

ISSN (Print): [2008-9228](#)- ISSN (Online): [2423-7264](#)

## Research Paper

# Triple-layer nanocomposite membrane of polyurethane/polyethylene glycol/nano-alumina: To investigate the effect of weight and molecular concentration on gas permeability and selectivity using the Taguchi method

### Keywords:

selectivity, permeability , polyurethane, polyethylene glycol, nano alumina, Triple\_layer nanocomposite member

### Abstract

#### Introduction and Objective:

In this study, the separation of methane, carbon dioxide, oxygen, and nitrogen gases using triple nanocomposite membranes of polyurethane / polyethylene glycol / nano-alumina has been investigated. So, experimental design was carried out to examine the effects of polyethylene glycol molecular weight, polyethylene glycol weight percentage, and nano-alumina weight percentage on the permeability and selectivity of the studied gases.

#### Materials and Methods:

The membranes were fabricated using the solution casting method. Gas permeability of the fabricated membranes was measured using the constant pressure method, and the results were analyzed using the Taguchi method for experimental design. Finally, to study the membrane structure, FTIR, XRD, and SEM tests were performed on several samples, including pure polyurethane, polyurethane/polyethylene glycol blend, and polyurethane/polyethylene glycol/nano-alumina nanocomposite membranes.

#### Findings:

The effect of factors and their levels on gas permeability and selectivity of gas pairs CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>, and O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> were identified and analyzed using the Taguchi method. Among the gas selectivities, the highest value was obtained for CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>.

#### Discussion and Conclusion:

This result was attributed to the highest permeability of carbon dioxide and the lowest permeability of nitrogen. It was also found that the membrane containing 20 wt% of PEG 6000 has higher selectivity for CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> compared to other membranes, which is due to the increased presence of polar groups in the membrane structure.

---

## Extended Abstract

### Introduction

Separation processes are critically important in the oil, gas, and petrochemical industries, especially for natural gas sweetening, which involves removing CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>S from CH<sub>4</sub>. The presence of CO<sub>2</sub> leads to pipeline corrosion and reduces the quality of the gas, making its removal essential. Membrane technology has gained significant attention as a cost-effective and efficient alternative to traditional techniques such as distillation. In this method, the membrane selectively permits certain gases to pass through, thereby achieving separation.

Numerous studies have aimed to enhance gas permeability and selectivity—particularly for CO<sub>2</sub>—through the development of polymeric and nanocomposite membranes, often incorporating nanoparticles like silica, alumina, TiO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub>, and PEG-POSS. Results indicate that such modifications improve membrane structure and performance in gas separation.

Overall, polymeric and nanocomposite membranes are attractive industrial options due to their low energy consumption, reduced operational costs, and high efficiency. Current research focuses on multi-component membrane design and nanoparticle incorporation to further optimize this technology.

### Materials and Methods

In this study, polymeric membranes were fabricated using solution blending and solvent evaporation techniques. Initially, synthesized polyurethane was dissolved in DMF at a 10 wt% concentration. After filtration, the solution was cast into molds and sequentially dried in a conventional oven and then under vacuum to ensure complete solvent removal. For alloy membrane fabrication, separate solutions of polyurethane and polyethylene glycol (PEG) were prepared, mixed at room temperature, and dried using the same procedure.

To prepare nanocomposite membranes, alumina nanoparticles were first dispersed in a suitable solvent and homogenized using ultrasonic mixing. Polyurethane and PEG were then added to the solution. After thorough mixing and filtration, the drying process was repeated as before.

The fabrication process for the nanocomposite membranes was designed using the Taguchi method in Minitab software. Three key parameters were selected—PEG molecular weight, PEG concentration, and alumina nanoparticle content—each evaluated at three levels. Nine experimental runs were conducted using an L<sub>9</sub> orthogonal array. The aim was to examine how these variables influenced gas permeability and selectivity. Membrane characterization involved FTIR spectroscopy to assess chemical bonding, XRD analysis to evaluate crystallinity, and SEM imaging to study nanoparticle distribution and membrane morphology.

Subsequently, the membranes' gas separation performance was evaluated using nitrogen, oxygen, methane, and carbon dioxide. The time-lag method under constant pressure was employed to determine permeability coefficients. In this method, gas permeation through the membrane causes water column displacement in a U-tube, which is measured over time to calculate diffusion coefficients, permeability, and selectivity. Testing began with non-condensable gases and proceeded to condensable ones, under controlled temperature and pressure. The results provided a comprehensive assessment of membrane performance and enabled comparative analysis among different samples.

### Results and Discussion

FTIR spectra (Figure 4) confirmed the presence of characteristic functional groups such as urethane bonds (N-H), carbonyl groups, and ether linkages in both pure and blended polyurethane membranes. The

---

addition of PEG and alumina nanoparticles caused shifts in peak positions and intensities, indicating new chemical interactions and alterations in the membrane's structure. XRD results (Figure 5, Table 2) showed that the incorporation of alumina nanoparticles reduced and broadened the crystalline peaks, suggesting an increase in amorphous regions and a reduction in polymer chain ordering. SEM images (Figures 6 and 7) further confirmed uniform internal structures, homogeneity in alloy membranes, and a nanoscale distribution of alumina without visible aggregation.

Using Taguchi design, the effects of PEG molecular weight, PEG content, and alumina concentration on gas separation were analyzed (Table 3). The membrane containing 20 wt% PEG6000 and 10 wt% alumina exhibited the highest CO<sub>2</sub> permeability (Figure 8, Table 4), attributed to enhanced polarity and increased mobility of longer PEG chains, which facilitate CO<sub>2</sub> diffusion. For CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub>, and N<sub>2</sub> gases, the alumina content emerged as the most significant factor influencing permeability (Figures 9–11, Tables 5–7), while PEG-related parameters had no statistically significant effects.

Regarding gas selectivity, the most notable changes were observed in the CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> and CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> ratios, where alumina nanoparticles played a decisive role (Figures 12 and 13, Tables 8 and 9). O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> selectivity, however, remained largely unaffected due to the similar physical properties and molecular sizes of these gases (Table 10).

