

سنتز و ارزیابی کارایی غشای اسمز معکوس با گرافن عامل دار شده

سجاد جلالی^۱، عبدالله رشیدی^۱، جلال شایگان^{۲*}، مریم میرابی^۱، سیاوش مداینی^۳

۱. دانشکده عمران و مهندسی محیط زیست، دانشگاه شهید بهشتی، تهران، ایران
۲. دانشکده مهندسی شیمی و نفت، دانشگاه صنعتی شریف، تهران، ایران
۳. دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه رازی کرمانشاه، کرمانشاه، ایران

مشخصات مقاله

تاریخچه مقاله:

دریافت: ۱۱ اردیبهشت ۱۳۹۸

دریافت پس از اصلاح: ۱۰ شهریور ۱۳۹۸

پذیرش نهایی: ۳۰ شهریور ۱۳۹۸

کلمات کلیدی:

غشای پلی آمیدی

مقاومت در برابر کلر

افزایش شار

چکیده

رایج ترین روش از بین فن آوری های نمک زدایی، روش غشایی است. با وجود کاربرد زیاد روش یادشده، این شیوه دارای ضعف هایی مانند شار محدود و مقاومت کم در برابر کلر است. در این تحقیق، یک راه حل بر پایه استفاده از اکسید گرافن عامل دار شده با تیونیل کلراید (GO-OCI) در ساختار غشای پلی آمیدی پیشنهاد شده است. برای عملی کردن این ایده از یک روش جدید برای بهینه سازی تولید غشای حاوی GO-OCI استفاده شد. در گام اول طراحی آزمایش ها با استفاده از روش طراحی مخلوط حددار (CMD) صورت پذیرفت. براساس آن سیزده ترکیب از سه ماده: تریمیسل کلرید، m-فنیلین دی آمین و GO-COCl انتخاب شد. سپس خصوصیتی از جمله دفع نمک، مقاومت در برابر کلر و شار اندازه گیری گردید. با استفاده از روش بهینه سازی چند متغیره با بهینه کردن سه پارامتر یادشده، غلظت بهینه به دست آمد و متعاقباً غشای متناظر با آن ساخته شد. از مقایسه عملکرد غشای بهینه ساخته شده، با غشاء پلی آمیدی، مشخص شد که شار عبوری آب ۵۰/۶ درصد افزایش، دفع نمک ۳ درصد کاهش و مقاومت در برابر اکسیداسیون کلر ۴/۹۱ درصد افزایش داشته است

* عهده دار مکاتبات

shayegan@sharif.edu

حقوق ناشر محفوظ است.

۱. مقدمه

مونومرهای پلی آمید شد. همچنین با در نظر گرفتن سه پارامتر: میزان فلاکس غشا، میزان دفع نمک غشا و میزان مقاومت در برابر کلر و استفاده از روش بهینه‌سازی چند متغیره سعی در انتخاب ترکیبی از مواد سازنده MPD، TMC و GO-OCI شد، که بتواند موثرترین ساختار را ایجاد نماید. برای این منظور از روش‌های طراحی مخلوط حدی (Constrain Multivariable) و بهینه‌سازی چند متغیره (Mixture Design Optimization) استفاده گردید.

۲. مواد و روشها

مواد: در این تحقیق از غشای ترافیلتراژ جنس پلی سولفون با وزن مولکولی ۲۰۰۰۰ دالتون (شرکت Sepro Membranes)، پودر GO (شرکت Innovations United Nanotech)، نرمال هگزان صنعتی (محصولات پتروشیمی ICMC) و سایر مواد شامل: تیونیل کلرید، تریموسویل کلرید (TMC)، متیل فنیل دی آمین (MPD)، نمک طعام، هیپوکلرید سدیم (شرکت Merck KGaA) استفاده گردید.

