۵

نوع مقاله: اصیل پژوهشی

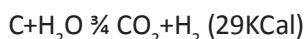
◀ **استناد:** زاهدی ر، غفوریان ح، زمانی ی، خرم نژادیان ش، دباغ ر. ساخت و بهینه‌سازی غربال‌های مولکولی کربنی به منظور جذب مونوکسید کربن. *فصلنامه پژوهش در بهداشت محیط*. تابستان ۱۴۰۱؛ ۸(۲): ۱۱۳-۱۲۲.

امروزه فرایندهای جذب و جداسازی، نقش مهمی در صنایع مختلف دارد (۱، ۲). تحقیقات زیادی در مورد جذب و جداسازی گازها توسط مواد جاذب مختلفی مانند ژئولیت (۳)، کربن فعال (۴، ۵) و نانولوله‌های کربنی (۶، ۷) و غربال‌های مولکول کربنی (۸-۱۰) انجام شده است. فرآیند فعال‌سازی کربن به دو روش فیزیکی (۱۱) و شیمیایی (۱۲) یا فیزیکوشیمیایی انجام می‌شود. در روش فیزیکی از بخار آب و دی‌اکسید کربن به‌تنهایی یا هر دو با هم استفاده می‌گردد. غربال‌های مولکولی کربنی به‌دلیل ماهیت خنثی بودن و همچنین داشتن ساختار منحصر به فرد، در مقایسه با ساختارهای دیگر غربال‌های مولکولی مانند ژئولیت‌ها، از مزایایی قبیل آب‌گریزی بالا، مقاومت شیمیایی در برابر اسیدها و بازها، پایداری ساختار کربنی در محیط‌های خنثی و دمای بالا و هزینه پایین ساخت برخوردارند و می‌توان از آنها در کاربردهای ویژه مانند جذب و جداسازی گازها استفاده کرد (۱۳). جاذب‌های مبتنی بر مواد کربنی به‌راحتی ساخته می‌شوند، ارزان، فراوان و پایدار هستند و می‌توان آنها را به‌راحتی بازسازی و استفاده مجدد نمود. ضایعات کشاورزی به‌دلیل دارا بودن این ویژگی‌ها مستعدترین مواد اولیه برای تولید کربن فعال و غربال مولکول کربنی هستند، از این میان می‌توان از مواد اولیه پوست نخل (۱۴)، تفاله نیشکر و پوست برنج (۱۵)، هسته زیتون (۱۶)، پوست بادام، سنگ زردآلو، پوست فندق (۱۷)، پوست گردو (۵، ۱۸، ۱۹)، پوست پسته (۱۹)، پوست نارگیل (۲۰) و غیره برای ساخت کربن فعال و غربال مولکول کربنی استفاده کرد. علاوه بر ضایعات کشاورزی، از مواد پلیمری و معدنی دیگری مانند مواد اولیه سنتز غربال مولکولی کربن از منابع کربنی مانند زغال سنگ (۲۱، ۲۲)، آنتراسیت (۲۳-۲۵)، رزین‌ها (۲۶)، روزنامه‌های باطله (۲۷) و غیره می‌توان استفاده کرد. غربال‌های مولکولی کربن توانایی جذب متان (۲۰، ۲۵)، دی‌اکسید کربن (۸، ۹، ۱۴، ۲۸)، مونوکسید کربن (۸، ۲۵)، نیتروژن، هیدروژن (۲۱، ۲۵) و جداسازی مخلوط‌های گازی از یکدیگر مانند مونوکسید کربن-هیدروژن-نیتروژن (۱۹)، متان-نیتروژن (۲۴، ۲۵)، متان-دی‌اکسید کربن

(۵، ۲۶، ۲۹) را دارند. گرمایش جهانی و تغییر اقلیم بر اثر انتشار گازهایی مانند متان، دی‌اکسید کربن، مونوکسید کربن و ... به‌وجود می‌آید و باعث افزایش میانگین دمای هوا، تشدید رویدادهای آب‌وهوایی، تغییر الگوهای آب‌وهوایی، ذوب شدن پوشش‌های یخی، بالا آمدن سطح آب دریاها، اسیدی شدن آب اقیانوس‌ها، تأثیر بر زندگی انسان و موجودات زنده می‌شود. گرمایش جهانی ناشی از افزایش غلظت گازهای گلخانه‌ای در جو، یکی از تهدیدهای نوظهور است که بشر را به چالش کشیده است (۳۰). مونوکسید کربن از آلاینده‌های مهم هوا و محیط زیست به‌شمار می‌رود که حذف و جلوگیری از انتشار آن از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است و می‌تواند باعث کاهش اثرات پدیده گلخانه‌ای و گرمایش جهانی زمین شود. این آلاینده ترکیب مهمی است که قابلیت تبدیل به مواد شیمیایی مختلف را دارد و بیشتر از احتراق ناقص سوخت تولید و منتشر می‌شود (۳۱). از عوامل افزایش تولید و انتشار مونوکسید کربن، استفاده از وسایل احتراقی فرسوده و احتراق ناقص به‌دلیل عدم اکسیژن کافی برای احتراق است. بیشترین انتشار این آلاینده هوا و محیط زیست از وسایل حمل‌ونقل مناطق شهری پرجمعیت است که جزء منابع آلاینده‌های غیر نقطه‌ای هوا محسوب می‌شوند (۳۲). با توجه به اینکه مقررات محیط زیست به‌طور قابل قبولی سختگیرانه‌تر می‌شود، صنایع و منابع آلاینده باید ابزارهای مقرون به‌صرفه اقتصادی برای کاهش انتشار آلاینده‌ها تا سطوح قابل قبول را در نظر بگیرند. در این تحقیق غربال مولکولی کربن از پوست گردو تهیه شد و از روش فیزیکی در فرآیند فعال‌سازی کربن استفاده گردید. غربال مولکولی کربن پس از ساخت، با مش ۱۶ و ۳۰ در اندازه ۱۱۸۰-۶۰۰ میکرومتر دانه‌بندی شده است. در این تحقیق غربال مولکول کربنی دانه‌بندی شده جهت بهینه‌سازی، فراآوری و لایه‌گذاری شدند. برای فراآوری و لایه‌گذاری از روش‌هایی که برای اولین بار انجام شده، استفاده گردید. برای فراآوری از سه محلول با اسیدیته‌های مختلف (۴/۵، ۶/۵ و ۹) استفاده شد. از روغن ضایعاتی موتور اتوموبیل که از این پس روغن نامیده