In summary, incorporating high molecular weight PEG and optimal levels of alumina nanoparticles significantly enhanced membrane performance, particularly for CO<sub>2</sub> separation. These findings highlight the potential of nanocomposite membrane design for efficient gas separation applications.

## Conclusion

The study revealed that nanocomposite membranes exhibited significantly higher permeability for CO<sub>2</sub> compared to other gases. Incorporating high-molecular-weight PEG into the membrane structure increased

CO<sub>2</sub> permeability due to CO<sub>2</sub>'s specific molecular traits—smaller kinetic diameter, higher polarity, and greater condensability. Nitrogen, being non-polar, showed the lowest permeability, while methane and oxygen demonstrated moderate permeability levels. With increasing PEG content, methane permeability exceeded that of nitrogen. The membrane containing 20 wt% PEG6000 achieved the highest CO<sub>2</sub> permeability and selectivity over N<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>, owing to an increase in polar functional groups and enhanced solubility-diffusion synergy. SEM, FTIR, and XRD analyses confirmed that the membranes were homogeneous, free from nanoparticle agglomeration, and rich in amorphous regions. The addition of PEG and alumina improved blending and created more free volume within the structure. For further enhancement, the study suggests exploring other rubbery polymers and alternative nanoparticles such as silica, titanium dioxide, and carbon nanotubes for the development of advanced ternary nanocomposite membranes.

## Ethical Considerations

### Compliance with ethical guidelines

All subjects fulfill the informed consent.

## Acknowledgments

We gratefully acknowledge the financial support of this work by Marvdasht Islamic Azad University research council

## Authors' contributions

Design and conceptualization, methodology, data analysis and final writing: Mehdi Azizi

## Conflicts of interest

The author declared no conflict of interest.

## مقاله پژوهشی

## غشای سه گانه نانو کامپوزیت پلی یورتان / پلی اتیلن گلایکول / نانوالومینا: بررسی تأثیر وزن و غلظت مولکولی در عبور پذیری و انتخاب پذیری گاز با روش تاگوچی

## چکیده

## مقدمه و هدف:

در این پژوهش، جداسازی گازهای متان، دی‌اکسیدکربن، اکسیژن و نیتروژن با استفاده از غشاهای نانو کامپوزیت سه گانه پلی یورتان / پلی اتیلن گلایکول / نانوالومینا مورد بررسی قرار گرفته است. به همین منظور، طراحی آزمایش‌ها جهت بررسی تأثیر وزن مولکولی پلی اتیلن گلایکول، درصد وزنی پلی اتیلن گلایکول و درصد وزنی نانوالومینا بر میزان تراوش پذیری و انتخاب پذیری گازهای مورد آزمایش انجام گرفت.

## مواد و روش‌ها:

غشاهای با استفاده از روش قالب گیری محلول ساخته شدند. اندازه گیری میزان تراوش پذیری غشاهای ساخته شده با استفاده از روش فشار ثابت انجام گرفت و نتایج با بهره گیری از روش تاگوچی در طراحی آزمایش‌ها تحلیل شد. در نهایت، به منظور بررسی ساختارشناسی غشایی، برای چند نمونه از غشاهای ساخته شده شامل پلی یورتان خالص، آلیاژ پلی یورتان / پلی اتیلن گلایکول و غشاهای نانو کامپوزیت پلی یورتان / پلی اتیلن گلایکول / نانوالومینا، از آزمون‌های FTIR، XRD و SEM استفاده شد.

## یافته‌ها:

نقش فاکتور و سطوح موثر در عبور پذیری گازها و انتخاب پذیری جفت گازهای  $\text{CO}_2 / \text{N}_2$ ،  $\text{CO}_2 / \text{CH}_4$  و  $\text{O}_2 / \text{N}_2$  با استفاده از روش تاگوچی بیان و بررسی گردید. در مورد انتخاب پذیری گازها، حداکثر انتخاب برای انتخاب پذیری  $\text{CO}_2 / \text{N}_2$  است. بحث و نتیجه گیری:

این نتیجه به بیشترین نفوذ پذیری گاز دی‌اکسیدکربن و کمترین نفوذ پذیری گاز نیتروژن نسبت داده شد. همچنین مشخص شد که غشای حاوی ۲۰ درصد وزنی از PEG 6000، انتخاب پذیری بالاتری برای  $\text{CO}_2 / \text{N}_2$  و  $\text{CO}_2 / \text{CH}_4$  نسبت به سایر غشاهای دارد که ناشی از افزایش گروه‌های قطبی در ساختار غشا است.

## واژه‌های کلیدی:

عبور پذیری،

انتخاب پذیری،

پلی یورتان،

پلی اتیلن گلایکول،

نانوالومینا،

غشای نانو کامپوزیت سه گانه

\* نویسنده مسئول: مهدی عزیزی

نشانی: استادیار گروه مهندسی شیمی، واحد مرودشت، دانشگاه آزاد اسلامی، مرودشت، ایران