آماده سازی غشا: برای عامل‌دار کردن گرافن مطابق روش اعلام شده در منبع [۲۱] عمل گردید. غشای اسمز معکوس طبق روند منبع [۲۲] ساخته شد. برای بررسی راندمان غشا طبق مرجع [۲۲] محاسبه گردید. برای آزمایش مقاومت به کلر، هر ورق غشا در محلول NaOCl با غلظت ۸۰۰ ppm به مدت ۴۸ ساعت غوطه ور شد، عملکرد آن با روش ذکر شده برای راندمان بررسی شد. جدول ۱ حدود مقادیر انتخاب شده برای سه ماده را نشان می‌دهد [۲۳-۲۶]. با انجام طراحی آزمایش، حالت‌های مختلف انجام آزمایش به شرح جدول ۲ به دست می‌آید. کمیت‌هایی که با ساخت غشا اندازه‌گیری می‌شوند شامل فلاکس، میزان دفع نمک و از درست رفتن میزان دفع نمک در تماس با کلر هستند. برای تعیین اثر غلظت اجزا طبق مرجع [۲۷] رگرسیون صورت پذیرفت. لازم به ذکر است برای بررسی تکرار پذیری، نتایج نقطه میانی (۰.۱۶۷، ۰.۰۳۳۳، ۰.۰۹۵) دو بار اندازه گیری شد.

بر اساس گزارش‌های جهانی تنش آبی یکی از مشکلات مهم جهان معاصر است [۱] یکی از راه‌حل‌های مهم برای این مشکل استفاده از روش‌های نمک‌زدایی است. بین سال‌های ۱۹۴۵ تا ۲۰۱۵ میزان نمک‌زدایی از تقریباً صفر مترمکعب در شبانه‌روز در سال ۱۹۴۵ به حدود ۸۰ میلیون مترمکعب در شبانه‌روز در سال ۲۰۱۵ رسیده، همچنین پیش‌بینی شده که حجم نمک‌زدایی در سال ۲۰۴۵ به بیش از ۳۵۰ میلیون مترمکعب در شبانه‌روز برسد [۲، ۳]. از بین روش‌های نمک‌زدایی، روش‌های غشایی (اسمز معکوس) دارای مزایای بیشتری از نظر اقتصادی و انرژی نسبت به روش‌های حرارتی می‌باشند [۴-۷]. لایه پلی آمید جزء اصلی در اغلب غشاهای اسمز معکوس می‌باشد. این لایه با وجود ضخامت بسیار پایین نقش اصلی در جداسازی نمک از آب دارد [۶، ۸]. به گونه‌ای که با اندکی افت در خواص این لایه، میزان دفع نمک دستخوش تغییر می‌شود. این لایه دارای ضعف‌هایی نظیر شار کم [۹] و اکسید شدن سریع در مقابل مواد اکسید کننده می‌باشد [۱۰]. یکی از راه‌حل‌های ارائه شده در تحقیقات پیشین، اضافه کردن نانو ذرات سلیس [۱۱]، آلومنیوم [۱۲]، نانولوله‌های کربنی [۱۳] و گرافن [۱۴] در لایه پلی آمیدی برای ایجاد یک ساختار کامپوزیتی است که بتواند شار غشا را افزایش دهد و همچنین در مقابل اکسیدکننده‌ها مقاومت نماید و خاصیت دفع یون‌ها را نیز بهبود بخشد [۱۵].

اکسید گرافن (GO) به دلیل وجود بسیاری از گروه‌های عاملی حاوی اکسیژن (مانند هیدروکسیل، کربوکسیل، کربنیل و اپوکسی) با بار منفی و پایداری شیمیایی می‌تواند به‌عنوان یک افزودنی برای غشای پلی آمیدی استفاده شود [۱۶، ۱۷]. تاکنون در همه مطالعات، GO به ماتریس پلیمری به‌عنوان افزودنی اضافه شده است. در این حالت اکسیدگرافن از طریق پیوندهای هیدروژنی با گروه‌های عاملی آمیدی یک ساختار گرافنی-پلی آمیدی ایجاد می‌کند که ساختار فیزیکی شیمیایی ضعیفی دارد [۱۸-۲۰]. در این مطالعه با عامل‌دار کردن GO و استفاده از آن در داخل کامپوزیت فیلم نازک پلی آمیدی، سعی در ایجاد پیوند کووالانسی بین گرافن و

جدول (۱) حدود اجزا برای اعمال در روش طراحی اجزا

اجزا	حد پایین	نرمال سازی حد پایین	حد بالا	نرمال سازی حد بالا
MPD(%w/w)	۲.۷۵	۰.۹۱۶	۲.۹۴۹	۰.۹۸۳
TMC(w/v %)	۰.۰۵	۰.۰۱۶	۰.۱۵	۰.۰۵
GO-COCI(w/v %)	۰.۰۰۱	۰.۰۰۰۳	۰.۱	۰.۰۳

