

Resumo

Neste trabalho estudou-se a preparação de peneiros moleculares de carbono por modificação de carvões activados, de forma a aproveitar a sua elevada capacidade de adsorção, reduzindo a dimensão da abertura dos poros para valores adequados à separação de misturas gasosas. Para o efeito usaram-se três métodos: tratamento térmico a alta temperatura, deposição de películas de carbono e deposição de carbono por pirólise de hidrocarbonetos (propileno e benzeno).

De modo a obter carvões activados apropriados para posterior modificação pelos métodos referidos (carvões activados essencialmente microporosos), estudou-se igualmente a sua preparação a partir de um carbonizado de casca de côco por activação com vapor de água, com dióxido de carbono, com dióxido de carbono catalisada por KOH e a partir de serrim de madeira de pinho por activação com ácido fosfórico. Concluiu-se que a activação com dióxido de carbono catalisada por potássio é o método que permite obter carvões activados com microporos de menores dimensões. Concluiu-se também que a activação com dióxido de carbono é mais adequada do que a activação com vapor de água para obter carvões activados com um maior volume de microporos de menores dimensões médias. A activação com ácido fosfórico não se mostrou adequada para o objectivo pretendido.

Dado que o comportamento dos carvões activados não depende somente da sua estrutura porosa, efectuou-se a caracterização e modificação da química superficial dos diferentes materiais preparados.

Dos estudos de modificação textural de carvões activados por tratamento térmico concluiu-se que este método não é indicado para a conversão de carvões com elevados volumes de microporos em peneiros moleculares de carbono para a separação de gases. Para carvões com distribuições de tamanhos de microporos mais apertadas foi possível obter materiais com selectividade para as separações O_2/N_2 , CO_2/CH_4 e CH_4/H_2 .

A deposição de películas de carbono por revestimento com polímeros de álcool furfurílico não conduziu a bons resultados, dado que após carbonização as películas apresentam fendas.

Carvões activados com distribuições de tamanhos de microporos apertadas podem ser convertidos em peneiros moleculares para a separação de O_2 e de N_2 , por deposição de carbono a partir da pirólise de benzeno à temperatura de 1023 K. Carvões activados com distribuições de tamanhos de microporos largas não se mostraram adequados para a produção de peneiros moleculares por este método.

Abstract

The present work deals with the preparation of carbon molecular sieves by modification of activated carbons, taking advantage of their high adsorption capacity, by reducing their pore widths to

dimensions suitable for the separation of gas mixtures. Three methods were used for this purpose: high temperature treatments, surface coating with carbon films and carbon deposition from hydrocarbon pyrolysis (propene and benzene).

The preparation of activated carbons suitable for subsequent modification by these methods (essentially microporous carbons) was also studied. A coconut shell char was activated by water vapour, by carbon dioxide and by KOH catalysed gasification with carbon dioxide; in addition, pinewood sawdust was chemically activated with phosphoric acid. The results showed that activation with carbon dioxide catalysed by KOH was the best method to produce activated carbons with micropores of smaller width. It was also concluded that carbon dioxide is a better activation agent than water vapour, when the objective is to produce a large volume of micropores of smaller dimensions. Chemical activation with phosphoric acid was shown to be inadequate for this purpose.

Since the behavior of an activated carbon does not depend only upon its texture, the surface chemistry of the materials prepared was also characterized and modified by suitable post-treatments.

The textural modification by high temperature treatment was found to be inadequate for converting activated carbons of high micropore volume into carbon molecular sieves for the separation of gases. However, it has been possible to prepare materials with reasonable selectivity for the separation O_2/N_2 , CO_2/CH_4 and CH_4/H_2 from carbons with narrow micropore size distributions.

The deposition of carbon films by coating with polyfurfuryl alcohol polymers did not give good results, since the films became fractured upon carbonization.

Activated carbons with narrow micropore size distributions can be converted into carbon molecular sieves for the separation of O_2 and N_2 by carbon deposition from benzene pyrolysis at 1023 K. Materials with wider micropore size distributions were not found suitable for the production of carbon molecular sieves by these methods.