تلفن: 09173133626

پست الکترونیکی: mehdiazizi@iau.ac.ir

## مقدمه

فرآیندهای جداسازی همواره در صنایع نفت، گاز و پتروشیمی از اهمیت ویژه‌ای برخوردار می‌باشند و روش‌های گوناگونی جهت جداسازی مواد، مورد استفاده قرار می‌گیرد. از گازها به مقدار زیادی در صنایع مختلف استفاده می‌شود و این مورد ضرورت خالصسازی و جداسازی گازها از مخلوط گازی را بیشتر مشخص میکند. یکی از فرایندهای بسیار پراهمیت در صنایع گاز فرایند شیرین سازی گاز می‌باشد که شامل جدا کردن  $\text{CO}_2$  و  $\text{H}_2\text{S}$  از گاز طبیعی ( $\text{CH}_4$ ) می‌باشد. وجود گاز  $\text{CO}_2$  در خط لوله همراه گاز طبیعی باعث خوردگی لوله و اتلاف انرژی انتقال گاز می‌شود. پس جداسازی دی‌اکسید کربن از گاز طبیعی به منظور بالا بردن ارزش حرارتی گاز و همچنین جلوگیری از مشکلات خوردگی این گاز در حضور آب، در انتقال و ذخیره‌سازی، فرایند مهمی می‌باشد. در سال ۲۰۰۷ بهنام قلعی و همکاران خواص جداسازی گاز غشای آلیازی پلی یورتان / پلی وینیل استات<sup>۱</sup> تهیه شده توسط فرآیند تبخیر حلال را مورد بررسی قرار دادند. نتایج نشان داد که تراوش پذیری اکسیژن، نیتروژن و متان توسط افزودن ۲۰ درصد وزنی پلی (وینیل استات) کاهش یافته اما تراوش پذیری دی‌اکسید کربن افزایش یافت که گزینش پذیری  $\text{CO}_2/\text{N}_2$  و  $\text{CO}_2/\text{CH}_4$  برای غشا بر پایه پلی یورتان بهبود یافت (۱). آنجا کار و همکاران به بررسی غشای کامپوزیتی پلی امید بی اتیلن اکسید<sup>۲</sup>/ پلی اتیلن گلایکول پرداختند. ویژگی‌های انتقال گاز برای چهار گاز  $\text{H}_2$ ،  $\text{CO}_2$ ،  $\text{CH}_4$ ،  $\text{N}_2$  بررسی شد. نتایج نشان داد که حضور EO (اتیلن اکسید) باعث افزایش نفوذ  $\text{CO}_2$  و احتمالاً افزایش کسر حجم آزاد می‌شود (۲). عبادی عموقین و همکاران غشای ترکیبی اکریلونیتریل بوتادین استایرن<sup>۳</sup>/ پلی اتیلن گلایکول را با روش اختلاط محلولی برای بررسی عبور پذیری و انتخاب پذیری گازهای دی‌اکسید کربن و نیتروژن آماده کرده و مورد مطالعه قرار دادند. نتایج نشان داد که آلیاز پلیمری نسبت به غشای اکریلونیتریل بوتادین استایرن مقادیر انتخاب پذیری بالاتری را نشان می‌داد. آن‌ها افزایش سرهای قطبی در غشای آلیازی به دلیل اضافه شدن پلی اتیلن گلایکول نسبت به غشای خالص اکریلونیتریل بوتادین استایرن و بالا رفتن عبور پذیری گاز دی‌اکسید کربن را دلیل افزایش انتخاب پذیری این دو گاز بیان کردند (۳).

صادقی و همکاران غشای پلییورتان و غشای نانو کامپوزیت پلییورتان / سیلیکا را با روش سل - ژل برای کار خود به منظور مقایسه ویژگی‌های غشایی آماده کردند. نتایج به دست آمده کاهش در نفوذ تمامی گازها اما بهبود در انتخاب پذیری جفت گازهای  $\text{CO}_2/\text{N}_2$ ،  $\text{CO}_2/\text{CH}_4$  و  $\text{O}_2/\text{N}_2$  را همراه با افزایش در محتویات سیلیکا در غشای نانو کامپوزیتی پلییورتان / سیلیکا را نشان می‌داد (۴). رافیک و همکاران دو غشای  $\text{poly(sulfan)}(\text{PS})$  و  $\text{poly(venilamine)}(\text{PVAm})$  غشای نانو کامپوزیتی  $\text{PANI-(PVAm)/ (PS)}$  که از الصاق نانو اجزای

$\text{polyaniline}$  به غشای مخلوط به دست می‌آید را مورد بررسی قرار دادند. غشای نانو کامپوزیتی  $\text{PANI-(PVAm)/ (PS)}$  نسبت به غشای  $\text{(PVAm)/ (PS)}$  موفقیت بیشتری را در نفوذ  $\text{CO}_2$  و انتخاب پذیری  $\text{CO}_2/\text{N}_2$  از خود نشان می‌داد (۵). رحمان و همکاران (۶) غشای نانو کامپوزیتی با الصاق PEG تجاری عامل دار شده (PEG-POSS) با دو نوع متفاوت از  $\text{poly(ether-block-amid)}$  (به نام‌های Pebax MH 1657 و Pebax 2533 با روش اختلاط محلول برای بررسی نفوذ گازهای  $\text{H}_2$  و  $\text{CO}_2$ ،  $\text{CH}_4$ ،  $\text{N}_2$  از طریق روش اندازه‌گیری time-lag آماده کردند. با افزایش وزنی PEG-POSS به ۳۰٪ وزنی در Pebax MH 1657 نفوذ  $\text{CO}_2$  افزایش دو برابری داشت در حالی که اثر مخصوصی را بر انتخاب پذیری نشان نمی‌داد. بهبود همزمان نفوذ و انتخاب پذیری در الصاق ۳۰٪ وزنی Pebax MH 1657 به Pebax 2533 در c30 اتفاق افتاد. انتقال گاز بعد از اتصال PEG-POSS به‌طور قوی وابسته به ویژگی‌های ترمودینامیکی بود در حالی که زبری سطح نیز می‌تواند همین نقش را ایفا کند.

حسین و همکاران (۷) کوپلیمر پلی (آمید-۱۲- بی - اتیلن اکسید<sup>۴</sup>) (PEBAX1074)/پلیاتیلن گلایکول (PEG1500) را به روش اختلاط محلولی تهیه کردند. برای گازهای هیدروژن، نیتروژن و متان رفتار تراوش پذیری گاز عمدتاً از فشار هیدرو استاتیکی در دامی بالا تأثیر گرفته است اما برای گاز قطبی دی‌اکسید کربن اثر پلاستیک شدن گاز دی‌اکسید کربن القاشده و فشار هیدرو استاتیکی به‌طور همزمان بر تراوش پذیری غالب بوده است. صادقی و همکاران (۸)، غشای آلیازی اکریلونیتریل بوتادی آن استایرن (ABS) و اتیلن وینیل استات (EVA) را به روش ریخته‌گری محلول ساخته و عملکرد غشا توسط دو گاز  $\text{CO}_2$  و  $\text{N}_2$  در فرایند جداسازی گاز بررسی کردند و سپس با افزودن نانوذره  $\text{SiO}_2$  به ساختار غشا، عملکرد آن از لحاظ تراوایی و گزینش پذیری گازهای مذکور، مورد بررسی قرار دادند. آن‌ها دریافتند که نانوذره  $\text{SiO}_2$  سبب کاهش تراوایی گاز نیتروژن شده به دلیل این که نانوذره  $\text{SiO}_2$  به‌مانند یک سد در مقابل حفره‌های غشا ایستاده و سبب کاهش تراوایی نیتروژن شده است.