شد (مرحله اول ۸۰۰-۷۰۰ درجه سانتی گراد و مرحله دوم ۹۰۰-۸۵۰ درجه سانتی گراد). تمام مراحل ساخت در شکل ۱ آورده شده است. این واکنش ها با مصرف مقداری از کربن موجود و همچنین خارج نمودن مواد قیری شکل باقی مانده از مرحله گرما کافت، باعث باز شدن، گسترش بهتر و اتصال داخلی حفرات کربن می شوند و در نتیجه مساحت داخلی منافذ به شکل قابل توجهی افزایش می یابد. برای تبدیل مواد کریونیزه شده به گاز به وسیله بخار آب و دی اکسید کربن از واکنش های زیر استفاده شد:

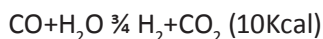
واکنش شماره ۱:



واکنش شماره ۲:



واکنش شماره ۳:



دانه بندی غربال های مولکولی کربن

غربال های مولکولی کربن توسط الک های ۱۶ و ۳۰ بر اساس استاندارد مشخصات تور سیمی و الکها برای اهداف آزمایشگاهی^۲ (۳۳) در اندازه های ۱۱۸۰-۶۰۰ میکرون دانه بندی شدند.

فرآوری غربال های مولکول کربنی

غربال مولکولی کربن با اسیدیته ۶/۵ (CMS_(Ra))

پس از ساخت غربال مولکول کربنی، ابتدا میزان آن طبق استاندارد روش تعیین درصد اسیدیته و قلیابیت (pH) کربن فعال^۳ اندازه گیری شدند (۳۴). ابتدا اسیدیته آب مقطر را اندازه گیری نموده و سپس ۱۰۰ میلی لیتر آب مقطر به بشر حاوی ۱۰ گرم کربن فعال اضافه گردید. با هم زن مغناطیسی آشفته گی آرامی در بشر حاوی مخلوط آب و غربال مولکول کربنی به وجود آورده، هم زدن را متوقف، محلول را صاف نموده، بدون تأخیر میزان درصد اسیدیته و قلیابیت (pH) آن اندازه گیری شد که میزان آن خنثی (۶/۵) بود.

نمونه جاذب با اسیدیته ۴/۵ (CMS_(Ac))

به منظور آزادسازی حفره ها از مواد رسوبی، اسیدشویی صورت گرفت. غربال مولکولی کربن به نسبت ۱۰ گرم به ۱۰۰ میلی لیتر

می شود، برای لایه گذاری استفاده شد. در فرآیند لایه گذاری، جاذب ها با استفاده از مخلوط های روغن - نفت و روغن - تینر (نسبت ۱:۱) لایه گذاری شدند. پس از هر مرحله، جاذب های مذکور خشک و کلسینه شدند. قابل ذکر است با توجه به تحقیقات اندکی که در زمینه جذب گاز مونوکسید کربن توسط غربال های مولکولی کربن انجام شده است، مطالعه حاضر با هدف اندازه گیری و بررسی ظرفیت جذب گاز مونوکسید کربن توسط غربال های مولکول کربنی ساخته شده و دانه بندی شده بدون فرآوری، فرآوری شده بدون لایه گذاری، فرآوری شده و لایه گذاری شده و انتخاب جاذبی که دارای بیشترین ظرفیت جذب گاز مونوکسید کربن است، انجام شد.

روش کار

مواد و تجهیزات مورد استفاده

در این تحقیق از پوست گردو برای غربال مولکولی کربن، گاز مونوکسید کربن و نیتروژن ۹۹٪ (شرکت آرکان)، روغن، تینر، نفت، نیتریک اسید ۶۵٪، هیدروکساید سدیم ۹۹٪، دستگاه اندازه گیری جذب گاز به روش حجمی، دستگاه اندازه گیری تخلخل و سطح ویژه^۱، ترازوی دیجیتالی، pH متر، دستگاه آون، همزن مغناطیسی، پمپ خلاء، حسگر دما، حمام آب و یخ استفاده شد.

