

Journal of Water and Wastewater, Vol. 31, No.3, pp: 138-146

# Petroleum Effluent Treatment Using Ultrafiltration Nanocomposite Membrane Made of Polysulfone and Cellulose Nanocrystal

R. Moeinzadeh<sup>1</sup>, D. Emadzadeh<sup>2</sup>, A. Ghadami Jadval Ghadam<sup>3</sup>

1. PhD Candidate, Dept. of Chemical Engineering, Yasooj Branch, Islamic Azad University, Yasooj, Iran
2. Assist. Prof., Dept. of Chemical Engineering, Membrane Science and Technology Research Center (MSTRC), Gachsaran Branch, Islamic Azad University, Gachsaran, Iran
3. Assist. Prof., Dept. of Chemical Engineering, Yasooj Branch, Islamic Azad University, Yasooj, Iran  
(Corresponding Author) aghadami80@gmail.com

(Received Jan. 13, 2019 Accepted Sep. 5, 2019)

#### To cite this article:

Moeinzadeh, R., Emadzadeh, D., Ghadami Jadval Ghadam, A. 2020. "Petroleum effluent treatment using ultrafiltration nanocomposite membrane made of polysulfone and cellulose nanocrystal" Journal of Water and Wastewater, 31(3), 138-146. Doi: 10.22093/wwj.2019.167556.2809. (In Persian)

## Abstract

Petroleum effluent treatment uses ultrafiltration nanocomposite membrane made of polysulfone and cellulose nanocrystal. In this study, nanocomposite membranes were synthesized by adding different amounts of cellulose nanocrystals (CNCs) to polysulfone membrane (PSF) in order to enhance the membrane's anti-fouling properties against the accumulation of oil particles and then synthesize the membrane properties by spectral analysis. Scanning electron microscopy (SEM), infrared spectroscopy FTIR and contact angle test (CA) were applied to investigate membrane morphology. The results showed that the porosity and hydrophilicity of PSF/NC composite membrane were significantly improved. Experiments related to the performance of the petroleum effluent ultrafiltration system have shown that nanocomposite membranes with 1% cellulose nanocrystals (CNCs) increase the water flux by 60%, excreting about 100% of the petroleum compounds, and optimally recovering the water flow to 94.4%. The findings suggest that the newly developed nanocomposite membrane is an optimal choice for treatment of low concentrated oily wastewater.

**Keywords:** Cellulose Nanocrystal, Polysulfone, Nanocomposite Membranes, Water Flux.



مجله آب و فاضلاب، دوره ۳۱، شماره ۳، صفحه: ۱۴۶-۱۳۸

## تصفیه پساب‌های نفتی با استفاده از غشای نانوکامپوزیت اولترافیلتراسیون ساخته شده از پلی سولفون و نانوبلورهای سلولزی

رضا معین‌زاده<sup>۱</sup>، داریوش عمادزاده<sup>۲</sup>، ابوطالب قدمی جدول قدم<sup>۳</sup>

۱- دانشجوی دکترا، گروه مهندسی شیمی، واحد یاسوج، دانشگاه آزاد اسلامی، یاسوج، ایران  
 ۲- استادیار، گروه مهندسی شیمی، مرکز تحقیقات علوم و فناوری غشا، واحد گچساران، دانشگاه آزاد اسلامی، گچساران، ایران  
 ۳- استادیار، گروه مهندسی شیمی، واحد یاسوج، دانشگاه آزاد اسلامی، یاسوج، ایران  
 (نویسنده مسئول) aghadami80@gmail.com

(دریافت ۹۷/۱۰/۲۳ پذیرش ۹۸/۶/۱۴)

برای ارجاع به این مقاله به صورت زیر اقدام بفرمایید:

معین‌زاده، ر.، عمادزاده، د.، قدمی جدول قدم، ا.، ۱۳۹۹، "تصفیه پساب‌های نفتی با استفاده از غشای نانوکامپوزیت اولترافیلتراسیون ساخته شده از پلی‌سولفون و نانوبلورهای سلولزی" مجله آب و فاضلاب، ۳۱(۳)، ۱۴۶-۱۳۸. Doi: 10.22093/wwj.2019.167556.2809

### چکیده

به دلیل افزایش انتشار پساب‌های نفتی و همچنین آلودگی‌های محیط زیستی نفت خام، جداسازی نفت و آب یک موضوع محیط زیستی جهانی محسوب می‌شود. در این پژوهش، غشاهای نانوکامپوزیت با اضافه نمودن مقدار مختلف از نانوبلورهای سلولزی (CNC) به غشای پلی‌سولفون (PSF) با هدف افزایش خاصیت ضد رسوبی غشا در مقابل تجمع ذرات نفت، سنتز شدند و سپس مشخصات غشای سنتز شده توسط آنالیزهای میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)، طیف‌سنجی مادون قرمز (FTIR) و تست زاویه تماس (CA) بررسی شد. نتایج به دست آمده از این پژوهش نشان داد که تخلخل و آب‌دوستی غشای ترکیبی PSF/NC به طور چشمگیری بهبود یافت. نتایج آزمایش‌های مرتبط با عملکرد سیستم اولترافیلتراسیون پساب‌های نفتی نشان دادند که غشای نانوکامپوزیت با ۱ درصد CNC موجب افزایش ۶۰ درصدی شار آب، دفع حدود ۱۰۰ درصد ترکیبات نفتی و بازیابی مطلوب جریان آبی تا ۹۴/۴ درصد می‌شود. این یافته‌ها نشان داد که غشای نانوکامپوزیت ساخته شده، یک انتخاب مناسب برای تصفیه فاضلاب نفتی با غلظت کم نفت است.