از زمانی که اولین غشا<sup>۵</sup> برای جداسازی نیتروژن به‌کاربرده شد تاکنون پیشرفت‌های چشم‌گیری در این زمینه به وجود آمده است (۹). با توجه به پیچیده بودن و بالا بودن هزینه‌های واحدهای عملیاتی از قبیل برج تقطیر برای جداسازی مواد، علم به سمت روش‌های جایگزین سوق پیدا کرد. یکی از بهترین، مناسب‌ترین و ارزان‌ترین سامانه‌های جداسازی، استفاده از غشا می‌باشد که می‌تواند جایگزین مناسبی برای عملیات پیچیده و هزینه‌بری مانند تقطیر با کارایی بالاتر باشد. به‌طور مثال در بحث جداسازی آب و اتانول با توجه به تشکیل آروتروپ جداسازی به‌وسیله تقطیر و رسیدن به خلوص بالا کار بسیار دشوار و مستلزم صرف

<sup>4</sup> Poly(amide-12-b-ethylen oxide)

<sup>5</sup> Membrane

<sup>1</sup> Polyvinyl acetate

<sup>2</sup> Polyamide b Ethylene oxide

<sup>3</sup> Acrylonitrile-butadiene-styrene

مدت ۴۸ ساعت در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد در درون آون معمولی و به‌منظور تبخیر کامل حلال ۴ ساعت در آون خلأ قرار داده شد.

### طراحی آزمایشها برای ساخت غشای نانو کامپوزیت

عوامل زیر برای ساخت غشای نانو کامپوزیت در نظر گرفته شد که احتمال تأثیر این عوامل بر تراوش‌پذیری و انتخاب‌پذیری غشا حاصل وجود داشت. با توجه به این عوامل، یک جدول طراحی آزمایش‌ها توسط

هزینه فراوان می‌باشد در صورتی که فرآیند غشایی این کار را در فضایی محدودتر و با هزینه‌ای کمتر انجام می‌دهد. بنابراین استفاده از غشا امری ضروری به نظر می‌رسد و تحقیق در این زمینه تحولات عظیمی در صنعت نفت، گاز و پتروشیمی به وجود خواهد آورد. در روش غشایی، غشاء به‌عنوان مانعی بر سر راه مخلوط گازی قرار می‌گیرد و عملیات جداسازی در اثر تفاوت سرعت عبور گازهای مختلف از غشاء انجام می‌گیرد. روش غشایی به دلیل داشتن خصوصیات منحصربه‌فرد مانند مصرف انرژی پایین، هزینه‌ی عملیاتی کم و تمیز بودن در سال‌های اخیر بسیار مورد توجه قرار گرفته است (۱۰). وجود نانو ذرات آلومینا در آلیاژ پلی یورتان / پلی اتیلن گلایکول برای تهیه غشای نانو کامپوزیت سه‌گانه پلیمری و استفاده از طراحی آزمایشها برای مشخص کردن حالت بهینه تراوش‌پذیری و انتخاب‌پذیری گازی، مشخص‌ترین وجه تمایز با کارهای پیشین است.

### مواد و روشها

#### روش ساخت غشا

در این پژوهش از روش اختلاط محلولی و تبخیر حلال برای ساخت غشاهای خالص، آلیاژی و نانو کامپوزیت استفاده شد. پلییورتان سنتز شده در دمای ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد با غلظت ۱۰٪ وزنی در حلال DMF حل شد. محلول حاصل از صافی عبور کرده و در داخل ظرف تفلونی لبه‌دار<sup>۱</sup> ریخته شد. سپس به مدت ۴۸ ساعت در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد در درون آون معمولی و به‌منظور تبخیر کامل حلال ۴ ساعت در آون خلأ قرار داده شد.

به‌منظور تهیه غشای آلیاژی پلییورتان / پلیاتیلن گلایکول، ابتدا محلولهای جداگانه پلی یورتان و پلی‌اتیلن‌گلایکول در غلظتهای ۱۰٪ وزنی در حلال DMF تهیه شدند. سپس مقادیر مشخصی از محلولهای فوق جهت تهیه غشا با درصد وزنی مشخص در دمای محیط با یکدیگر مخلوط گردید و به مدت ۹۰ دقیقه تحت هم‌زن مداوم قرار گرفت. محلول حاصل پس از عبور از صافی در ظرف تفلونی لبه‌دار ریخته شد و به مدت ۴۸ ساعت در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد در درون آون معمولی و به‌منظور تبخیر کامل حلال ۴ ساعت در آون خلأ قرار داده شد.

به‌منظور تهیه غشای نانو کامپوزیت ابتدا نانو آلومینا با درصد وزنی مشخص را در مقدار حلال موردنیاز برای حل شدن پلییورتان و نانو آلومینا ریخته و پس از حل شدن نانو آلومینا در این مقدار حلال، از دستگاه همزن فراصوت<sup>۲</sup> برای یکنواخت شدن پخش ذرات نانو آلومینا استفاده می‌شود. سپس پلییورتان با درصد وزنی مشخص را به محلول بالا اضافه کرده و پس از حل شدن پلییورتان در آن، محلول حاصل با پلیاتیلن گلایکول حل شده در حلال موردنیاز، در دمای محیط به هم اضافه شده و تحت هم‌زن مداوم به مدت ۵ ساعت قرار می‌گیرد. بعد از استفاده مجدد از همزن فراصوت برای محلول نانو کامپوزیت سه‌گانه و پس از عبور از صافی، محلول در ظرف تفلونی لبه‌دار ریخته شده و به