مراحل ساخت غربال مولکولی کربن

برای ساخت ۵۰ گرم غربال مولکول کربنی، مقدار ۱ کیلوگرم پوست گردو استفاده شد؛ بدین صورت که ابتدا پوست گردو را پاک سازی و خرد کرده و در دمای ۱۱۰ درجه سانتی گراد حرارت داده تا رطوبت مواد خارج شود، سپس به مدت ۶۰ دقیقه در دمای حدود ۳۰۰ درجه حرارت داده تا تمام ترکیبات آلی خارج شود. در مرحله آخر در دمای ۴۵۰ تا ۵۵۰ درجه سانتی گراد به مدت ۲-۴ ساعت حرارت داده تا مواد به زغال تبدیل شود. تمام مراحل ذکر شده در غیاب هوا انجام شد.

برای فعال سازی کربن در این تحقیق، روش فیزیکی انتخاب و انجام گردید. فعال سازی کربن با حضور بخار آب و دی اکسید کربن در کوره دوار در دمای ۹۰۰-۷۰۰ درجه سانتی گراد در دو مرحله انجام

2. Wire Cloth and Sieves for Testing Purposes) ASTM E-11)
3. Standard Test Method for pH of Activated Carbon (ASTM D-3838)

1. Brunauer Emmett Teller) BET)

مخلوط و هم زده شد.

- ته‌نشینی: مدت ۳۰ دقیقه مخلوط در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد قرار داده شد.
- جداسازی: لجن ته‌نشین شده از مخلوط جدا شد.

روش لایه‌گذاری غربال‌های مولکولی کربنی

غربال‌های مولکولی کربنی ساخته شده به مدت ۱ ساعت به نسبت ۱ گرم در ۵۰ میلی‌لیتر مخلوط صاف شده روغن-نفت و روغن-تینر غوطه‌ور نموده، سپس به کمک کاغذ صافی، غربال‌های مولکولی کربنی از مخلوط‌ها جدا گردید.

خشک کردن و تکلیس غربال‌های مولکولی کربن بهینه‌سازی شده

غربال‌های مولکولی کربن پس از هر یک از مراحل بهینه‌سازی به مدت ۲۴ ساعت در دمای اتاق ۲۵ درجه سانتی‌گراد قرار داده و سپس به مدت ۲ ساعت در آون با دمای ۱۲۵ درجه سانتی‌گراد خشک نموده و پس از آن عملیات تکلیس در دمای ۵۰۰ درجه سانتی‌گراد با شیب دمایی ۱۰ درجه در دقیقه به مدت ۱ ساعت در حضور گاز نیتروژن انجام شد.

کدگذاری غربال‌های مولکولی کربن

نمونه‌های غربال مولکولی کربنی بر اساس نوع فرآوری و نوع لایه‌گذاری کدگذاری شد (جدول ۱ و ۲).

جدول ۱. کدگذاری نمونه‌ها بر اساس فرآوری

کد نمونه	شماره استاندارد الک	اندازه چشمه‌های الک (میکرون)	میزان اسیدیته	تکلیس دما (درجه سانتی‌گراد)	زمان (ساعت)
CMS _(Ac)	۳۰-۱۶	۱۱۸۰-۶۰۰	۴/۵	-	۱
CMS _(Ra)	۳۰-۱۶	۱۱۸۰-۶۰۰	۶/۵	۵۰۰	۱
CMS _(Al)	۳۰-۱۶	۱۱۸۰-۶۰۰	۹	۵۰۰	۱

جدول ۲. کدگذاری نمونه‌ها بر اساس لایه‌گذاری

کد نمونه	نمونه مورد استفاده	مخلوط لایه‌گذاری (نسبت ۱:۱)	تکلیس دما (درجه سانتی‌گراد)	زمان (ساعت)
CMS _(Ac-K)	CMS _(Ac-3)	نفت و روغن (Oil : Kerosene)	۵۰۰	۱
CMS _(Ac-T)	CMS _(Ac-3)	تینر و روغن (Oil : Thinner)	۵۰۰	۱
CMS _(Ra-K)	CMS _(Ra-3)	نفت و روغن (Oil : Kerosene)	۵۰۰	۱
CMS _(Ra-T)	CMS _(Ra-3)	تینر و روغن (Oil : Thinner)	۵۰۰	۱
CMS _(Al-K)	CMS _(Al-3)	نفت و روغن (Oil : Kerosene)	۵۰۰	۱
CMS _(Al-T)	CMS _(Al-3)	تینر و روغن (Oil : Thinner)	۵۰۰	۱

مخلول اسید نیتریک ۰/۱ مولار مخلوط و به مدت ۲ ساعت در دمای ۹۰ درجه سانتی‌گراد زیر هود قرار گرفت، سپس مخلوط سرد و چند بار با آب مقطر شستشو و سپس مخلوط صاف گردید و بدون تأخیر میزان درصد اسیدیته و قلیاییت مخلول (pH) اندازه‌گیری شد که میزان آن (۴/۵) بود.

نمونه جاذب با اسیدیته ۹ (CMS_(Al))

غربال مولکولی کربنی به نسبت ۱۰ گرم به ۱۰۰ میلی‌لیتر مخلول آب مقطر، سدیم هیدروکسید ۴ نرمال اضافه کرده و با هم‌زن مغناطیسی آشفته‌گی آرامی در بشر حاوی مخلوط آب و غربال مولکولی کربنی به وجود آورده، سپس هم‌زدن را متوقف کرده و بدون تأخیر میزان درصد اسیدیته و قلیاییت مخلول (pH) اندازه‌گیری گردید. این عمل تا جایی ادامه یافت که میزان درصد اسیدیته و قلیاییت مخلول (pH) به ۹ رسید.