**واژه‌های کلیدی:** نانوبلورهای سلولزی، پلی سولفون، غشاهای نانوکامپوزیت، شار آب

### ۱- مقدمه

معکوس (Mohammadi et al., 2003)، اولترافیلتراسیون (Lai et al., 2018, Lu et al., 2018, Meng et al., 2018)، میکروفیلتراسیون (Meng et al., 2018)، و تقطیر غشایی (Hou et al., 2018). غشاها گزینه بسیار مناسبی برای تصفیه پساب‌های نفتی هستند و این امر به دلیل مزایای منحصر به فردی مانند کارایی بهینه در راستای جداسازی،

توسعه فناوری در صنایع نفت، گاز، پتروشیمی، دارویی، متالورژی و غذایی به طور اجتناب‌ناپذیر منجر به تولید پساب‌های نفتی می‌شود. در این مورد، برخی از روش‌های جداسازی غشایی کاربردی عبارتند از: حذف آب همراه امولسیون نفت در آب از طریق تراوش-تبخیری (Chen and Huang, 2018) و یا اسمز



میکروسکوپ الکترونی روبشی<sup>۳</sup>، سنجش مادون قرمز تبدیل فوریه<sup>۴</sup> و زاویه تماس بررسی شدند.

## ۲- مواد و روش‌ها

### ۲-۱- مواد

برای ساخت غشا پلی‌سولفون Udel P-2700 (پلیمرهای پیشرفته Solvay)، ۱ متیل ۲ پیرولیدینون<sup>۵</sup>، پلی وینیل پیرولیدون<sup>۶</sup> (سیگما آلدریج K30)، نانوبلورهای سلولزی (CelluForce Inc. Montreal, QC, Canada) با ابعاد کمتر از ۵۰ نانومتر مورد استفاده قرار گرفت. نمونه‌های پساب نفتی واحدهای نمک‌زدایی گچساران در این پژوهش استفاده شد و اندازه‌گیری توسط طیف‌سنجی فرابنفش<sup>۷</sup> انجام شد.

### ۲-۲- آماده کردن غشا

چهار غشای اولترافیراسیون با استفاده از محلول‌های ۱۷ درصد پلیمر PSF آماده شدند. به منظور آماده کردن محلول پلیمری، نانوذرات سلولز به دلیل جامد بودن و برای حل شدن در مرحله اول به حلال NMP (با درصد‌های ۸۰ تا ۸۲ درصد، با توجه به درصد نانوذرات) اضافه شدند و در گام بعدی، محلول در معرض امواج فراصوت ۳۰ دقیقه‌ای قرار گرفت تا تجمیع CNC به حداقل برسد و ذرات تا حد امکان حل شوند. در گام بعدی پلیمر ۵/۰ درصد حفره‌ساز PVP برای حفره‌سازی در ساختار غشا اضافه شد و PSF به تدریج با تکان دادن به محلول اضافه شد. محلول همگن در دمای ۲۵ درجه سلسیوس به مدت ۲۴ ساعت رها شد تا حباب‌های گیر افتاده به تدریج در محلول آزاد شوند. سپس محلول، با استفاده از فیلم‌کش مخصوص قالب‌گیری، بر روی یک صفحه شیشه‌ای با ضخامت ۲۰۰ میکرومتر ریخته شد و به سرعت درون حمام انعقاد آبی در دمای اتاق قرار گرفت تا باعث شود که وارونگی فاز، غشا را از صفحه شیشه‌ای جدا کند و آن را به حمام آب دیگری انتقال دهد. تا هرگونه ماده باقیمانده و ذرات آب از بین برود. غشاهای PSF بر اساس بارگذاری NC با نام‌های M0 (شاهد)، MNC0.5، MNC1 و MNC2 نام‌گذاری شدند.

عملکرد مستقیم، هزینه‌های انرژی و تعمیرات کمتر و عدم استفاده از مواد شیمیایی است (Holloway et al., 2005, Li et al., 2006)

گرفتگی می‌تواند به‌عنوان یک مشکل اساسی در غشاها مطرح شود که این پدیده به دلیل تجمع لایه‌ای از ذرات نفت بر روی سطح غشا و یا مسدود شدن منافذهای غشا توسط قطرات نفت، روی می‌دهد که به‌طور کلی منجر به کاهش قابل توجهی در شار عبوری از غشا می‌شود (Zhao et al., 2005, Loeb, 2010).

غشاهای پلی‌سولفون<sup>۱</sup> به دلیل پایداری فیزیکی-شیمیایی، مکانیکی و هیدرولیکی به‌طور عمده مورد استفاده قرار می‌گیرند. ماهیت آب‌دوستی غشاهای پلی‌سولفون می‌تواند منجر به گرفتگی این غشاها شود که این موضوع روی کارایی غشاهای مزبور تأثیر نامطلوب دارد (Al Amer et al., 2016, Bian et al., 2000).