تولید و ارزیابی کارائی غشای اسمز معکوس با گرافن عامل دار شده

جدول (۲) نتایج آزمایش های شار، دفع و ازدست دادن دفع نمک به خاطر کلر

ردیف	MPD	TMC	GO-COCI	شار (l/m2.hr)	دفع نمک (%)	مقاومت شیمیایی (%)
۱	۰.۹۳۳۳	۰.۰۵	۰.۰۱۶۷	۱.۲۱۹۱۴	۹.۲	۵
۲	۰.۹۴۹۷	۰.۰۵	۰.۰۰۰۳	۱.۰۱۸۲۵	۹.۴	۱۰
۳	۰.۹۶۶۷	۰.۰۲۵	۰.۰۰۸۳	۱.۳۲۰۸۳	۸.۴	۶
۴	۰.۹۸۳	۰.۰۱۶۷	۰.۰۰۰۳	۱.۴۸۴۴۹	۸.۸	۶
۵	۰.۹۱۶۷	۰.۰۵	۰.۰۳۳۳	۱.۴۱۷۶۹	۷.۸	۰
۶	۰.۹۵	۰.۰۱۶۷	۰.۰۳۳۳	۱.۹۲	۷.۲	۴
۷	۰.۹۵	۰.۰۲۵	۰.۰۲۵	۱.۴۷۸۰۴	۸.۳	۵
۸	۰.۹۳۳۳	۰.۰۴۱۷	۰.۰۲۵	۱.۳۲۹۰۸	۸.۷	۵
۹	۰.۹۵	۰.۰۳۳۳	۰.۰۱۶۷	۱.۱۰۶۶۱	۸.۵	۷.۳
۱۰	۰.۹۶۶۴	۰.۰۳۳۳	۰.۰۰۰۳	۱.۰۷۳۱۷	۹.۲	۸
۱۱	۰.۹۶۶۶	۰.۰۱۶۷	۰.۰۱۶۷	۱.۳۹۱۳۸	۸.۶	۵.۳
۱۲	۰.۹۳۳۴	۰.۰۳۳۳	۰.۰۳۳۳	۱.۷۵۰۱۵	۷.۲	۳.۶
۱۳	۰.۹۵	۰.۰۴۱۷	۰.۰۰۸۳	۱.۲۶۶۵۶	۹.۵	۶
۱۴	۰.۹۵	۰.۰۳۳۳	۰.۰۱۶۷	۱.۱۳۱۹	۸.۳۳	۷.۱۲

۳. ارایه و تحلیل نتایج

۳.۱ رگرسیون و تحلیل نتایج آزمایش های

عملکردی

نتایج رگرسیون در فرمول های ۱ تا ۳ منعکس شده است. در فرمول های یادشده γ_1' ، γ_2' و γ_3' به ترتیب بیانگر میزان

فلاکس، دفع نمک و تغییر دفع نمک با اکسید شدن به وسیله کلر می باشند. جدول ۳ نشان دهنده آنالیز واریانس روابط به دست آمده است. نتایج خلاصه شده در این جدول نشان می دهد، ضریب همبستگی هر سه رابطه بیشتر از ۹۱ درصد است، لذا برازش خوبی بین داده ها و معادله وجود دارد.

جدول (۳) آنالیز واریانس برای برازش های داده شده

پارامتر	DF	Seq SS	Adj SS	Adj MS	F	P	R-Sq %
مقاومت شیمیایی	۶	۶۱.۸۲۰۷	۶۱.۸۲۰۷	۱۰.۳۰۳۴۵	۱۱.۱۱	۰.۰۰۵	۹۱.۷۵
دفع نمک	۶	۶۲۶.۲۷۱	۶۲۶.۲۷۱۳	۱۰۴.۳۷۸۶	۱۰.۷۹	۰.۰۰۵	۹۱.۵۲
شار	۶	۱۰۶۰۰۷۱	۱۰۶۰۰۷۱	۱۷۶۶۷۸	۱۰.۹۵	۰.۰۰۵	۹۱.۶۳

ثوابت معادلات نشان می دهند که برای پارامتر شار تمام روابط دوتایی ($X_i X_j$) دارای اثر مخالف هستند و باعث کاهش شار می شوند در حالی که برای دفع نمک زوج (TMC,MPD) و (MPD,GO-OCI) دارای اثر منفی هستند و زوج (TMC, GO-OCI) دارای اثر مثبت است. همچنین برای پارامتر از