<sup>2</sup> Ultrasonic homogenizer

<sup>1</sup> Teflon Petri Dish

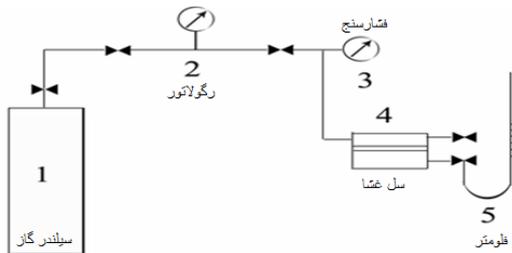
## غشای سه گانه نانو کامپوزیت پلی یورتان/پلی گلایکول/نانوآلومینا: بررسی تاثیر وزن و غلظت مولکولی در عبور پذیری و انتخاب پذیری گاز با روش تاگوچی

نرم افزار Minitab و به روش تاگوچی<sup>۱</sup> طراحی شد و بر این اساس یک جدول ۹ آزمایشی (L9) با شرایط و مقادیر موجود در

جدول به دست آمد. هدف از انجام این آزمایشها تعیین میزان و نحوه اثر عوامل مذکور بر هر یک از پاسخهای تراوش پذیری و انتخاب پذیری گازها است.

**جدول ۱. شماره آزمایشها به روش تاگوچی**

شماره آزمایش	عوامل		
	وزن مولکولی پلی اتیلن گلایکول (A)(g/mol)	درصد وزنی پلی اتیلن گلایکول (B)(%wt)	درصد وزنی نانو آلومینا (C)(%wt)
۱	۲۰۰۰	۱۰٪	۵٪
۲	۲۰۰۰	۱۵٪	۱۰٪
۳	۲۰۰۰	۲۰٪	۱۵٪
۴	۴۰۰۰	۱۰٪	۱۰٪
۵	۴۰۰۰	۱۵٪	۱۵٪
۶	۴۰۰۰	۲۰٪	۵٪
۷	۶۰۰۰	۱۰٪	۱۵٪
۸	۶۰۰۰	۱۵٪	۵٪
۹	۶۰۰۰	۲۰٪	۱۰٪



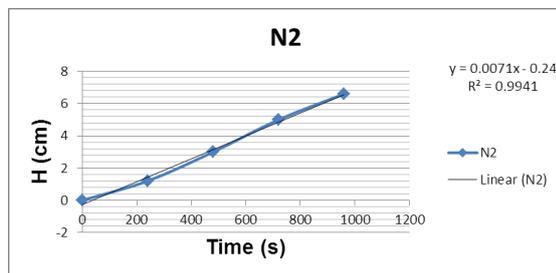
به منظور بررسی ساختار غشاهای تهیه شده از روش طیفسنجی انتقال فوریه مادون قرمز استفاده گردید به منظور بررسی بلورینگی و تغییرات ساختاری احتمالی در بستر پلیمر از دستگاه تفرق اشعه X استفاده شد جهت مشاهده شکلشناسی<sup>۲</sup> سطح مقطع غشاهای و به منظور بررسی چگونگی توزیع نانو سیلیکا در غشاهای از آزمون SEM استفاده شده است.

### بررسی تراوایی گازها

پس از ساخت غشاهای آلیاژی پلی سولفون / پلی اتیلن گلایکول و همچنین غشاهای نانو کامپوزیت سه گانه پلیسولفون / پلی اتیلن گلایکول / نانو سیلیکا، این غشاهای مورد آزمون تراوایی نسبت به گازهای نیتروژن، اکسیژن، متان و دی اکسید کربن قرار گرفتند. از روش زمان تأخیر برای بررسی گازهای خالص استفاده شد. روش زمان تأخیر معمول ترین روش جهت آزمون تراوایی گازها در غشاهای پلیمری است. در این روش نفوذ گاز در پلیمر از زمان صفر تا هنگامی که سرعت تراوایی پلیمر به یک عدد ثابت برسد، اندازه گیری و بررسی می گردد. برای بررسی میزان گاز عبوری از غشا و ثبت دبی گاز عبوری از روش فشار ثابت استفاده می شود. در روش فشار ثابت، فشار پایبندست فشار محیط است و تغییرات حجم گاز عبور کرده از غشا ثبت می گردد. شکل (۱) شماتیکی از دستگاه آزمون غشا را نشان می دهد.

**شکل ۱. طرح کلی از دستگاه آزمون تراوایی**

در آزمونهای انجام شده در این پژوهش میزان تغییرات حاصل از ارتفاع ستون آب به واسطه گاز عبور کرده از غشا برحسب سانتیمتر نسبت به زمان برحسب ثانیه تنظیم گردید. شکل (۲) نتایج حاصل از آزمون تراوایی گاز نیتروژن برای غشا نانو کامپوزیت را نشان میدهد.



**شکل ۲. نتایج حاصل از آزمون تراوایی گاز نیتروژن در فشار ۱۰ بار و دمای ۲۵ درجه سانتیگراد**

A سطح مقطع غشا  $\text{cm}^2$

واحد ضریب تراوایی در سیستم SI به صورت زیر بیان میشود (۱۲):

$$P = \text{mol} / (\text{m}^2 \text{ s Pa})$$

واحد مورد استفاده به صورت عموم واحد بار است که به صورت زیر بیان می شود:

$$1 \text{ Barrer} = 10^{-10} \text{ cm}^3(\text{STP}) \cdot \text{cm} / (\text{cm}^2 \cdot \text{S} \cdot \text{cmHg})$$