غشاها می‌توانند به‌واسطه ترکیب پلیمرهای غشا با یک عامل اصلاح‌کننده در فرایند سنتز غشا، تغییر یابند و یا اینکه می‌توانند بعد از آماده‌سازی غشا، تحت تغییرات سطحی قرار گیرند. مزایای اصلاح سطحی عبارتند از اصلاح خصوصیات سطحی مانند قطبیت و ترشوندگی که این خصوصیات زمانی مطرح می‌شوند که خواص توده، دست‌نخورده باقی بماند (Al-Juboori and Yusaf, 2012, Bian et al., 2000).

نانوبلورهای سلولزی<sup>۲</sup> زیست‌تخریب‌پذیر و احیا شونده هستند و اثرات محیط‌زیستی کمی دارند و می‌توانند به‌عنوان ذرات غیرسمی و ایمن طبقه‌بندی شوند. خصوصیات CNC توجه بسیار زیادی را در زمینه کاربردهای مختلف به خود جلب کرده است که این کارکردها عبارتند از پلیمرهای نانوذره، انتقال دارو، پوشش محافظ، سلول‌های خورشیدی و مهندسی زیست‌شناسی (Salter, 2006, Celik et al., 2011).

با توجه به خواص منحصر به فرد CNC برای اولین بار از این نانوبلورها در غشای اولترافیلتراسیون برای جداسازی نفت از آب استفاده شده است. همچنین تأثیر CNC بر روی عملکرد غشا و گرفتگی رسوبات بر روی سطح غشا بررسی شد.

در این پژوهش برای تأیید اثر نانوذرات بر روی غشا، خصوصیات سطح غشاهای سنتز شده به‌وسیله آنالیزهای

<sup>3</sup> Scanning Electron Microscope (SEM)

<sup>4</sup> Fourier Transform Infrared (FTIR)

<sup>5</sup> N-methyl-2-pyrrolidone (NMP)

<sup>6</sup> Poly Vinyl Pyrrolidone (PVP)

<sup>7</sup> Ultraviolet- Spectroscopy

<sup>1</sup> Polysulfone (PSF)

<sup>2</sup> Cellulose Nano Crystals (CNC)



### ۲-۳- ارزیابی عملکرد غشا

آماده‌سازی غشای آزمایشی اولترافیلتراسیون در فرایند فیلتراسیون با جریان متقاطع، به این منظور استفاده شد که نفوذپذیری و گزینش غشا، قابل تشخیص باشد (شکل ۱). طرح مربوط به نفوذپذیری سلول، مساحت کلی تأثیرگذار غشا در حدود ۲/۲ سانتی‌متر مربع را ایجاد کرد. تحت این آزمایش‌های اولترافیلتراسیون، جریان آب (J) و نفوذپذیری (A) توسط معادلات ۱ و ۲ به دست آمدند (Emadzadeh et al., 2015)

$$J = \frac{\Delta V}{A_{m\Delta t}} \quad (1)$$

$$J = \frac{J}{\Delta P} \quad (2)$$

که در آن

Am نشان‌دهنده مساحت تأثیرگذار غشا است و  $\Delta V$ ،  $\Delta t$  و  $\Delta P$  نشان‌دهنده تفاوت‌های حجم، زمان و فشار بین غشایی است.

که در آن

$C_p$  و  $C_f$  به ترتیب بیان‌کننده غلظت‌های پساب نفتی ورودی و نفوذ کرده به سامانه غشایی هستند.

به منظور ارزیابی خصوصیات ضد گرفتگی غشاهای اصلاح‌شده، نسبت بازیابی جریان<sup>۱</sup> بررسی شد. تأثیر اضافه کردن CNC در ترکیب مخلوط، بر روی خصوصیات ضد گرفتگی غشایی می‌تواند به صورت روشن بیان شود. FRR به صورت زیر به دست می‌آید

$$FRR = \frac{J_b}{J_a} \times 100 \quad (4)$$

که در آن

$J_b$  و  $J_a$  به ترتیب شار آب اولیه و بعد از شستشو هستند.

به علاوه، به منظور تشخیص تخلخل کلی ( $\varepsilon$ ، %) معادله ۵ با در نظر گرفتن تفاوت در وزن غشا قبل و بعد از خشک شدن استفاده شد

$$\varepsilon(\%) = \frac{W_w - W_d}{\rho \times A \times L} \times 100 \quad (5)$$

که در آن

A مساحت تأثیرگذار غشا، L ضخامت غشا،  $\rho$  چگالی آب،  $W_w$  و  $W_d$  اوزان غشای تر و غشای خشک هستند.

### ۲-۴- تعیین مشخصات غشا

برای تعیین گروه‌های کاربردی در سطح غشا، طیف نگار<sup>۲</sup> (Perkin-Elmer FT-IR) استفاده شد. تصاویر مقطعی و سطحی SEM در بزرگنمایی‌های مختلف به وسیله میکروسکوپ رومیزی HITACHI S-4160 تهیه شدند. زاویه‌سنج OCA15pro، Dataphysics Instrument GmbH Filderstadt استفاده شد تا زوایای برخورد غشا بررسی شود.