لایه‌گذاری غربال‌های مولکولی کربنی

آماده‌سازی مخلول لایه‌گذاری

برای لایه‌گذاری از مخلوط روغن، حلال‌های نفت، تینر، اتانول و بنزین در نظر گرفته شد، ولی مخلوط روغن با اتانول و بنزین به علت عدم توانایی در فرآوری و کاهش ابعاد روزنه جاذب انتخاب نشدند.

- تصفیه فیزیکی (جداسازی فیزیکی): روغن از صافی عبور داده شد.
- رقیق‌سازی: حلال‌های نفت و تینر به نسبت‌های ۱:۱ با روغن

آزمون‌های رآکتور

شرح روش و دستگاه اندازه‌گیری جذب گاز

برای اندازه‌گیری تعادل جذب گاز توسط جاذب، دو روش معمول وزنی و حجمی به کار می‌روند. در روش وزنی، تعادل جذب بر مبنای اندازه‌گیری تغییرات وزنی نمونه جاذب در حین جذب بررسی می‌گردد، درحالی‌که در روش حجمی، تعادل جذب در تفاوت میزان حجم گاز پیش و پس از جذب اندازه‌گیری می‌شود. در این تحقیق، جذب مونوکسیدکربن توسط جاذب‌های ساخته شده توسط دستگاه اندازه‌گیری جذب گاز طراحی و ساخته شده بر مبنای روش حجمی، مورد بررسی قرار گرفت. شمای دستگاه در شکل ۱ نشان داده شده است. تمام قسمت‌های دستگاه مانند لوله‌ها، شیرها، اتصالات، مخازن گاز و ستون جذب از جنس استیل بوده و قابلیت تحمل حداکثر فشار حدود ۴۰ بار را دارند. در این دستگاه از یک مخزن برای گاز جذب‌شونده و از مخزنی دیگر به‌عنوان ستون جذب و جهت تنظیم دما از ظرف آب و یخ استفاده شد. ابتدا کل سیستم به مدت ۵ دقیقه تحت خلأ قرار گرفت، سپس ۲ گرم نمونه جاذب در ستون جذب قرار داده و به سیستم متصل نموده و با کمک گرماساز برقی در دمای ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۵ دقیقه حرارت داده، و مجدداً ستون جذب تحت خلأ قرار گرفت تا کلیه گازهای جذب شده توسط جاذب حذف شوند. سپس دمای ستون جذب به کمک ظرف آب و یخ به دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد کاهش داده شد. با تنظیم رگلاتور و باز کردن شیر کیپسول، گاز مورد بررسی از طریق شیر شماره ۱ وارد مخزن گاز شد و با قرائت نمایشگر دیجیتال و فشارسنج، با کمک شیرهای شماره ۱ و ۴، فشار گاز در مخزن روی ۲ بار تنظیم شد. با باز کردن شیر شماره ۲، گاز از مخزن گاز وارد ستون نمونه شده، گاز جذب‌شونده تمام فضای موجود بین شیرهای شماره ۱ و ۲ و ۴ را اشغال می‌کند. پس از رسیدن فشار گاز به حالت تعادل (P_1)، مقدار آن را یادداشت کرده و از داده‌های (P_1) تا (P_n) تغییرات فشار گاز درون سامانه در واحد زمان توسط برنامه رسم گراف CAMOS که از قبل تنظیم شده بود، در رایانه ثبت و در محاسبات ظرفیت جذب استفاده

شدند. ثبت داده‌ها شامل دو مرحله زیر بود:

الف- تا رسیدن تغییرات فشار به حالت پایا و تعادل

ب- اندازه‌گیری شیب تغییرات فشار برحسب زمان تا ثابت ماندن فشار با گذشت زمان (۱۲ دقیقه)

در ضمن جهت تعیین مقدار جذب شونده با جاذب، آزمایش شاهد با گاز هلیوم انجام و آن بخش از میزان افت فشار که پس از انبساط گاز در سیستم رخ می‌دهد (Dead Volume) و چون این میزان افت فشار ارتباطی با جذب گاز ندارد، مقدار آن در هر آزمایش از کل کاهش فشار ملاحظه شده کسر شد. حجم جاذب نیز اندازه‌گیری و از حجم سیستم کسر شد. پس از انجام تمامی مراحل ذکر شده، بررسی جذب برای گاز مونوکسیدکربن شروع و اندازه‌گیری شیب تغییرات فشار برحسب زمان تا ثابت ماندن فشار با گذشت زمان ثبت شد.

در این تحقیق آزمایش‌ها با ۲ بار تکرار و در مجموع ۱۸ آزمایش برای تعیین اثرات فرآوری و لایه‌گذاری بر روی ظرفیت جذب گاز مونوکسیدکربن توسط جاذب‌ها در فشار ۲ بار و دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد انجام شد. داده‌های برنامه رسم گراف CAMOS بر اساس تغییرات فشار بر واحد زمان به کمک معادلات برگرفته از قانون آووگادرو و قانون ترکیب گازهای ایده‌آل (معادلات ۱-۳) با استفاده از نرم‌افزار اکسل به‌صورت نمودار و گراف رسم شد (۳۵).

