การเตรียมคอมพอสิตของออกไซด์ฐานไทเทเนียมและท่อนาโนคาร์บอนสำหรับตัวเก็บประจุ

นายนราพันธ์ เลาหวิช

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์
คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2551

PREPARATION OF TITANIUM - BASED OXIDE AND CARBON NANOTUBE COMPOSITES FOR CAPACITOR

Mr. Narabhandhu Laohawich

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science Program in Petrochemistry and Polymer Science
Faculty of Science
Chulalongkorn University
Academic Year 2008

Thesis Title	PREPARATION OF TITANIUM - BASED OXIDE AND CARBON NANOTUBE COMPOSITES FOR CAPACITOR
By	Mr. Narabhandhu Laohawich
Field of Study	Petrochemistry and Polymer Science
Advisor	Associate Professor Orawon Chailapakul, Ph.D.

Accepted by the Faculty of Science, Chulalongkorn University in Partial Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree

..... Dean of the Faculty of Science
(Professor Supot Hannongbua, Dr.rer.nat)

THESIS COMMITTEE

..... Chairman
(Associate Professor Supawan Tantayanon, Ph.D.)

..... Advisor
(Associate Professor Orawon Chailapakul, Ph.D.)

..... Examiner
(Associate Professor Nattaya Ngamrojnavanich, Ph.D.)

..... Examiner
(Assistant Professor Voravee Hoven, Ph.D.)

..... External Examiner
(Winai Oungpipat, Ph.D.)

นราพันธ์ เลาหวิช : การเตรียมคอมพอสิตของออกไซด์ฐานไทเทเนียมและท่อนาโนคาร์บอนสำหรับตัวเก็บประจุ (PREPARATION OF TITANIUM - BASED OXIDE AND CARBON NANOTUBE COMPOSITES FOR CAPACITOR) อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก : รศ. ดร. อรวรรณ ชัยลภากุล, 102 หน้า.

งานวิจัยนี้เป็นการสังเคราะห์โลหะออกไซด์สองชนิด ได้แก่ เหล็กออกไซด์และนิกเกิลออกไซด์ ร่วมกับวัสดุคอมพอสิตของท่อนาโนคาร์บอนผนังหลายชั้นกับไทเทเนียมไดออกไซด์ เพื่อใช้เป็นขั้วตัวเก็บประจุ โดยทั่วไปวัสดุคอมพอสิตดังกล่าวสามารถสังเคราะห์ด้วยวิธีทางเคมีจากสารประกอบเกลือของโลหะ และท่อนาโนคาร์บอนซึ่งผ่านการดัดแปรผิวหน้าด้วยกรดที่มีความเข้มข้นสูง แล้วจึงทำการศึกษาลักษณะโครงสร้างผลึกและสัณฐานวิทยาของวัสดุคอมพอสิตด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (เอ็กซ์อาร์ดี) กล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (เอสอีเอ็ม) และกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องผ่าน (ทีอีเอ็ม) การเตรียมขั้วเพื่อใช้ในการทดสอบสมบัติทางเคมีไฟฟ้าของวัสดุคอมพอสิต เริ่มจากการนำวัสดุคอมพอสิตดังกล่าวผสมร่วมกับตัวทำละลายโดยผ่านกระบวนการอัลตราโซนิกอย่างต่อเนื่องเป็นเวลา 30 นาที ทำให้สารละลายที่ได้มีลักษณะเป็นเนื้อเดียวกัน จากนั้นสารละลายดังกล่าวจะถูกพ่นเป็นละอองตามแนวแรงไฟฟ้าสถิตไปยังแผ่นรองรับซึ่งมีอุณหภูมิ 150 องศาเซลเซียสด้วยเทคนิคอิเล็กโทรสทาทิกสเปรย์ดิโพสิชัน (อีเอสดี) ซึ่งก่อให้เกิดขั้วของวัสดุคอมพอสิตที่มีลักษณะเป็นแผ่นฟิล์มบาง เพื่อใช้ในการศึกษาลักษณะทางเคมีไฟฟ้าด้วยเทคนิคไซคลิกโวลแทมเมทรี เทคนิคอิมพีแดนซ์สเปกโทรสโกปี และเทคนิคกัลวาโนสทาทิกในสารละลายกรดซัลฟิวริกที่ความเข้มข้น 1 โมลาร์ จากการศึกษาพบว่า ความสามารถในการเก็บประจุของวัสดุคอมพอสิตขึ้นอยู่กับปริมาณของโลหะออกไซด์ชนิดต่างๆที่ถูกสังเคราะห์ร่วมกับท่อนาโนคาร์บอน เนื่องจากโลหะออกไซด์มีลักษณะเฉพาะที่ดีในการเก็บประจุ ที่สำคัญยังพบว่าวัสดุคอมพอสิตฐานของออกไซด์ฐานไทเทเนียมที่มีนิกเกิลออกไซด์เป็นส่วนประกอบ จะมีค่าการเก็บประจุสูงถึง 180.40 ฟารัดต่อกรัม โดยที่ค่าดังกล่าวนี้สูงกว่าค่าการเก็บประจุของวัสดุคอมพอสิตฐานไทเทเนียมไดออกไซด์ และนอกจากนี้ยังสามารถใช้เป็นวัสดุคอมพอสิตชนิดใหม่เพื่อใช้เป็นตัวเก็บประจุทางเคมีไฟฟ้า

สาขาวิชา...ปิโตรเคมีและวิทยาศาสตร์พอลิเมอร์... ลายมือชื่อนิสิต.....นราพันธ์ เลาหวิช.....