دست دادن دفع نمک به خاطر کلر نیز تنها زوج (MPD,TMC) دارای اثر مثبت است. نتیجه اندازه گیری نقطه میانی نشان داد که میزان خطاهای تجربی یا تصادفی کمتر از ۳ درصد می باشد.

$$\gamma_1' = 2.2733X_1 + 606.5661X_2 + 1440.1127X_3 - 661.2930X_1X_2 - 1497.61769X_1X_3 - 26202.7933X_2X_3 + 26667.0924X_1X_2X_3 \quad (1)$$

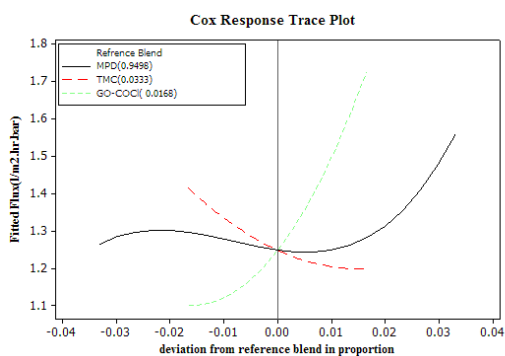
$$\gamma_2' = 8.76861X_1 + 528.9463X_2 - 1937.3381X_3 - 531.5016X_1X_2 + 1965.9588X_1X_3 - 1122.9910X_2X_3 + 2672.4130X_1X_2X_3 \quad (2)$$

$$y_3' = 2.9906X_1 - 1377.8263X_2 + 2491.5025X_3 + 1585.3187X_1X_2 - 2603.6370X_1X_3 - 107886.4838X_2X_3 + 111194.2726X_1X_2X_3 \quad (3)$$

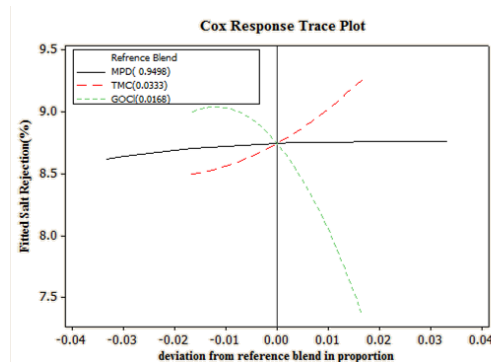
می دهد که گرافن اکسید عامل دار شده اثری معکوس بر کاهش دفع نمک، ناشی از تماس با کلر، دارد. باین حال MPD و TMC دارای اثر سهمی مانند هستند که وجود نقطه ماکزیمم را نشان می دهند. وجود این نقطه اکسترموم نشان می دهد که مخلوط این سه ترکیب دارای یک مقدار بهینه است که برای بدست آوردن آن از بهینه سازی استفاده می شود.

۳.۲ اثر تغییر ترکیب بر مشخصات غشا

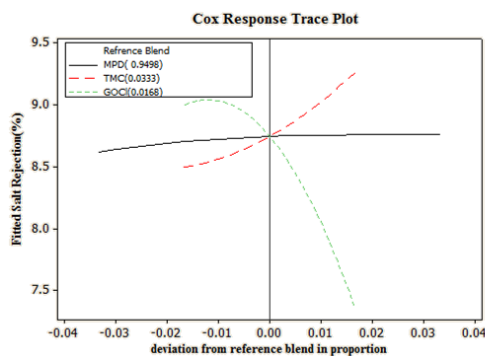
اثر ترکیب مواد سازنده بر روی پاسخها در شکل (۱) نشان داده شده است. مخلوط مرجع (۰.۹۴۹۸، ۰.۰۳۳۳ و ۰.۰۱۶۸) در نظر گرفته شده است، که مرکز میانی رأسها است. با توجه به افزایش مقدار GO-COCI (شکل ۲ a و b)، شار و دفع نمک به طور معنی داری افزایش و کاهش می یابد، درحالی که افزایش مقدار TMC اثرات مشابهی بر عملکرد دفع نمک توسط غشا دارد ولی تغییرات آن کمتر از اثر GOCI است. شکل ۲c نشان



