การดูดซับเมอร์คิวริกคลอไรด์และฟีนิลเมอร์คิวริกอะซีเตต จากสารละลายน้ำโดยใช้ไคโตแซนแบบเกล็ด

นาย วิชิต ธรรมวัน

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาวิศวกรรมเคมี ภาควิชาวิศวกรรมเคมี
คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2544

ISBN 974-03-1484-8

ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

I2057425X 12 พ.ย. 2546

ADSORPTION OF MERCURIC CHLORIDE AND PHENYLMERCURIC ACETATE FROM AQUEOUS SOLUTION USING CHITOSAN FLAKES

MR. VICHIT THAMMAWAN

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master of Engineering in Chemical Engineering

Department of Chemical Engineering

Faculty of Engineering

Chulalongkorn University

Academic Year 2001

ISBN 974-03-1484-8

Thesis Title	Adsorption of Mercuric Chloride and Phenylmercury Acetate from Aqueous Solution Using Chitosan Flakes
By	Mr. Vichit Thammawan
Field of study	Chemical Engineering
Thesis Advisor	Jirdsak Tscheikuna, Ph.D.

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

..... Dean of Faculty of Engineering

(Professor Somsak Panyakeow, D. Eng.)

THESIS COMMITTEE

..... Chairman

(Professor Wiwut Tanthapanichakoon, Ph.D.)

..... Thesis Advisor

(Jirdsak Tscheikuna, Ph.D.)

..... Member

(Assistant Professor Vichitra Chongvisal, Ph.D.)

..... Member

(Assistant Professor Sutha Khaodhiar, Ph.D.)

วิชิต ธรรมวัน : การดูดซับเมอร์คิวริกคลอไรด์และฟีนิลเมอร์คิวริกอะซีเตตจากสารละลายน้ำโดยใช้ไคโตแซนแบบเกล็ด (ADSORPTION OF MERCURIC CHLORIDE AND PHENYLMERCURIC ACETATE FROM AQUEOUS SOLUTION USING CHITOSAN FLAKES) อ.ที่ปรึกษา: ดร.เจิดศักดิ์ ไชยคุนา, 73 หน้า.

ISBN 974-03-1484-8

การวิจัยนี้เป็นการศึกษาการกำจัดสารประกอบปรอทจากสารละลายน้ำโดยการดูดซับ ตัวดูดซับที่ใช้ในการวิจัยนี้คือไคโตแซนซึ่งได้จากกระบวนการกำจัดหมู่อะซิทิลของไคติน ไคโตแซนที่ใช้ในการวิจัยนี้มี 3 ชนิด คือ ไคโตแซนที่ได้จากการกำจัดหมู่อะซิทิลร้อยละ 79 87 และ 95 ทำการทดลองที่ความดันบรรยากาศ ค่าพีเอชเริ่มต้นของสารละลาย คือ 5 6 และ 7 และที่อุณหภูมิ 10 30 และ 50 องศาเซลเซียส ใช้เมอร์คิวริกคลอไรด์และฟีนิลเมอร์คิวริกอะซีเตตเป็นตัวแทนสารประกอบปรอทในรูปของโลหะอนินทรีย์และในรูปของโลหะอินทรีย์ตามลำดับ สารประกอบปรอทแต่ละชนิดถูกละลายในน้ำกลั่น เพื่อใช้เป็นสารตั้งต้นที่มีความเข้มข้นของปรอทเริ่มต้น 10 ส่วนในล้านส่วน