ปีการศึกษา.....2551..... ลายมือชื่อ อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก.....

4972333823 : MAJOR PETROCHEMISTRY AND POLYMER SCIENCE

KEYWORDS : MULTI-WALLED CARBON NANOTUBES/ COMPOSITE ELECTRODE/ CAPACITOR/ CYCLIC VOLTAMMETRY/ IMPEDANCE SPECTROSCOPY/ ELECTROSTATIC SPRAY DEPOSITION

NARABHANDHU LAOHAWICH : PREPARATION OF TITANIUM - BASED OXIDE AND CARBON NANOTUBE COMPOSITES FOR CAPACITOR. ADVISOR : ASSOC. PROF. ORAWON CHAILAPAKUL, Ph.D., 102 pp.

In this work, the preparation of metal oxide (FeO and NiO) and titanium-based multi-walled nanotube (MWNTs) composites for capacitor electrodes was reported. The composite materials were synthesized via a chemical reduction method using metal salts and functionalized MWNTs. Structural and morphological characterizations of these composites were carried out via x-ray diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM) and transmission electron microscopy (TEM). The synthesized composites were dispersed in an aqueous solvent via sonication, and then the composite solutions were then electrostatically sprayed onto the Pt/Si substrates which were heated to 150^0C. Cyclic voltammetry, impedance spectroscopy and galvanostatic technique were employed to characterize the electrochemical performances of the composite thin films. Electrochemical characterization shows that there is an almost linear dependence of structure-specific capacitance on the amount of metal oxides on the MWNTs surface due to the surface's pseudo-capacitive nature. From the results, the composite electrode obtained from NiO incorporated on TiO_2/MWNTs provides a markedly enhanced specific capacitance of 180.40 F/g in 1 M H_2SO_4. Such an enhanced capacitance, as well as the cost-effectiveness of the NiO on TiO_2/MWNTs composite, shows the advantages to the use of this composite as an effective alternative material for electrochemical capacitors.

Field of Study..Petrochemistry and Polymer Science.. Student's Signature..Narabhandhu L.

Academic Year.....2008..... Advisor's Signature.....

ACKNOWLEDGEMENTS

First of all, I would like to thank my thesis advisor, Associate Professor Dr. Orawon Chailapakul for her invaluable guidance, kind advice and encouragement. Furthermore, I would also like to thank other members of the thesis committee for their extensive and excellent comments on early works and drafts of the thesis.

Moreover, my great thanks go to Chulalongkorn University Graduate School Thesis Grant and Center of Excellence for Petroleum, Petrochemicals, and Advanced Materials for the financial support.

Special thanks are also extended to Professor Dr. Kim, Kwang Bum and the member of the national research laboratory of electrochemical capacitors, department of metallurgical engineering, Yonsei University for the kindness, knowledge, valuable experience and provision of electrochemical instruments during my stay in Republic of Korea. Moral support and encouragement of my member of the electrochemical research group, Chulalongkorn University and especially, Dr. Parichatr Vanalabhpatana, Dr. Nipaka Sukpirom and Dr. Weena Siangproh are appreciated.

Finally, I would like to express my deepest gratitude and sincerest thank to my family for understanding and encouragement throughout the retire course of study.

CONTENTS

page

page

page

page

LIST OF TABLES

LIST OF FIGURES

Figure **page**

Figure **page**

Figure **page**

LIST OF SYMBOLS AND ABBREVIATIONS

CNTs	Carbon nanotubes
C_h	Chiral vector
SWNTs	Single-walled nanotubes
MWNTs	Multi-walled nanotubes
ECs	Electrochemical capacitors
EDLCs	Electrochemical double layer capacitors
^oC	Degree celsius
% w/w	Weight by percent
µm	Micrometer
F/g	Farad per gram
g	Gram
mg	Milligram
mL	Milliliter
nm	Nanometer
cm^{-1}	Per centimeter
M	Molarity
mA	Milliampere
kV	Kilovolt
FTIR	Fourier transform infrared spectroscopy
XRD	X-ray diffractometry
SEM	Scanning electron microscopy
TEM	Transmission electron microscopy
SCE	Saturated calomel electrode
CV	Cyclic voltammetry
EIS	Electrochemical impedance spectroscopy
ESD	Electrostatic spray deposition
EWS	Ethanol-water system
NaOH	Sodium hydroxide
H_2SO_4	Sulfuric acid
HNO_3	Nitric acid
TiO_2	Titanium dioxide

FeO	Iron oxide
NiO	Nickel oxide
$FeSO_4.7H_2O$	Iron (II) sulfate heptahydrate
KBr	Potassium bromide