a



b



c

شکل (۱) نمودار COX برای تعیین اثر هر جز (نمودار a: تعیین اثر غلظت اجزا بر شار، نمودار b: تعیین اثر غلظت اجزا بر دفع و نمودار c: تعیین اثر غلظت اجزا بر میزان از دست رفتن دفع بر اثر کلراسیون)

$$s. t. 0.00033 \leq X_3 \leq 0.033$$

برای بهینه سازی از ترکیب خطی توابع مزبور

در معادله ۴ به شرح ذیل استفاده می شود:

$$y(x) = -w_1y_1' - w_2y_2' + w_3y_3' \quad (5)$$

$$w_1 + w_2 + w_3 = 1$$

$$0.01 < w_i < 0.99$$

۳.۲ انتخاب ترکیب بهینه

قیود بهینه سازی چندهدفه به شرح زیر است:

$$\text{Min } F(X) = (-y_1', -y_2', y_3') \quad (4)$$

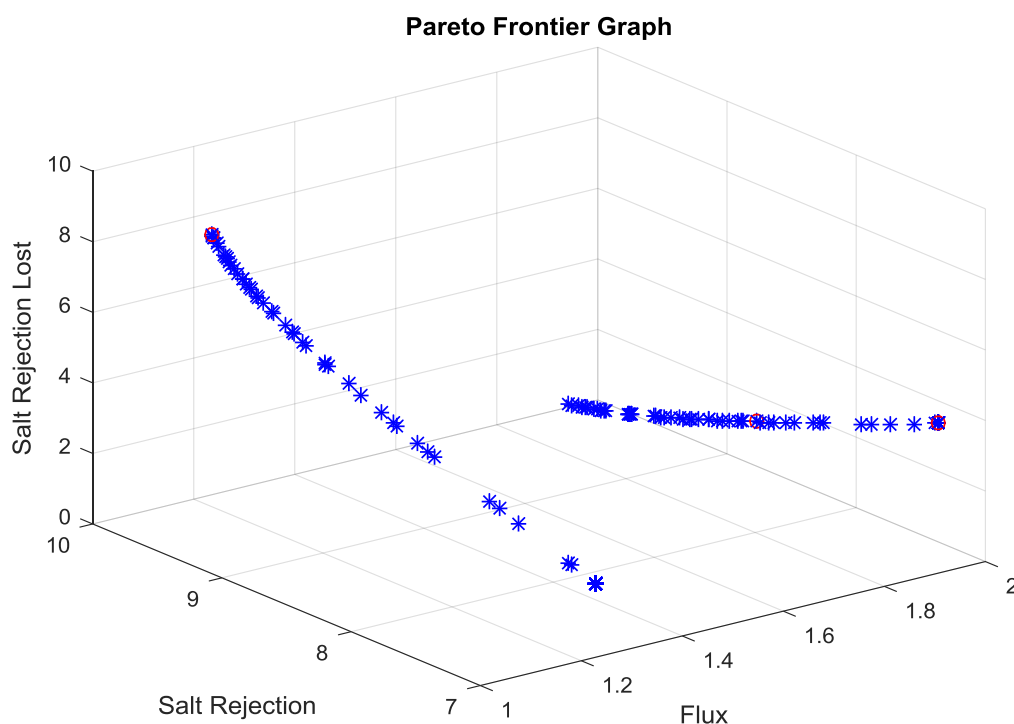
$$s. t. 0.91 \leq X_1 \leq 0.98$$

$$s. t. 0.016 \leq X_2 \leq 0.05$$

تولید و ارزیابی کارایی غشای اسمز معکوس با گرافن عامل دار شده

نشان می‌دهد. ویژگی اصلی غشاهای TFC، دفع نمک است. در این مطالعه، دفع نمک و شار باید به ترتیب حداقل ۹۵٪ و ۱/۱ لیتر بر مترمربع برآورد شود. با توجه به شرایط ذکر شده، نقاط بهینه (۰.۹۳۸۷ (MPD، ۰.۰۵ TMC)) و (۰.۱۱۳ (GO)) هستند.