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- تأثیر ذرات نانو کریستال

جدول ۱ نشان‌دهنده تغییرات خصوصیات غشای PSF با اضافه

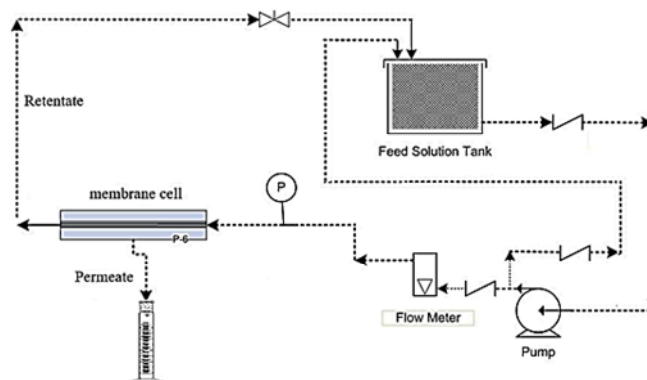


Fig. 1. Ultrafiltration system for water treatment

شکل ۱- سیستم اولترافیلتراسیون برای تصفیه آب

غلظت نفت همراه پساب استفاده شده در حدود ۵۰ تا ۱۰۰۰ ppm و اختلاف فشار بین غشایی به میزان ۱ Bar تثبیت شده بود. به منظور کاهش قطبیت غلظت خارجی، میزان عبور مقطعی ۲ لیتر در دقیقه استفاده شد و به منظور به دست آوردن ظرفیت دفع ذرات نفت در غشا ( $J(\%)$ )، از معادله زیر استفاده شد

$$J = (1 - \frac{C_p}{C_f}) \times 100 \quad (3)$$

<sup>1</sup> Flow Recovery Rate (FRR)

<sup>2</sup> Attenuated Total Reflectance- Fourier Transform Infrared Spectroscopy (ATR-FTIR)



جدول ۱- تأثیر غلظت نانوکریستال بر روی ویژگی‌های غشای PSF در رابطه با زاویه تماس، جریان آب خالص، تخلخل کلی و اندازه منافذ

**Table 1.** Effect of nanocrystal concentration on PSF membrane properties in relation to contact angle, pure water flow, total porosity and pore size

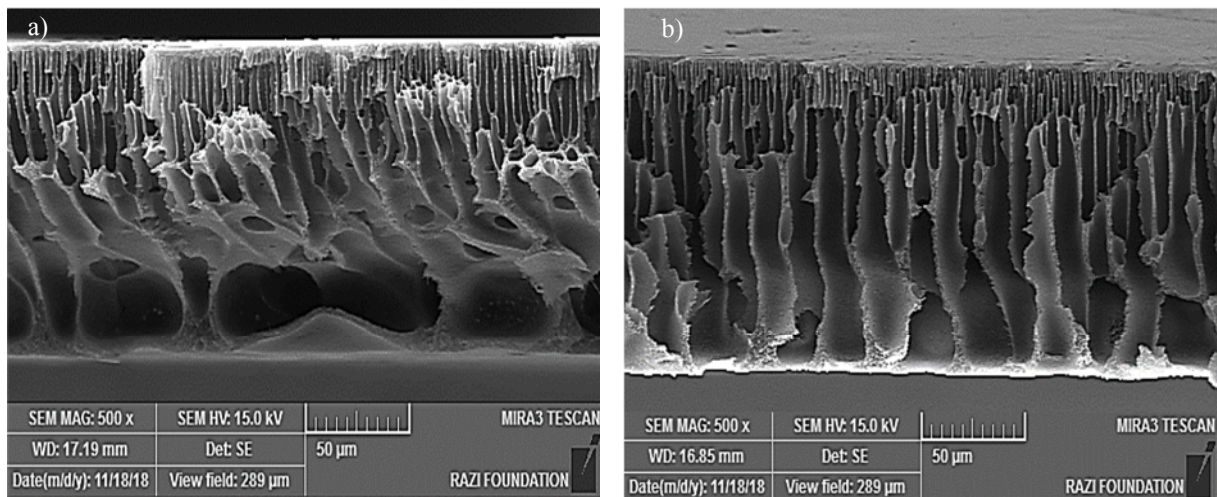
Membrane	Flux (L/m <sup>2</sup> .h.bar)	Contact angle (°)	Pore size (nm)	Overall porosity (%)
M (control)	80.5	70	98	72
MNC0.5	122.5	68	73	78
MNC1	242.4	59	54	84
MNC2	252.2	48	48	78

این موضوع هستند که ساختار انگشت‌مانند گسترش یافته، می‌تواند از بالا تا پایین غشای مقطعی برسد که این گسترش به دلیل افزایش غلظت نانوکریستال از صفر به ۲ درصد وزنی است. این تفاوت‌ها در ریخت‌شناسی غشا می‌تواند به دلیل تغییرات زیاد بین حالت حلال و غیرحلال در روند وارونگی فاز باشند. در مقایسه با محلول PSF خالص، وجود CNC آب‌دوست در محلول می‌تواند به میزان زیادی باعث افزایش تخلخل کلی شود (Asempour et al., 2018).