จากการทดลองพบว่า ตัวดูดซับไคโตแซนทั้ง 3 ชนิด สามารถกำจัดสารประกอบปรอททั้ง 2 ชนิดได้ โดยปริมาณการดูดซับสารประกอบปรอททั้ง 2 ชนิด ขึ้นกับชนิดของสารประกอบปรอท การดูดซับเมอร์คิวริกคลอไรด์ขึ้นกับค่าพีเอชเริ่มต้นของสารละลายและอุณหภูมิที่ใช้ในการทดลอง โดยที่ความสามารถในการดูดซับเมอร์คิวริกคลอไรด์ของไคโตแซนจะลดลงเมื่อค่าพีเอชเริ่มต้นของสารละลายเพิ่มขึ้น ส่วนการดูดซับฟีนิลเมอร์คิวริกอะซีเตตในบางสภาวะการดำเนินการทดลองพบว่าการดูดซับขึ้นกับค่าพีเอชเริ่มต้นของสารละลายและอุณหภูมิที่ใช้ในการทดลอง โดยที่ความสามารถในการดูดซับฟีนิลเมอร์คิวริกอะซีเตตของไคโตแซนจะลดลงเล็กน้อยเมื่อค่าพีเอชเริ่มต้นของสารละลายเพิ่มขึ้น และจะเพิ่มขึ้นเล็กน้อยเมื่ออุณหภูมิเพิ่มขึ้น การดูดซับเมอร์คิวริกคลอไรด์ในบางสภาวะการดำเนินการพบว่าการดูดซับขึ้นกับร้อยละการกำจัดหมู่อะซิทิลของไคโตแซน โดยที่ความสามารถในการดูดซับเมอร์คิวริกคลอไรด์ของไคโตแซนจะเพิ่มขึ้นเล็กน้อยเมื่อร้อยละของการกำจัดหมู่อะซิทิลเพิ่มขึ้น ส่วนผลของร้อยละของการกำจัดหมู่อะซิทิลต่อการดูดซับฟีนิลเมอร์คิวริกอะซีเตตไม่สามารถสรุปได้

ภาควิชา.....วิศวกรรมเคมี.....ลายมือชื่อนิสิต.....

สาขาวิชา.....วิศวกรรมเคมี.....ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา.....

ปีการศึกษา.....2544.....ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม.....

#4270532321: MAJOR CHEMICAL ENGINEERING DEPARTMENT
KEY WORD: MERCURIC CHLORIDE/ PHENYLMERCURIC ACETATE/ CHITOSAN/ ADSORPTION/ DEACETYLATION

VICHIT THAMMAWAN: ADSORPTION OF MERCURIC CHLORIDE AND PHENYLMERCURIC ACETATE FROM AQUEOUS SOLUTION USING CHITOSAN FLAKES. THESIS ADVISOR: JIRDSAK TSCHEIKUNA, Ph.D., 73 PP. ISBN 974-03-1484-8

In this study, removal of mercury compounds from aqueous solution by adsorption was investigated. Adsorbents were chitosan 79%, chitosan 87% and chitosan 95% degree of deacetylation. A set of experiments was conducted at atmospheric pressure; initial solution pH of 5, 6 and 7, and temperature of 10°C, 30°C and 50°C. Mercuric chloride and phenylmercuric acetate were selected as models of inorganic and organic forms of mercury compounds. Mercury compounds were dissolved in distilled water to obtain feedstock solution that contained 10 ppm of mercury.

The results show that all three types of chitosan can be used to remove both mercuric chloride and phenylmercuric acetate from aqueous solution. Removal of mercury compounds depends on type of mercury compounds. Removal of mercuric chloride depends on initial pH of the solution and operating temperature. Ability of chitosan on adsorption of mercuric chloride decreased with increasing initial pH of solution. Removal of phenylmercuric acetate in some condition depends on initial pH of the solution and operating temperature. Ability of chitosan on removal of phenylmercuric acetate is slightly decreased with increasing initial solution pH and slightly increased with increasing operating temperature. Removal of mercuric chloride at some condition depends on degree of deacetylation. Ability of chitosan on removal of mercuric chloride slightly increased with increasing degree of deacetylation. Effect of degree of deacetylation on removal of phenylmercuric acetate can not be concluded.

Department.....Chemical Engineering.....Student's signature.....

Field of study...Chemical Engineering...Advisor's signature.....

Academic year.....2001.....Co-advisor's signature.....

ACKNOWLEDGEMENTS

The author would like to express his gratitude and appreciation to his advisor, Dr.Jirdsak Tscheikuna for his guidance, valuable help and supervision during this study. He is also grateful to Professor Dr.Wiwut Tanthapanichakoon, Assistant Professor Dr.Vichitra Chongvisal and Dr.Sutha Khaodhair for serving as chairman and member of the thesis committee, respectively. In addition, he is also thankful to the staffs in the Instrument Laboratory of Chulalongkorn University and Department of Chemical Engineering. He is also special thank to his senior graduate student in Hazardous Laboratory for their help. Finally he would like to express his gratitude especially to his parents and the member of his family for their morale support.