که در این رابطه w_i نشان‌دهنده وزن مربوط به هر تابع است. در این مطالعه، حداقل وزن ۰.۰۱ در نظر گرفته می‌شود که با اعمال گام ۰.۰۱ مقادیر دیگر محاسبه می‌شود، با این شرایط تعداد ۷۹۶،۴ بدست می‌آید، مجموعه‌ی این ترکیبها مرز پرتو (Pareto) را نشان می‌دهد [۲۷]. شکل ۳ نمودار پرتو را بر اساس شار، دفع نمک و از دست رفتن دفع نمک به خاطر کلر



شکل (۲) نمودار پرتو (Pareto) نقاط بهینه

۹۹ درصد به ۸۹.۱ درصد کاهش یافته و شار از ۰.۸ تا ۱.۵ L m².bar / افزایش می‌یابد. تغییر خواص غشاء پس از کلرینگ ممکن است به علت واکنش عوامل پلی آمیدی و جایگزینی با کلر باشد [۲۹]. با این حال، دفع نمک و شار غشاء اصلاح شده تقریباً به همان اندازه قبل از کلرینگ حفظ می‌شود. افزایش مقاومت کلر در غشاء اصلاح شده ممکن است به خاطر اتصال پیوند بین GO و PA باشد، زیرا پیوند گرافن با گروه عاملی آمیدی می‌تواند از جایگزینی کلر با اتم هیدروژن در گروه عاملی جلوگیری کند. علاوه بر این، ورق GO می‌تواند از PA در برابر حمله کلر محافظت کند.

۳.۴ بررسی عملکرد غشا با ترکیب بهینه

شار غشاء ساخته شده با ترکیب بهینه تقریباً ۵۰٪ بالاتر از غشای خام است، در حالی که دفع نمک آنها تقریباً یکسان می‌باشد. ثابت ماندن پارامتر دفع نمک نشان می‌دهد که افزایش شار آب از ایجاد نقص در غشا به خاطر اضافه شدن GO-OCI نیست بلکه این نتیجه ناشی از افزایش آبدوستی غشاء است [۱۲]. علاوه بر این، کاهش ضخامت لایه فعال باعث افزایش نفوذپذیری آب می‌شود [۲۸]. با در معرض قرار گرفتن در برابر کلر، تغییر دفع نمک برای غشاء اصلاح شده از غشاء خام کمتر است. بعد از تماس با کلر، دفع نمک غشاء خام از

جدول ۴) مقایسه غشا بهینه و غشا خام

غشا بهینه	غشا خام	کمیت
۱.۲ L/m ² .bar.hr	۰.۸۳ L/m ² .bar.hr	شار
۹۶%	۹۹%	دفع نمک
۴.۹%	۹.۹%	کاهش دفع نمک پس از کلرینگ

۴. نتیجه گیری

در این مطالعه یک روش جدید برای ساخت یک غشای RO پلی آمید با استفاده از مخلوط TMC، MPD و GO-OCI پیشنهاد شده است. برای پیدا کردن غلظت مطلوب اجزاء از روش CMD و بهینه سازی چندهدفه استفاده شد. نتایج نشان داد با افزایش غلظت GO-OCI شار غشا افزایش و دفع نمک کاهش می یابد. به طور مشابه، افزودن TMC موجب افزایش شار می شود و دفع نمک را کاهش می دهد؛ با این حال، تغییرات

۵. مراجع

در مقایسه با اضافه کردن GO-OCI کمتر است. افزودن MPD تأثیر معنی داری بر دفع نمک ندارد. غشا با غلظت بهینه ساخته شد و مورد بررسی قرار گرفت. نتایج حاصل نشان داد در مقایسه با غشاء اولیه، شار آب ۵۰.۶ درصد افزایش یافته است. با این حال، دفع نمک ۳.۱۶٪ کاهش و مقاومت نسبت به کلر ۴.۹۱٪ افزایش یافت. بهبودهای حاصل شده سبب بهبود نمک زدایی نسبت به غشای عادی گردید.