معادله ۱:

$$PV = n \times R \times T$$

معادله ۲:

$$n = V \times P (P_1 - P_{(2, 3, \dots, n)}) / R \times T$$

معادله ۳:

$$K = ^\circ C + 273$$

در روابط بالا P_0 فشار اولیه، P_1 فشار تعادلی و $P_{2,3,\dots,n}$ فشار در زمان‌های مختلف برحسب اتمسفر (atm)، حجم (V) برحسب لیتر (L)، دما (T) برحسب کلوین (K)، ثابت عمومی گاز (R) برحسب ($L \cdot atm \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$) و گاز جذب شده (n) برحسب مول (mol/g) محاسبه شد.

جدول ۳. نتایج ظرفیت جذب مونوکسیدکربن توسط جاذب‌ها بر اساس فرآوری

نمونه‌ها	ظرفیت جذب بر حسب میلی‌مول بر گرم
CMS _(Ac)	۰/۲۱۰
CMS _(Ra)	۰/۱۴۷
CMS _(Al)	۰/۱۳۳

بررسی اثرات لایه‌گذاری بر ظرفیت جذب مونوکسیدکربن جاذب‌ها
نتایج نشان داد لایه‌گذاری با روغن-تینر در هر سه نمونه باعث افزایش ظرفیت شد. نتایج این بخش در جدول ۴ ارائه شده است.

جدول ۴. نتایج ظرفیت جذب مونوکسیدکربن توسط جاذب‌های لایه‌گذاری شده

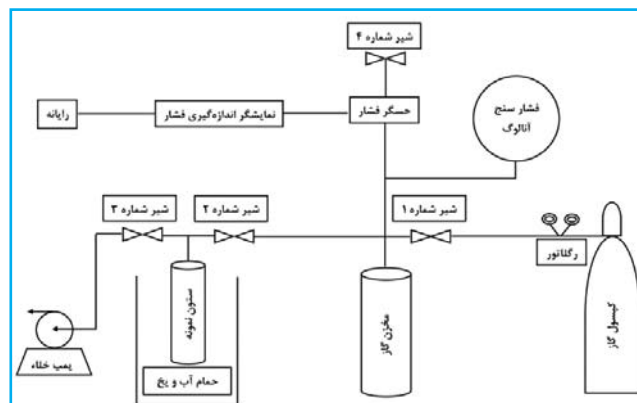
نمونه‌ها	ظرفیت جذب بر حسب میلی‌مول بر گرم
CMS _(Ac-K)	۰/۳۲۴
CMS _(Ac-T)	۰/۳۵۵
CMS _(Ra-K)	۰/۱۵۳
CMS _(Ra-T)	۰/۲۶۷
CMS _(Al-k)	۰/۵۹۱
CMS _(Al-T)	۰/۸۵۸

نتیجه آنالیز تخلخل و سطح ویژه

نتایج این بخش در جدول ۶ ارائه شده است. بر اساس نتایج، نمونه‌های فراوری شده سطح ویژه کمتری نسبت به نمونه‌های بدون فراوری داشتند و با کاهش مقادیر تجزیه و تحلیل آنالیز سطح نمونه‌های غریبال‌های مولکولی کربن، میزان ظرفیت جذب مونوکسیدکربن افزایش می‌یافت.

جدول ۵. خواص فیزیکی جاذب‌ها (سطح)

سطح منافذ بر حسب (مترمربع بر گرم)						نمونه
BJH Desorption Cumulative	BJH Adsorption Cumulative	T-plot External	T-plot Micro pore	Langmuir	BET	
۲۵	۲۲	۸۰	۲۵۰	۴۳۹	۳۳۱	CMS _(Ra)
۳۳	۲۸	۹۸	۳۳۵	۵۵۷	۴۳۳	CMS _(Ac)
۱۷	۱۳	۳۱	۸	۵۵	۴۰	CMS _(Ac-T)
۴۶	۳۴	۱۵۰	۵۲۱	۸۸۸	۶۷۱	CMS _(Al)
۶	۴	۱۰	۴	۱۹	۱۴	CMS _(Al-K)
۳	۲	۶	۳	۱۱	۸	CMS _(Al-T)



شکل ۱. شمای دستگاه اندازه‌گیری ظرفیت جذب گاز به‌روش حجمی

آنالیز تخلخل و سطح ویژه (BET) جاذب غریبال مولکولی کربنی انتخاب شده از لحاظ میزان ظرفیت جذب

با استفاده از روش آنالیز تخلخل و سطح ویژه، تخلخل و سطح ویژه کل غریبال مولکول کربنی ساخته شده توسط دستگاه میکرومتریکس ۳۰۲۰ اندازه‌گیری شد. ابتدا مقدار معینی نمونه جاذب در دمای ۲۰۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲ ساعت گاززدائی شد و سپس در حضور نیتروژن مایع جذب و دفع انجام شد.