CONTENTS

PAGE

ABSTRACT (IN THAI).....iv

ABSTRACT (IN ENGLISH).....v

ACKNOWLEDGEMENT.....vi

LIST OF TABLES.....ix

LIST OF FIGURES.....x

CHAPTER

1. INTRODUCTION.....1

2. LITERATURE REVIEW.....4

2.1 Properties and Disadvantages of Mercury Compounds.....4

2.1.1 Chemistry.....4

2.1.2 Disadvantages of Mercury in Wastewater.....4

2.2 Properties of Chitosan.....5

2.3 Study of Mercury Removal in Wastewater.....7

2.3.1 Physical Treatment.....7

2.3.2 Chemical Treatment.....7

2.3.3 Adsorption.....8

2.4 Literature Summary.....12

3. EXPERIMENTAL AND ANALYTICAL TECHNIQUES.....13

3.1 Adsorbent Preparation.....13

3.2 Experimental Apparatus and Adsorption Procedures.....14

3.2.1 Experimental Apparatus.....14

3.2.2 Feed Preparation.....15

3.2.3 Adsorption Procedures.....16

3.3 Analysis technique and Errors of Experiments.....16

3.3.1 Adsorbent Characterizations.....16

3.3.2 Standard Test Method for Total Mercury in Water.....18

3.3.3 Experimental and Analysis Error.....20

4. RESULTS AND DISCUSSIONS.....24

4.1 Experimental Procedure and Preliminary Results.....25

4.1.1 Adsorption Experiment.....25

4.1.2 Adsorption Behavior at Low Mercury Concentration.....27

4.1.3 Determination of Adsorption Period.....30

4.2 Experimental Results.....32

4.3 Effects of pH on Adsorption of Mercury Compounds.....39

4.4 Effect of Temperatures.....42

4.5 Effect of Degree of Deacetylation.....44

5. CONCLUSIONS AND RECOMMENDATIONS.....46

5.1 Conclusions.....46

5.2 Recommendations.....47

REFERENCES.....48

APPENDICES.....50

VITA.....73

LIST OF TABLES

Table page

1.1 Level of Mercury in Industrial Wastewater..... ..2

2.1 Summary of Treatment Technology for Mercury.....12

3.1 Variables of the adsorption experiment.....14

3.2 Average of mercury remaining and percent deviation in adsorption on chitosan repetitive study.....21

3.3 average concentration and maximum deviation of mercury compound from chemical oxidation procedure.....22

3.4 Percent of mercury compounds losses from feed at various temperatures.....23

4.1 Comparison of BET surface area, pore diameter and total pore volume in many types of adsorbent.....24

4.1.1 Operating conditions in adsorption of $HgCl_2$ in solution containing 1 ppm.....27

4.1.2 Percent removal and percent deviation in adsorption of $HgCl_2$ in solution containing 1 ppm.....28

4.1.3 Operating conditions in study of effect of contact time.....30

4.1.4 The results of adsorption of mercury compounds in solution containing 10 ppm.....31

4.2.1 Operating condition of all experiments.....32

4.2.2 Percent removal in adsorption of mercury compounds.....33

4.2.3 pH values before and after adsorption of $HgCl_2$ at temperature of $30^{\circ}C$.....37

4.2.4 Percent recovery of mercury compounds from digested adsorbent and desorption.....38

LIST OF FIGURES

Figure page

2.1 Comparison of the molecular structure of cellulose, chitin and chitosan.....6

3.1 Schematic diagrams of vacuum apparatus.....13

3.2 Schematic diagrams of the experiment apparatus. a. for temperature controlled at 30°C and 50°C. b. for temperature controlled at 10°C.....15

3.3 Schematic diagram of apparatus for converts all mercury to the mercury ions...19

4.1.1 Effect of contact time on adsorption of mercury compounds in solution containing 10 ppm.....31

4.2.1 Solubility of PMA in underwater.....34

4.2.2 XRD pattern of mercuric chloride on spent adsorbent.....35

4.2.3 XRD pattern of phenylmercuric acetate on spent adsorbent.....36

4.3.1 The comparison of initial pH of feed in adsorption of $HgCl_2$.....39

4.3.2 The comparison of initial pH of feed in adsorption of PMA.....39

4.4.1 The comparison of operating temperature in adsorption of $HgCl_2$.....42

4.4.2 The comparison of operating temperature in adsorption of PMA.....42

4.5.1 The comparison of degree of deacetylation of chitosan on $HgCl_2$ removal at various pH of feed and temperatures.....44

4.5.2 The comparison of degree of deacetylation of chitosan on PMA removal at various pH of feed and temperatures.....45