- [8] T. A. Otitoju, R. A. Saari, and A. L. Ahmad, "Progress in the modification of reverse osmosis (RO) membranes for enhanced performance," *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 2018/07/18/ 2018.
- [9] N. Misdan, A. Ismail, and N. Hilal, "Recent advances in the development of (bio) fouling resistant thin film composite membranes for desalination," *Desalination*, 2015.
- [10] M. Liu, Q. Chen, L. Wang, S. Yu, and C. Gao, "Improving fouling resistance and chlorine stability of aromatic polyamide thin-film composite RO membrane by surface grafting of polyvinyl alcohol (PVA)," *Desalination*, vol. 367, pp. 11-20, 2015.
- [11] N. Niksefat, M. Jahanshahi, and A. Rahimpour, "The effect of SiO₂ nanoparticles on morphology and performance of thin film composite membranes for forward osmosis application," *Desalination*, vol. 343, pp. 140-146, 2014/06/16/ 2014.
- [12] T. A. Saleh and V. K. Gupta, "Synthesis and characterization of alumina nano-particles polyamide membrane with enhanced flux rejection performance," *Separation and Purification Technology*, vol. 89, pp. 245-251, 2012/03/22/ 2012.
- [13] H. Wu, B. Tang, and P. J. T. J. o. P. C. C. Wu, "MWNTs/polyester thin film nanocomposite membrane: an approach to overcome the trade-off effect between permeability and selectivity," vol. 114, no. 39, pp. 16395-16400, 2010.
- [14] S. Xia, L. Yao, Y. Zhao, N. Li, and Y. Zheng, "Preparation of graphene oxide modified polyamide thin film composite membranes with improved hydrophilicity for natural organic matter removal," *Chemical Engineering Journal*, vol. 280, pp. 720-727, 2015.
- [15] H. Mahdavi and A. Rahimi, "Zwitterion functionalized graphene oxide/polyamide thin film nanocomposite membrane: Towards improved anti-fouling performance for reverse osmosis,"

- [1] J. W. Day and J. M. Rybczyk, "Chapter 36 - Global Change Impacts on the Future of Coastal Systems: Perverse Interactions Among Climate Change, Ecosystem Degradation, Energy Scarcity, and Population," in *Coasts and Estuaries*, E. Wolanski, J. W. Day, M. Elliott, and R. Ramachandran, Eds.: Elsevier, 2019, pp. 621-639.
- [2] K. P. Lee, T. C. Arnot, and D. Mattia, "A review of reverse osmosis membrane materials for desalination—Development to date and future potential," *Journal of Membrane Science*, vol. 370, no. 1, pp. 1-22, 2011.
- [3] B. Mayor, "Growth patterns in mature desalination technologies and analogies with the energy field," *Desalination*, vol. 457, pp. 75-84, 2019/05/01/ 2019.
- [4] R. Bi, Q. Zhang, R. Zhang, Y. Su, and Z. Jiang, "Thin film nanocomposite membranes incorporated with graphene quantum dots for high flux and antifouling property," *Journal of Membrane Science*, vol. 553, pp. 17-24, 2018/05/01/ 2018.
- [5] T. Zou, G. Kang, M. Zhou, M. Li, and Y. Cao, "Submerged vacuum membrane distillation crystallization (S-VMDC) with turbulent intensification for the concentration of NaCl solution," *Separation and Purification Technology*, vol. 211, pp. 151-161, 2019/03/18/ 2019.
- [6] W. J. Lau, S. Gray, T. Matsuura, D. Emadzadeh, J. Paul Chen, and A. F. Ismail, "A review on polyamide thin film nanocomposite (TFN) membranes: History, applications, challenges and approaches," *Water Research*, vol. 80, pp. 306-324, 9/1/ 2015.
- [7] J. Zhu *et al.*, "High-flux thin film composite membranes for nanofiltration mediated by a rapid co-deposition of polydopamine/piperazine," *Journal of Membrane Science*, vol. 554, pp. 97-108, 2018/05/15/ 2018.