نتایج

اثرات فرآوری بر ظرفیت جذب مونوکسیدکربن جاذب‌ها

در میان سه غریبال مولکولی بدون فرآوری و فرآوری شده در دو اسیدیته مختلف، جاذب CMS_(Ac) غریبال مولکول کربن فرآوری شده در محیط قلیایی با pH=۹ کمترین و جاذب CMS_(Ac) غریبال مولکول کربن فرآوری شده در محیط اسیدی با pH=۴/۵ بیشترین ظرفیت جذب مونوکسیدکربن را داشتند. نتایج این بخش در جدول ۳ ارائه شده است.

بحث

در میان سه غریبال مولکولی بدون فرآوری و فرآوری شده در دو اسیدیته مختلف، جاذب غریبال مولکول کربن فرآوری شده در محیط قلیایی با $\text{pH}=9$ کمترین و جاذب غریبال مولکول کربن فرآوری شده در محیط اسیدی با $\text{pH}=4/5$ بیشترین ظرفیت جذب مونوکسیدکربن را داشتند. فرآوری با اسید باعث افزایش و فرآوری با قلیا باعث کاهش ظرفیت جذب می‌شود. دلیل افزایش ظرفیت جذب مونوکسیدکربن در جاذب غریبال مولکول کربن فرآوری شده در محیط اسیدی با $\text{pH}=4/5$ ، آزادسازی حفره‌ها از مواد رسوبی در فرآیند اسیدشویی است. ظرفیت جذب سه نمونه بدون فرآوری و فرآوری شده با اسید و قلیا به ترتیب زیر بود:

$$\text{CMS}_{(\text{Al})} > \text{CMS}_{(\text{Ra})} > \text{CMS}_{(\text{Ac})}$$

در میان جاذب‌های لایه گذاری شده با مخلوط‌های روغن- تینر و روغن- نفت، جاذب‌های گروه غریبال‌های مولکولی کربن فرآوری شده در محیط قلیایی با $\text{pH}=9$ ($\text{CMS}_{(\text{Al})}$) به ترتیب نسبت به جاذب‌های گروه غریبال‌های مولکولی کربن فرآوری شده در محیط اسیدی با $\text{pH}=4/5$ ($\text{CMS}_{(\text{Ac})}$) و جاذب‌های گروه غریبال‌های مولکولی کربن بدون فرآوری $\text{pH}=6/5$ ($\text{CMS}_{(\text{Ra})}$) ظرفیت جذب گاز مونوکسیدکربن بیشتری دارند. جاذب‌های فرآوری شده و لایه گذاری شده با روغن و تینر، نسبت به جاذب‌های فرآوری شده و لایه گذاری شده با روغن و نفت و جاذب‌های فرآوری شده بدون لایه گذاری، ظرفیت جذب مونوکسیدکربن بیشتری داشتند.

ظرفیت جذب سه نمونه $\text{CMS}_{(\text{Ac})}$ بدون لایه گذاری و لایه گذاری شده به ترتیب زیر بود:

$$\text{CMS}(\text{Ac-T}) > \text{CMS}(\text{Ac-K}) > \text{CMS}(\text{Ac})$$

ظرفیت جذب سه نمونه $\text{CMS}_{(\text{Ra})}$ بدون لایه گذاری و لایه گذاری شده به ترتیب زیر بود:

$$\text{CMS}(\text{Ra-T}) > \text{CMS}(\text{Ra-K}) > \text{CMS}(\text{Ra})$$

ظرفیت جذب سه نمونه $\text{CMS}_{(\text{Al})}$ بدون لایه گذاری و لایه گذاری شده به ترتیب زیر بود:

$$\text{CMS}(\text{Al-T}) > \text{CMS}(\text{Al-K}) > \text{CMS}(\text{Al})$$

نتایج مطالعه حاضر با مطالعه پارک و همکاران مورد مقایسه قرار گرفت. پارک و همکاران، ظرفیت جذب مونوکسیدکربن توسط غریبال مولکولی کربن را در شرایط ۲۵ درجه سانتی‌گراد و فشار ۱/۹۹، مورد آزمایش قرار دادند که برابر با ۰/۷۸۵ میلی‌مول بر گرم بود (۸). در مطالعه حاضر، ظرفیت جذب مونوکسیدکربن توسط غریبال‌های مولکولی کربن در شرایط ۲۵ درجه سانتی‌گراد و فشار ۲ بار اندازه‌گیری شد، نمونه $\text{CMS}_{(\text{Al-T})}$ با ۰/۸۵۸ میلی‌مول بر گرم، دارای راندمان و ظرفیت جذب مونوکسیدکربن بیشتری در مقایسه با تمام نمونه‌های مطالعه حاضر و مطالعه پارک و همکاران بود.

نتیجه‌گیری: یکی از عوامل گرمایش جهانی، گاز مونوکسیدکربن است. حذف و کاهش انتشار این گاز از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است، زیرا اثرات مخرب بر محیط‌زیست، انسان و موجودات زنده دارد. چگونگی حذف این آلاینده، موضوع مهمی در تحقیقات زیست‌محیطی به‌شمار می‌رود. با توجه به نتایج به‌دست آمده از این تحقیق، به‌طور خلاصه می‌توان گفت:

۱- در این مطالعه ۹ نوع غریبال مولکولی کربن با مشخصات بدون فرآوری با $\text{pH}=6/5$ و فرآوری شده با $\text{pH}=4/5$ و $\text{pH}=9$ ، لایه‌گذاری شده با دو نوع مخلوط روغن- تینر و روغن- نفت تهیه شدند.