با این وجود، اندازه منافذ بر روی سطح غشا، اندازه‌گیری می‌شود و بارگذاری بیش از حد CNC (بیش از ۱ درصد وزنی) می‌تواند منجر به گرفتگی قابل توجه منافذ سطح غشا شود و این فرایند با کاهش تخلخل کلی و تخلخل سطحی CNC عملی می‌شود.

کردن نانوذرات نانوکریستال در غلظت‌های متعدد است. همان‌طور که نشان داده شده است، آب‌دوستی غشای PSF می‌تواند به واسطه اضافه کردن CNC آب‌دوست به محلول پلیمری، بهبود یابد. مقدار زاویه برخورد می‌تواند از ۷۰ درجه در M (حالت شاهد) به ۴۸ درجه در MNC2 کاهش یابد که بیان‌کننده آن است که افزایش آب‌دوستی غشا می‌تواند منجر به جریان آب خالص بیشتر شود. به علاوه، اندازه میانگین منافذ PSF از ۹۸ به ۵۴ نانومتر و تخلخل کلی از ۷۲ به ۸۴ درصد رسید و باعث افزایش بارگذاری نانوکریستال‌ها شد. در نتیجه، نفوذپذیری آب می‌تواند به واسطه افزایش تخلخل کلی، افزایش یابد.

شکل ۲ نشان‌دهنده تصاویر SEM از مقطع غشاهای نانوکامپوزیت PSF است. تصاویر SEM به‌طور واضح نشان‌دهنده



**Fig. 2.** The SEM cross section of the PSF membrane generated from the loading of various nanoparticles (a) M (control), (b) MNC-1

شکل ۲- سطح مقطع SEM مربوط به غشای PSF تولیدشده از بارگذاری‌های نانوذرات مختلف (a) M (شاهد)، (b) MNC-1



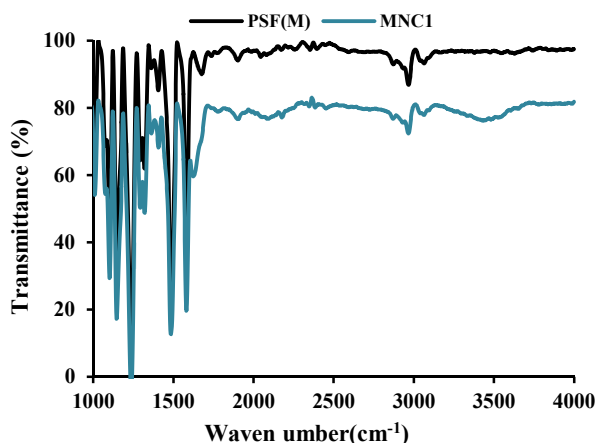


Fig. 3. ATR-FTIR for a) PSF(M) and b) MNC1 nanocomposite membranes

شکل ۳- ATR-FTIR مربوط به غشاهای (a) PSF(M) و

(b) نانوکامپوزیت MNC1

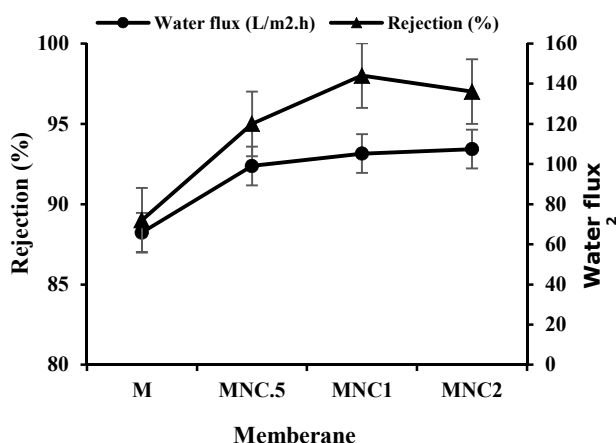


Fig. 4. Separation of PSF and PSF/NC membranes in the treatment of oil waste (concentration of oil introduced into the process: 250 ppm and PH 7)

شکل ۴- عملکرد جداسازی غشاهای PSF و PSF/NC در تصفیه

پساب‌های نفتی (غلظت نفت وارد شده به فرایند: ۲۵۰ ppm

و با pH حدود ۷)

خود نسبت به غشای PSF پیشین در دوره آزمایشی نشان دادند. با این وجود به نظر می‌رسد که MNC1 می‌تواند نتایج خوبی در ارتباط با شار آب زیاد ۱۰۵ لیتر بر مترمربع در ساعت و دفع نفت بیشتر از ۹۸ درصد، ارائه دهد.

دو عامل اصلی مربوط به عملکرد بهینه غشا MNC1 از این قرار هستند: در مرحله اول، اندازه منافذ غشا با مساحت کم می‌تواند از عبور ذرات نفت در طول غشا جلوگیری کند. در حالی که اندازه‌های

SEM مجهز به EDX<sup>۱</sup> برای بررسی ترکیب عنصری پلی‌سولفون خالص و اصلاح شده با نانوسولوز استفاده شد؛ نتایج در جدول ۲ نشان داده شده است. طیف EDX از غشای پلی‌سولفون اصلاح نشده نشان‌دهنده سه قله در اطراف انرژی‌های اتصال است که با اتم‌های کربن (C)، اکسیژن (O) و گوگرد (S)، است. از آنجایی که نانوسولوز نیز از همین عناصر تشکیل شده است، آنالیز طیف‌های غشای نانوکامپوزیت حاصل از پلی‌سولفون و نانوسولوز درصدهای متفاوت از این عناصر را نشان می‌دهد.