- [26] C. Yu *et al.*, "Polyamide thin-film composite membrane fabricated through interfacial polymerization coupled with surface amidation for improved reverse osmosis performance," *Journal of Membrane Science*, vol. 566, pp. 87-95, 2018/11/15/ 2018.
- [27] A. Khaskhoussi, L. Calabrese, H. Bouhamed, A. Kamoun, E. Proverbio, and J. Bouaziz, "Mixture design approach to optimize the performance of TiO₂ modified zirconia/alumina sintered ceramics," *Materials & Design*, vol. 137, pp. 1-8, 2018/01/05/ 2018.
- [28] J. Yin, G. Zhu, and B. Deng, "Graphene oxide (GO) enhanced polyamide (PA) thin-film nanocomposite (TFN) membrane for water purification," *Desalination*, vol. 379, pp. 93-101, 2016.
- [29] R. Ling, L. Yu, T. P. T. Pham, J. Shao, J. P. Chen, and M. J. J. o. M. S. Reinhard, "The tolerance of a thin-film composite polyamide reverse osmosis membrane to hydrogen peroxide exposure," vol. 524, pp. 529-536, 2017.
- [16] K. A. Mahmoud, B. Mansoor, A. Mansour, and M. Khraisheh, "Functional graphene nanosheets: The next generation membranes for water desalination," *Desalination*, vol. 356, pp. 208-225, 1/15/ 2015.
- [17] A. Karkooti, A. Z. Yazdi, P. Chen, M. McGregor, N. Nazemifard, and M. Sadzadeh, "Development of advanced nanocomposite membranes using graphene nanoribbons and nanosheets for water treatment," *Journal of Membrane Science*, vol. 560, pp. 97-107, 2018/08/15/ 2018.
- [18] S. G. Kim, D. H. Hyeon, J. H. Chun, B.-H. Chun, and S. H. Kim, "Novel thin nanocomposite RO membranes for chlorine resistance," *Desalination and Water Treatment*, vol. 51, no. 31-33, pp. 6338-6345, 2013.
- [19] F. o. Perreault, M. E. Tousley, and M. Elimelech, "Thin-film composite polyamide membranes functionalized with biocidal graphene oxide nanosheets," *Environmental Science & Technology Letters*, vol. 1, no. 1, pp. 71-76, 2013.
- [20] M. Safarpour, A. Khataee, and V. Vatanpour, "Thin film nanocomposite reverse osmosis membrane modified by reduced graphene oxide/TiO₂ with improved desalination performance," *Journal of Membrane Science*, vol. 489, pp. 43-54, 2015.
- [21] K. Garg, R. Shanmugam, and P. C. Ramamurthy, "Synthesis, characterisation and optical studies of new tetraethyl- ruyrin-graphene oxide covalent adducts," *Optical Materials*, vol. 76, pp. 42-47, 2018/02/01/ 2018.
- [22] J.-A.-D. Sharabati *et al.*, "Interfacially polymerized thin-film composite membranes: Impact of support layer pore size on active layer polymerization and seawater desalination performance," *Separation and Purification Technology*, vol. 212, pp. 438-448, 2019/04/01/ 2019.
- [23] J. A. Cornell, *Experiments with Mixtures: Designs, Models, and the Analysis of Mixture Data*. Wiley, 2011.
- [24] A. Khaskhoussi *et al.*, "Mixture design approach to optimize the performance of TiO₂ modified zirconia/alumina sintered ceramics," vol. 137, pp. 1-8, 2018.
- [25] B.-H. Jeong *et al.*, "Interfacial polymerization of thin film nanocomposites: A new concept for reverse osmosis membranes," *Journal of Membrane Science*, vol. 294, no. 1, pp. 1-7, 2007/05/15/ 2007.

Synthesis and performance evaluation of reverse osmosis membrane incorporated with functional graphene

Sajjad Jalali¹, Abdollah Rashidi¹, Jalal Shayegan*², Maryam Mirabi¹, Siavash Madaeni³

1. Civil and Environmental Engineering Department, Shahid Beheshti University, Tehran, Iran
2. Chemical and Petroleum Engineering Department, Sharif University of Technology, Tehran, Iran
3. Chemical Engineering Department, Razi University, Kermanshah, Iran

ABSTRACT

The most common method of desalination is membrane method. Despite the large application, this method has weaknesses such as limited flux and low resistance to chlorine. In this research, a solution based on the use of functional graphene oxide with thionyl chloride (GO-OCl) in a polyamide membrane structure is suggested. To implement this idea, a new method was used to optimize the production of GO-OCl membrane using Constrain Mixture Design (CMD) (a design of experiment method). For execution, according to the CMD method, thirteen combinations of three materials: trimesoyl chloride, m-phenylenediamine and GO-COCl were selected. Then the membrane properties including salt rejection, resistance to chlorine and flux were measured. With using multi-objective optimization method, the optimal concentration was obtained, and the corresponding membrane was constructed. Comparison of the optimal membrane performance with pristine membrane showed that the flux of water was increased by 50.6%, salt rejection decreased by 3%, and chlorine resistance increased by 4.91%

ARTICLE INFO

Article history:

Received: May 1, 2018

Received in revised form: September 1, 2019

Accepted: September 21, 2019

Key words:

Polyamide Membrane

Chlorine Resistance

Flux Enhancement

All right reserved.

* Corresponding author
shayegan@sharif.edu