۲- غریبال‌های مولکول کربن تهیه شده قابلیت جذب مونوکسیدکربن در فشار ۲ بار در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد را دارند.

۳- بهینه‌سازی شامل دو فرآیند فرآوری و لایه‌گذاری است و باعث افزایش ظرفیت جذب مونوکسیدکربن می‌شود.

۴- مقدار ظرفیت جذب بستگی به اندازه مجاری و اندازه منافذ و حفرات غریبال‌های مولکولی کربن و اندازه قطر سینتیکی مونوکسیدکربن (۳۷۶/۰ نانومتر) دارد.

۵- در فرآیند فرآوری، غریبال‌های مولکولی کربن فرآوری شده در محیط اسیدی با $\text{pH}=4/5$ دارای راندمان جذب مونوکسیدکربن بالاتری است.

۶- خواص فیزیکی تعدادی از نمونه‌ها با استفاده از آنالیز BET

کاهش ظرفیت جذب مونوکسیدکربن توسط جاذب‌ها می‌شود.

ملاحظات اخلاقی: نویسندگان تمام نکات اخلاقی شامل عدم سرقت ادبی، انتشار دوگانه، تحریف داده‌ها و داده‌سازی را در این مقاله رعایت کرده‌اند. همچنین هرگونه تضاد منافع حقیقی یا مادی که ممکن است بر نتایج یا تفسیر مقاله تأثیر بگذارد را رد می‌کنند.

تشکر و قدردانی: این مطالعه، حاصل نتایج بدست آمده از پایان نامه مقطع دکتری تخصصی محیط زیست گرایش آلودگی محیط زیست است که در دانشگاه آزاد اسلامی واحد دماوند به انجام رسیده است. نویسندگان مقاله کمال تشکر و قدردانی را از این دانشگاه دارند.

مشخص شدند.

۷- لایه‌گذاری با هر دو نوع مخلوط روغن- نفت و روغن- تینر باعث افزایش راندمان جذب مونوکسیدکربن می‌شود.

۸- لایه‌گذاری با روغن- تینر باعث افزایش راندمان ظرفیت جذب مونوکسیدکربن نسبت به جاذب‌های فراوری شده با روغن- نفت و جاذب‌های بدون فراوری می‌شود.

۹- در میان تمام نمونه‌ها، نمونه $CMS_{(Al-T)}$ دارای بیشترین ظرفیت جذب مونوکسیدکربن و کمترین مقدار سطح و حجم منافذ را دارد. می‌توان نتیجه گرفت میزان اسیدیته در فرآیند فراوری و نوع ماده پوشش‌دهنده در فرآیند لایه‌گذاری بر اندازه مجاری و اندازه حفرات و توزیع اندازه حفرات تأثیرگذار است و باعث افزایش و یا

References

- Dehghani M. Asghari M. Mohammadi A. et al. Molecular simulation and Monte Carlo study of structural-transport-properties of PEBA-MFI zeolite mixed matrix membranes for CO₂, CH₄ and N₂ separation. *Comput Chem Eng* 2017; 103: 12-22.
- Liu D. Wu Y. Xia Q. et al. Experimental and molecular simulation studies of CO₂ adsorption on zeolitic imidazolate frameworks: ZIF-8 and amine-modified ZIF-8. *Adsorption* 2013, 19(1): 25-37.
- Darkrim F.L. Malbrunot P. Tartaglia G.P. Review of hydrogen storage by adsorption in carbon nanotubes. *Int; J Hydrogen Energy* 2002; 27(2): 193-202.
- Siriwardane R V. Shen M.S. Fisher E P. et al. Adsorption of CO₂ on Molecular Sieves and Activated Carbon. *Energy Fuels* 2001; 15(2): 279-284.
- Lozano-Castello D. Alcaniz-Monge J. Cazorla-Amoro's D. et al. Adsorption properties of carbon molecular sieves prepared from an activated carbon by pitch pyrolysis. *Carbon* 2005, 43(8): 1643-1651.
- Lithoxoos G P. Labropoulos A. Peristeras L D. et al. Adsorption of N₂, CH₄, CO and CO₂ gases in single walled carbon nanotubes: A combined experimental and Monte Carlo molecular simulation study. *J Supercrit Fluids* 2010; 55(2): 510-523.
- Mukhtar A. Mellon N. Saqib S. et al. CO₂/CH₄ adsorption over functionalized multi-walled carbon nanotubes; an experimental study, isotherms analysis, mechanism, and thermodynamics; *Microporous Mesoporous Mater* 2020; 294: 1-76.
- Park Y. Moon D K. Park D. et al. Adsorption Equilibria and Kinetics of CO₂, CO, and N₂ on Carbon Molecular Sieve. *Sep Purif Technol* 2019; 212:952-964.
- Song X. Wanga L. Maa X. et al. Adsorption equilibrium and thermodynamics of CO₂ and CH₄ on carbon molecular sieves. *Appl Surf Sci* 2017; 396: 870-878.
- Zahedi R. Ghafourian H. Zaman Y. Khoramnejhadian Sh. et al. Study of Carbon Dioxide and Methane Adsorption on Carbon Molecular Sieves, Raw and Modified by Waste Engine Oil. *J Serb Chem Soc.* 2020; 85 (8): 1083-1093.
- Marsh H. Rodríguez-Reinoso F. Activated Carbon in: Activation Processes (Thermal or PPhysical). CHAPTER 5. 1th ed. Elsevier Science Ltd; 2006. P. 243-321.
- Marsh, H.; Rodríguez-Reinoso, F. Activated Carbon in: Activation Processes (Chemical) CHAPTER 6. 1th ed. Elsevier Science Ltd; 2006. P. 322-365.
- Dabrowski A. Adsorption and its Applications in Industry and Environmental Protection. Amsterdam: Elsevier Science; 1999. P. 191.
- Adinata D. Wan Daud W M A. Aroua M K. Production of carbon molecular sieves from palm shell based activated carbon by pore sizes modification with benzene for methane selective separation. *Fuel Process Technol* 2007; 88: 599-605.
- Kalderis D. Bethanis S. Paraskeva P. et al. Production of activated carbon from bagasse and rice husk by a single-stage chemical activation method at low retention times. *Bioresour Technol* 2008; 99: 6809-6816.
- Martinez M. Torres M. Guzman C. Maestri D. Preparation and characteristics of activated carbon from olive stones and walnut shells. *Industrial Crops and Products* 2006; 23: 23-28.
- Aygun A. Yeniso-y-Karakas S. Duman I. Production of