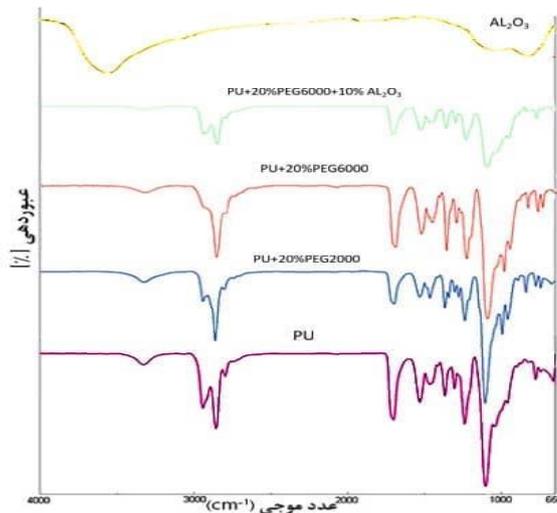
ضریب نفوذ گاز در غشا نیز طبق رابطه (۳) محاسبه می شود. با محاسبه ضریب تراوایی گازهای مختلف، گزینش پذیری غشا نسبت به گازهای مورد مطالعه با تقسیم ضریب تراوایی گازها به دست خواهد آمد. مثلاً برای جفت گاز  $\text{CO}_2$  و  $\text{CH}_4$  پس از اندازه گیری تراوش پذیری این دو گاز در غشا، گزینش پذیری ایده آل نسبت به این دو گاز برابر خواهد بود یا:

$$\alpha = \frac{P_{\text{CO}_2}}{P_{\text{CH}_4}} \quad (3)$$

### یافته ها

### نتایج طیفسنجی انتقال فوریه مادون قرمز (ATR-FTIR)

شکل (۴) طیف انتقال فوریه مادون قرمز را برای غشای پلی یورتان خالص، غشاهای آلیاژ پلییورتان/ پلیاتیلنگلایکول و غشای نانو کامپوزیت را نشان میدهد.



شکل ۳. مقایسه نمودار FT-IR غشا PU خالص، آلیاژی PU/PEG، غشای نانو کامپوزیت PU/PEG/Nano Alomina

در ۱۱۰۲ قابل مشاهده است. پیک ایجاد شده در ناحیه ۶۱۵ در نانو ذرات آلومینا ظاهر شده که این پیک در غشاهای نانو کامپوزیت در ۱۰ درصد وزنی نانو آلومینا موجب تغییر در طیف غشای نانو کامپوزیت نسبت به غشای آلیاژی شده است.

### نتایج آزمون پراش پرتو ایکس (XRD)

در روش فشار ثابت با اتصال فضای پایین دست به ستون آب و با اندازه گیری تغییرات ستون آب نسبت به زمان، دبی گاز عبور کرده از غشا به دست می آید. با برون یابی قسمت خطی نمودار و امتداد آن تا قطع کردن محور زمان، زمان تأخیر به دست می آید. زمان تأخیر از رابطه زیر با ضریب نفوذ در ارتباط است  $26/7/2025$ :

$$\theta = \frac{l^2}{6D} \quad (1)$$

که در این رابطه  $\theta$  زمان تأخیر بر حسب ثانیه،  $L$  ضخامت غشا بر حسب سانتی متر و  $D$  ضریب نفوذ گاز در غشا بر حسب سانتی متر مربع بر ثانیه ( $\text{cm}^2/\text{S}$ ) است. در حالت پایا با اندازه گیری شیب خط نمودار، مقدار دبی به دست خواهد آمد. سپس ضریب تراوایی گاز در پلیمر طبق رابطه زیر به دست خواهد آمد:

$$P = \frac{Q \cdot L}{(P_1 - P_2) \cdot A} \quad (2)$$

$P$  ضریب تراوایی گاز در پلیمر  
 $\text{cm}^3(\text{STP}) \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{S} \cdot \text{cmHg}$   
 $Q$  دبی گاز عبوری از غشا  $\text{cm}^3(\text{STP}) / \text{S}$   
 $L$  ضخامت غشا ( $\text{cm}$ )  
 $P_1, P_2$  فشار گاز در بالادست و پایین دست ( $\text{cmHg}$ )

با توجه به شکل (۳) در طیف مربوط به پلییورتان جذب گروه N-H واحد یورتانی تقریباً در  $3319 \text{ cm}^{-1}$  و جذب گروه های کربونیل آزاد در محدوده  $1720-1714 \text{ cm}^{-1}$  اتفاق می افتد. قله اتصال اتری در  $1106$  و  $1112 \text{ cm}^{-1}$  اتفاق می افتد. قله های موجود در  $2936$  و  $2859 \text{ cm}^{-1}$  به قله های لغزش کششی نامتقارن و متقارن  $\text{CH}_2$  اشاره دارند (۴). قله جذب  $1533$  مربوط به باندهای C-N است. با ترکیب شدن پلییورتان در پلیاتیلنگلایکول ارتعاش کششی C-O-C

غشای سه گانه نانو کامپوزیت پلی یورتان/پلی گلايکول/نانوالومينا: برسی تاثیر وزن و غلظت مولکولی در عبور پذیری و انتخاب پذیری گاز با روش تاگوچی

آزمون پراش پرتو ایکس تعیین میگردد. نتایج مربوط به d-spacing در جدول (۲) بیان شده است.

یکی از عوامل مؤثر بر خواص جداسازی گازی در غشاهای پلیمری تعیین مقدار فاصله زنجیرهها از یکدیگر است که این مقدار به وسیله

جدول ۲. نتایج حاصل از پراش پرتو ایکس XRD در غشاهای خالص، آلیاژی و نانو کامپوزیت

ساختار	$(\theta)_1$	$(\theta)_2$	$(d\text{-spacing})_1$	$(d\text{-spacing})_2$
PU	۲۰/۰۳۶۵		۴/۴۳۱۶	
PU+20%PEG6000	۱۹/۹۷۶۱	۲۴/۴۹۶۸	۴/۴۴۴۹	۳/۶۳۳۹
PU+20%PEG6000+10Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۱۹/۲۴۱۲	۲۴/۴۶۲۵	۴/۶۰۱۶	۳/۶۷۱۱
PEG6000	۱۹/۳۰۱۶	۲۳/۴۱۱۳	۴/۵۹۸۷	۳/۷۹۹۹

و  $O_2/N_2$ ، جمع آوری شده است. این جدول با استفاده از روش تاگوچی و در نظر گرفتن تأثیر سه عامل وزن مولکولی پلی اتیلن گلايکول، درصدهای وزنی از پلی اتیلن گلايکول و درصدهای وزنی از نانوالومينا و هر کدام در سه سطح تشکیل شده است.