جدول ۲- تجزیه و تحلیل عناصر غشای خالص و اصلاح شده

Table 2. Analysis of neat and modified membrane

Membrane	Element(wt%)			Total
	C	O	S	
PSF	80.77	14.95	2.95	100
Nanocomposite	81.21	15.69	3.1	100

شکل ۳ نشان‌دهنده طیف FTIR غشای PSF و غشای نانوکامپوزیت با ۱ درصد CNC است. مشخصه‌هایی مانند نقاط اوج بسط یافته از CNC، بیان‌کننده مقدار ۳۵۰۰ و ۳۲۵۰ است که مختص به ارتعاشات کششی O-H است. در ارتباط با طیف مربوط به غشا، نقاط اوج در ۲۴۸۶، ۲۵۰۳ و ۲۵۸۴ بر سانتی‌متر می‌تواند مربوط به پلی‌سولفون باشد. در مقایسه با غشای PSF شاهد، طیف گسترده در حدود ۳۴۵۷ بر سانتی‌متر در غشای نانوکامپوزیت می‌تواند به دلیل ارتعاشات کششی O-H مربوط به نانوکریستال‌ها روی دهد (Asempour et al., 2018).

۳-۲- تصفیه پساب‌های نفتی توسط سیستم اولترافیلتراسیون

شکل ۴ نشان‌دهنده جریان مقطعی آزمایش اولترافیلتراسیون پساب نفتی است که دارای جریان نفوذی با غلظت ۲۵۰ ppm و دفع نفت توسط غشاهای حالت ثابت شار است. شار عبوری پساب نفتی خیلی کمتر از شار آب خالص است که این موضوع به دلیل پوشش سطح غشا توسط لایه نفتی است. شار عبوری بهینه غشاهای نانوکامپوزیت می‌تواند به دلیل ریخت‌شناسی بهتر غشا تحت تخلخل زیاد و آب‌دوستی، افزایش یافته باشد. در ارتباط با موضوع دفع نفت، می‌توان دید که تمام غشاهای نانوکامپوزیت دفع بیشتری از

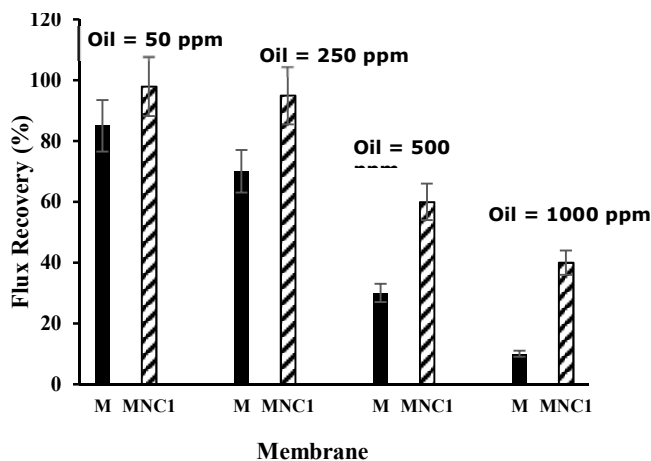
<sup>1</sup> Energy Dispersive X-ray (EDX)



بخشد. همچنین می‌تواند تر شونده‌گی غشا را اصلاح کند و انرژی آزاد سطحی را از منفی به مثبت تبدیل کند و در نتیجه آب‌دوستی سطح را افزایش دهد.

شکل ۶ نشان‌دهنده نسبت بازیابی شار در غلظت‌های ورودی متفاوت (۵۰ تا ۱۰۰۰ ppm) است. همان‌طور که در شکل ۶ نشان داده شده است، اصلاحات معنی‌داری در بازیابی شار آب به‌واسطه بارگذاری نانوکریستال‌ها برای هر غلظت نفت روی داده است. به‌علاوه نسبت زیاد بازیابی PSF/NC-1 بیان‌کننده خصوصیت ضد گرفتگی بهینه آن، به‌واسطه کم کردن شکل‌دهنده لایه نفت بر روی سطح غشا و یا گرفتگی منفذ با قطرات نفت است. همان‌طور که در شکل ۶ نشان داده شده است، افزایش‌های صورت گرفته در غلظت نفت همراه جریان ورودی می‌تواند تأثیر نامطلوبی روی بازیابی شار آبی داشته باشد، زیرا لایه ضخیمی از نفت بر روی سطح غشا شکل می‌گیرد و آب تمیزکننده نمی‌تواند به‌صورت بهینه لایه جذب‌شده را تمیز کند. در نتیجه می‌توان بیان کرد که نانوذرات CNC آب‌دوست دارای توان بالقوه برای افزایش آب‌دوستی غشا و مقاومت ضد گرفتگی در مقابل قطرات نفت در طول روند تصفیه پساب‌های نفتی هستند.

جدول ۳ مقایسه نتایج این پژوهش با پژوهش‌های گذشته را به خوبی نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود غشای ساخته شده در این پژوهش نه تنها شار آب زیادی دارد، بلکه تقریباً تمام نفت موجود در آب را به خوبی جدا می‌کند.