- granular activated carbon from fruit stones and nutshells and evaluation of their pHysical, chemical and adsorption properties. *Microporous Mesoporous Mater* 2003; 66(2-3): 189-195.
18. Martinez M. Torres M. Guzman C. Maestri D. Preparation and characteristics of activated carbon from olive stones and walnut shells. *Ind. Crops Prod* 2006; 23: 23-28.
 19. Mousavi Z. Bozorgzadeh H R. Molecular Sieves from Pistachio Shell and Walnut Shell for Kinetic Separation of Carbon Monoxide, Hydrogen and Methane. *Iran J Chem Chem Eng* 2017; 36: 71-80.
 20. Tae-Hwan K. Vijayalakshmi S. Seok Jinc S. et al. Carbon molecular sieves (CMS) from coconut shell by carbonization and carbon dioxide activation. *Indian J Chem Technol* 2003; 10(3): 298-304.
 21. Miura K. Hayashi J. Hashimoto K. Production of Molecular Sieving Carbon through Carbonization of Coal Modified by Organic Additives. *Carbon* 1991; 29(4/5): 653-660.
 22. A Lizzio A. Rostam-Abadi M. Production of carbon molecular sieves from Illinois coal. *Fuel Process Technol* 1993; 34(2): 97-122.
 23. Văduva M. Stanciu Selective Carbon Dioxide Adsorption from N₂-CH₄-CO₂ Mixture on Carbon Molecular Sieves. *Sci Bull Univ "Politeh." Bucharest Ser B Chem Mater Sci* 2007; 67(4): 59-70.
 24. Yang Z. Wang D. Meng Z. et al. Adsorption separation of CH₄/N₂ on modified coal-based carbon molecular sieve. *Sep Purif Technol* 2019; 218: 130-137.
 25. Zhang J. Qu S. Li L. Wang P. Li X. Che Y. Li X. Preparation of Carbon Molecular Sieves Used for CH₄/N₂ Separation. *J Chem Eng Data* 2018; 63(5): 1737-1744.
 26. Horikawa T. Hayashi J. Muroyama K. Preparation of Molecular Sieving Carbon from Waste Resin by Chemical Vapor Deposition. *Carbon* 2002; 40(5): 709-714.
 27. Okada K. Yamamoto N. Kameshima Y. Yasumori A. Adsorption properties of activated carbon from waste newspaper prepared by chemical and pHysical activation. *J Colloid Interface Sci.* 2003; 262: 194-199.
 28. Wahby A. Ramos-Fernández José M. Martínez-Escandell M. et al. High-Surface-Area Carbon Molecular Sieves for Selective CO₂ Adsorption. *ChemSusChem*, 2010; 3: 974-981.
 29. Ko D. Comparison of carbon molecular sieve and zeolite 5A for CO₂ sequestration from CH₄/CO₂ mixture gas using vacuum pressure swing adsorption. *Korean J. Chem. Eng.* 2021; 38(5): 1043-1051.
 30. Boonpoke A. Chiarakorn S. Laosiripojana N. et al. Synthesis of activated carbon and MCM-41 from bagasse and rice husk and their carbon dioxide adsorption capacity. *J Sus Energy & Environ.* 2011; 2(2): 77-81.
 31. Kwon S. You Y. Lim H. et al. Selective CO adsorption using sulfur-doped Ni supported by petroleum-based activated carbon. *J. Ind. Eng. Chem.* 2020; 83: 289-96.
 32. Muralikrishnan R. Swarnalakshmi M. Nakkeeran E. Nanoparticle-Membrane Filtration of Vehicular Exhaust to Reduce Air Pollution – A Review. *Int Res J Environ Sci.* 2014; 3(4): 82-86.
 33. ASTM E0011. Specification for Wire Cloth and Sieves for Testing Purposes; 2006.
 34. ASTM D1388-96R02. Test method for stiffness of fabrics; 2006.
 35. Heinzer PJ. *ASM Handbook Vol. 7 Powder Metallurgy*. ASM International Publishers; 1998. P. 278-280.