نتایج به دست آمده از طراحی آزمایشها

جدول طراحی آزمایشها (۳) جهت انتخاب غشای نانو کامپوزیت مناسب برای تراوایی گازهای نیتروژن، اکسیژن، متان و دی اکسید کربن و همچنین انتخاب پذیری گازهای  $CO_2/N_2$  و  $CO_2/CH_4$

جدول ۳. ضرایب تراوش پذیری و انتخاب پذیری مطابق با جدول طراحی آزمایشها

غشای نانو کامپوزیت	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	O <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub> /CH <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub> /N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub>
PU+10%PEG2000+%5 Al	۶۸/۴۸	۶/۶۸	۵/۶۱	۱/۸۶	۱۰/۲۵	۳۶/۸۱	۳/۰۱
PU+15%PEG2000+%10 Al	۶۵/۲۶	۴/۶۹	۴/۵۱	۱/۳۱	۱۳/۹۱	۳۹/۸۱	۳/۴۴
PU+20%PEG2000+%15 Al	۶۹/۶۸	۳/۴۳	۴/۳۷	۱/۰۲	۲۰/۳۱	۶۸/۳۱	۴/۲۸
PU+10%PEG4000+%10 Al	۶۲/۷۹	۴/۴۷	۴/۳۸	۱/۱۸	۱۴/۰۴	۵۳/۲۱	۳/۷۱
PU+15%PEG4000+%15 Al	۶۰/۶۹	۳/۲۴	۳/۳۶	۱/۰۴	۱۸/۷۳	۵۸/۳۵	۳/۲۳
PU+20%PEG4000+%5 Al	۹۴/۰۸	۷/۰۶	۵/۷۵	۱/۹۱	۱۳/۳۲	۴۹/۲۵	۳/۰۱
PU+10%PEG6000+%15 Al	۶۱/۰۲	۳/۱۵	۳/۲۷	-۰/۹۷	۱۹/۳۷	۶۲/۹۰	۳/۳۷
PU+15%PEG6000+%5 Al	۸۵/۳۹	۶/۷۵	۵/۵۹	۱/۸۴	۱۲/۶۵	۴۶/۴۱	۳/۰۴
PU+20%PEG6000+%10Al	۹۸/۰۸	۴/۶۴	۴/۴۵	۱/۲۶	۲۱/۱۳	۷۷/۸۴	۲/۵۳

جدول ۴. ارزیابی واریانس برای پاسخ تراوش پذیری CO<sub>2</sub>

وضعیت	مقدار P	نسبت F	متوسط مربعات خطا	میانگین مربعات خطا	درجه آزادی	عبارتهای مدل
معنی دار	۰/۰۵۲	۱۶/۴۲	۳۳۱/۷۷	۴۶۳/۵۵	۲	W PEG
معنی دار	۰/۰۴۰	۲۴/۳۲	۳۴۳/۲۴	۶۸۶/۴۸	۲	%PEG
با تقریب معنی دار	۰/۰۶۲	۱۲/۸۱	۱۸۰/۸۹	۳۶۱/۷۸	۲	%AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
-	-	-	۰/۰۰۵۲۰	۰/۰۱۰۴۰	۲	خطای مانده
-	-	-	-	۸/۶۳۶۱۷	۸	کل

اثر (PEG%) و درصدهای وزنی از نانوالومينا (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>%)، اثر معنی داری بر تراوش پذیری گاز دی اکسید کربن دارند. با توجه به جدول بالا درصد وزنیهای مختلف از پلی اتیلن گلايکول تأثیر گذارترین فاکتور در تراوایی گاز دی اکسید کربن است.

با توجه به در نظر گرفتن سطح اطمینان<sup>۱</sup> برابر با ۹۵ درصد، مقادیر عواملی که مقدار p آنها کمتر از ۰/۰۵ باشد، مورد قبول می باشند و نشانگر تأثیر عامل مورد نظر در عملکرد فرآیند تراوش پذیری است. داده های ارائه شده در جدول (۴) بیانگر آن است که عوامل وزن مولکولی پلی اتیلن گلايکول (W PEG)، درصدهای وزنی از پلی اتیلن گلايکول

جدول ۵. ارزیابی واریانس برای پاسخ تراوش پذیری CH<sub>4</sub>

وضعیت	مقدار P	نسبت F	متوسط مربعات خطا	میانگین مربعات خطا	درجه آزادی	عبارتهای مدل
بی معنی	۰/۶۰۵	۰/۶۵	۰/۰۰۶۷۴	۰/۰۱۳۵	۲	W PEG
بی معنی	۰/۱۵۲	۵/۵۶	۰/۰۵۷۵۴	۰/۱۱۵۱	۲	%PEG

<sup>1</sup> Confidence level

غشای سه گانه نانو کامپوزیت پلی یورتان/پلی گلایکول/نانوالومینا: بررسی تاثیر وزن و غلظت مولکولی در عبور پذیری و انتخاب پذیری گاز با روش تاگوچی

AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub> %	۲	۱۹/۳۸۲۸	۹/۶۹۱۴۱	۹۳۶/۸۷	۰/۰۰۱	معتادار
خطای مانده	۲	-/۱۷۴۱	-/۰۸۷۰۶	-	-	-
کل	۸	۴/۵۵۷۰	-	-	-	-

نانوالومینا برابر با ۰/۰۰۱ است که کوچکتر از ۰/۰۵ است؛ پس این عامل را باید مهم‌ترین محسوب کرد. با توجه به جدول (۵) درصد وزنی پلی اتیلن گلایکول و وزن مولکولی آن بر تراوش پذیری گاز متان تأثیرگذار نیستند.