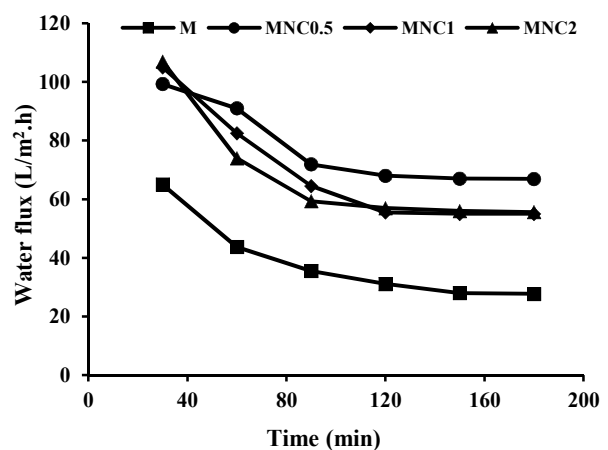


**Fig. 6.** Water flux recovery from nanocomposite membranes at different concentrations of oil wastewater  
شکل ۶- بازیابی شار آب از غشاها نانوکامپوزیت در غلظت‌های مختلف پساب‌های نفتی

منفذ تمام غشاهای نانوکامپوزیت به‌طور متوسط کمتر از قطرات نفت هستند، طیف گسترده توزیع اندازه منافذ غشای PSF می‌تواند زمینه را برای قطرات نفت مهیا سازد تا بتوانند فرایند دفع ذرات نفت را بهبود دهند. با این وجود، گرفتگی منافذ، به تدریج از طریق شکل‌دهی تجمع ذرات نفت در دیواره غشا روی می‌دهد که در نهایت منجر به باریک‌تر شدن مجرای شار عبوری می‌شود. در گام دوم، آب‌دوستی زیاد غشا MNC1 می‌تواند ته‌نشینی و یا رانشینی ذرات را کاهش دهد.

### ۳-۳- گرفتگی غشا و بازیابی شار

شکل ۵ تمایل به گرفتگی غشاهای PSF و MNC1 در فرایند اولترافیلتراسیون به‌عنوان تابعی از زمان فیلتراسیون را نشان می‌دهد. با توجه به کاهش‌های صورت گرفته در میزان شار، غشای MNC1 در برابر گرفتگی، مقاومت بیشتری نسبت به غشاهای PSF و سایر غشاهای نانوکامپوزیت دارد. افزودن نانوکریستال‌ها، می‌تواند تجمع ذرات نفت در سطح غشای MNC1 را کاهش دهد، در نتیجه می‌تواند مقاومت در مقابل گرفتگی را اصلاح کند. لایه هیدراته شده بر روی سطح آب‌دوست نانوکریستال‌ها می‌تواند خصوصیات ضد گرفتگی سطح غشا را به‌واسطه ایجاد مانع در مقابل مولکول‌های نفتی به سطح غشایی افزایش دهد و تعامل بین اتصال مولکول‌های آب و هیدروژن به‌واسطه چگالی زیاد نواحی اهدا کننده الکترون بر روی سطح غشا نانوکامپوزیت را بهبود



**Fig. 5.** Fouling tendency of PSF and MNC1 membranes in ultrafiltration process as a function of filtration time  
شکل ۵- تمایل به گرفتگی غشاهای PSF و MNC1 در فرایند اولترافیلتراسیون به‌عنوان تابعی از زمان فیلتراسیون

## جدول ۳- مقایسه نتایج این پژوهش با پژوهش‌های گذشته

Table 3. Comparison the results of this research with literature

Membrane	Feed (ppm)	Water flux (L/m <sup>2</sup> .h.bar)	Rejection (%)	Reference
PSF+NC	250	105	98.5	Present study
PES	100	71	97.8	(Chakrabarty et al., 2008)
Polyacrylnitrile	300	133.8	-	(Sarfaz et al., 2012)
PES+HMO	1000	39	100	(Gohari et al., 2014)

## ۴- نتیجه‌گیری

بر این، نتایج رسوب در غشا نشان داد این غشا مقاومت بسیار خوبی نسبت به بقیه غشاها از خود نشان می‌دهد که به دلیل وجود نانوذرات آب دوست سلولز بر روی سطح و بالک غشا است. همچنین نتایج بازیابی آب از غشا، بازیابی بسیار خوب غشای نانوکامپوزیت را نشان داد. میزان بازیابی غشا برای غلظت‌های کمتر نفت نتایج مطلوب‌تری در برداشت.

## ۵- قدردانی

نویسندگان مقاله از دانشگاه آزاد اسلامی واحد یاسوج به خاطر حمایت‌هایی که در انجام این پژوهش انجام داده‌اند تشکر و قدردانی می‌کنند.

در این پژوهش جداسازی ترکیبات نفتی در امولسیون نفت در آب با استفاده از PSF/NC1 بررسی شد. بر اساس نتایج تحلیل‌های SEM نانوکریستال‌ها به خوبی توانستند ساختار ترکیب غشاها را تغییر دهند که این کار با اصلاح تخلخل منافذ انجام می‌گیرد. همچنین نتایج این پژوهش نشان داد که اضافه کردن نانوذرات CNC، آب دوستی غشا و مقاومت ضد گرفتگی در مقابل تجمع ذرات نفت را بهبود می‌دهد. اگرچه با افزایش غلظت نانوذرات، شار عبوری افزایش می‌یابد ولی در غلظت‌های بیشتر از ۱ درصد نانوذرات، میزان دفع کاهش می‌یابد. بنابراین غشای PSF/NC1 با تغییرات شار آب از ۸۰ به ۱۱۲ لیتر بر مترمربع در ساعت افزایش و دفع نفت بیش از ۹۸ درصد، بهترین عملکرد را نشان داد. علاوه

## References

- Al-Juboori, R. A. & Yusaf, T. 2012. Biofouling in RO system: mechanisms, monitoring and controlling. *Desalination*, 302, 1-23.
- Al Amer, A. M., Laoui, T., Abbas, A., Al-Aqeeli, N., Patel, F., Khraisheh, M. et al. 2016. Fabrication and antifouling behaviour of a carbon nanotube membrane. *Materials and Design*, 89, 549-558.
- Asempour, F., Emadzadeh, D., Matsuura, T. & Kruczek, B. 2018. Synthesis and characterization of novel cellulose nanocrystals-based thin film nanocomposite membranes for reverse osmosis applications. *Desalination*, 439, 179-187.
- Bian, R., Yamamoto, K. & Watanabe, Y. 2000. The effect of shear rate on controlling the concentration polarization and membrane fouling. *Desalination*, 131, 225-236.
- Celik, E., Liu, L. & Choi, H. 2011. Protein fouling behavior of carbon nanotube/polyethersulfone composite membranes during water filtration. *Water Research*, 45(16), 5287-5294.
- Chakrabarty, B., Ghoshal, A. & Purkait, M. 2008. Ultrafiltration of stable oil-in-water emulsion by polysulfone membrane. *Journal of Membrane Science*, 325(1), 427-437.
- Chen, T. H. & Huang, Y. H. 2018. Dehydration of waste cutting oil using a pervaporation process. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 82, 75-79.





- Emadzadeh, D., Lau, W., Rahbari-Sisakht, M., Daneshfar, A., Ghanbari, M., Mayahi, A. et al. 2015. A novel thin film nanocomposite reverse osmosis membrane with superior anti-organic fouling affinity for water desalination. *Desalination*, 368, 106-113.
- Holloway, R.W., Childress, A.E., Dennett, K.E. & Cath, T.Y. 2007. Forward osmosis for concentration of anaerobic digester centrate. *Journal of Water Research*, 41, 4005-4014.
- Gohari, R. J., Halakoo, E., Lau, W., Kassim, M., Matsuura, T. & Ismail, A. 2014. Novel polyethersulfone (PES)/hydrous manganese dioxide (HMO) mixed matrix membranes with improved anti-fouling properties for oily wastewater treatment process. *RSC Advances*, 4(34), 17587-17596.
- Hou, D., Wang, Z., Wang, K., Wang, J. & Lin, S. 2018. Composite membrane with electrospun multiscale-textured surface for robust oil-fouling resistance in membrane distillation. *Journal of Membrane Science*, 546, 179-187.
- Lai, G., Yusob, M., Lau, W., Gohari, R. J., Emadzadeh, D., Ismail, A. et al. 2017. Novel mixed matrix membranes incorporated with dual-nanofillers for enhanced oil-water separation. *Separation and Purification Technology*, 178, 113-121.
- Li, Y. S., Yan, L., Xiang, C. B. & Hong, L. J. 2006. Treatment of oily wastewater by organic-inorganic composite tubular ultrafiltration (UF) membranes. *Desalination*, 196, 76-83.
- Loeb, S. 2010. One hundred and thirty benign and renewable megawatts from Great Salt Lake. *Desalination*, 14, 436-440.
- Lu, D., Liu, Q., Zhao, Y., Liu, H. & Ma, J. 2018. Treatment and energy utilization of oily water via integrated ultrafiltration-forward osmosis-membrane distillation (UF-FO-MD) system. *Journal of Membrane Science*, 548, 275-287.
- Meng, F. N., Zhang, M. Q., Ding, K., Zhang, T. & Gong, Y. K. 2018. Cell membrane mimetic PVDF microfiltration membrane with enhanced antifouling and separation performance for oil/water mixtures. *Journal of Materials Chemistry A*, 6(7), 3231-3241.
- Mohammadi, T., Kazemimoghadam, M. & Saadabadi, M. 2003. Modeling of membrane fouling and flux decline in reverse osmosis during separation of oil in water emulsions. *Desalination*, 157, 369-375.
- Salter, R. J., 2006. Forward osmosis. *Water Conditioning and Purification International*, 48, 36-38.
- Sarfraz, M. V., Ahmadpour, E., Salahi, A., Rekabdar, F. & Mirza, B. 2012. Experimental investigation and modeling hybrid nano-porous membrane process for industrial oily wastewater treatment. *Chemical Engineering Research and Design*, 90(10), 1642-1651.
- Zhao, Y., Tan, Y., Wong, F. S., Fane, A. & Xu, N. 2005. Formation of dynamic membranes for oily water separation by crossflow filtration. *Separation and Purification Technology*, 44, 212-220.