اثر عوامل بر تراوش پذیری گاز متان با توجه به در نظر گرفتن سطح اطمینان برابر با ۹۵ درصد، مقادیر عواملی که مقدار p آن‌ها کمتر از ۰/۰۵ باشد، موردقبول می‌باشند و نشانگر تأثیر عامل موردنظر در عملکرد فرآیند تراوش پذیری است. مقدار p برای عامل درصد وزنی

جدول ۶. ارزیابی واریانس برای پاسخ تراوش پذیری O<sub>2</sub>

عبارتهای مدل	درجه آزادی	میانگین مربعات خطا	متوسط مربعات خطا	نسبت F	مقدار P	وضعیت
W PEG	۲	-/۲۶۹۴	-/۱۳۴۷۱	۱/۶۰	۰/۳۸۴	بی‌معنی
%PEG	۲	-/۳۳۲۰	-/۱۶۶۰۱	۱/۹۷	۰/۳۳۶	بی‌معنی
%AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۲	۵/۹۹۰۰	۲/۹۹۵۰۱	۳۵/۵۹	۰/۰۲۷	معنی‌دار
خطای مانده	۲	-/۱۶۸۳	-/۰۸۴۱۴	-	-	-
کل	۸	-/۱۷۳۴۵۲	-	-	--	-

پلی اتیلن گلایکول، درصدهای وزنی از پلی اتیلن گلایکول اثر معنی‌داری بر تراوش پذیری گاز اکسیژن ندارند. با توجه به این جدول درصد وزنی نانوالومینا تأثیرگذارترین فاکتورها در تراوایی گاز اکسیژن می‌باشند.

با توجه به در نظر گرفتن سطح اطمینان برابر با ۹۵ درصد، مقادیر عواملی که مقدار p آن‌ها کمتر از ۰/۰۵ باشد، موردقبول می‌باشند و نشانگر تأثیر عامل موردنظر در عملکرد فرآیند تراوش پذیری است. داده‌های ارائه شده در جدول (۶) بیانگر آن است که عوامل وزن مولکولی

جدول ۷. ارزیابی واریانس برای پاسخ تراوش پذیری N<sub>2</sub>

عبارتهای مدل	درجه آزادی	میانگین مربعات خطا	متوسط مربعات خطا	نسبت F	مقدار P	وضعیت
W PEG	۲	-/۰۰۸۲۳	-/۰۰۴۱۱۶	۰/۴۲	۰/۷۰۶	بی‌معنی
%PEG	۲	-/۰۲۵۹۹	-/۰۱۲۹۹۶	۱/۳۲	۰/۴۳۲	بی‌معنی
%AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۲	۱/۲۲۸۴۷	-/۶۱۴۳۳۶	۶۲/۱۹	۰/۰۱۶	معنی‌دار
خطای مانده	۲	-/۰۱۹۷۵	-/۰۰۹۸۷۶	-	-	-
کل	۸	-/۰۰۱۱۲۰	-	-	--	-

داده‌های ارائه شده در جدول (۷) بیانگر آن است که عامل درصدهای وزنی از نانوالومینا، اثر معنی‌داری بر تراوش پذیری گاز نیتروژن دارند.

با توجه به در نظر گرفتن سطح اطمینان برابر با ۹۵ درصد، مقادیر عواملی که مقدار p آن‌ها کمتر از ۰/۰۵ باشد، موردقبول می‌باشند و نشانگر تأثیر عامل موردنظر در عملکرد فرآیند تراوش پذیری است.

جدول ۸. ارزیابی واریانس برای پاسخ انتخاب پذیری CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>

عبارتهای مدل	درجه آزادی	میانگین مربعات خطا	متوسط مربعات خطا	نسبت F	مقدار P	وضعیت
W PEG	۲	۱۷/۹۲۱	۸/۹۶۱	۸/۶۱	۰/۱۰۴	بی‌معنی
%PEG	۲	۲۲/۴۳۰	۱۱/۲۱۵	۱۰/۷۸	۰/۰۷۲	با تقریب معنی‌دار
%AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۲	۷۵/۱۹۲	۳۷/۵۹۶	۳۶/۱۳	۰/۰۲۷	معنی‌دار
خطای مانده	۲	۲/۰۸	۱/۰۴۱	-	-	-
کل	۸	۱۵/۳۰۲۲	-	-	-	-

از ۰/۰۵ است، پس میتوان آن را با تقریب معنی‌دار به حساب آورد. با توجه به جدول (۸) فاکتور درصد وزنی نانوالومینا بر انتخاب پذیری CO<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub> تأثیرگذار می‌باشد.

با در نظر گرفتن سطح اطمینان برابر با ۹۵ درصد، مقادیر عواملی که مقدار p آن‌ها کمتر از ۰/۰۵ باشد، موردقبول می‌باشند. مقدار p برای عامل درصد وزنی پلی اتیلن گلایکول برابر با ۰/۰۷۲ است که بزرگ‌تر

جدول ۹. ارزیابی واریانس برای انتخاب پذیری CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>

عبارتهای مدل	درجه آزادی	میانگین مربعات خطا	متوسط مربعات خطا	نسبت F	مقدار P	وضعیت
W PEG	۲	۱۹۶/۲۸	۹۸/۱۴	۹/۶۴	۰/۰۹۴	بی‌معنی

غشای سه گانه نانو کامپوزیت پلی یورتان/پلی گلايکول/نانوآلومینا: بررسی تاثیر وزن و غلظت مولکولی در عبور پذیری و انتخاب پذیری گاز با روش تاگوجی

معنی دار	۰/۰۵۰	۱۸/۹۶	۱۹۳/۰۲	۳۸۶/۰۴	۲	%PEG
معنی دار	۰/۰۳۱	۳۰/۹۸	۳۱۵/۳۶	۶۳۰/۷۳	۲	%AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
-	-	-	۱۰/۱۸	۲۰/۳۶	۲	خطای مانده
-	-	-	-	۱۵/۳۰۲۲	۸	کل

پذیری CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> مهمترین اثر را دارد. با توجه به جدول بالا و بررسی نسبت F دیده می شود که فاکتور درصد وزنی نانوآلومینا از فاکتور درصد وزنی پلی اتیلن گلايکول مهمتر و تأثیر بیشتری بر انتخاب پذیری دی اکسید کربن به نیتروژن دارد.

با در نظر گرفتن سطح اطمینان برابر با ۹۵ درصد، مقادیر عواملی که مقدار p آن ها کمتر از ۰/۰۵ باشد، مورد قبول می باشند. مقدار p برای عامل درصد وزنی پلی اتیلن گلايکول برابر با ۰/۰۵ است معنی دار به حساب آورد. با توجه به جدول (۹) درصد وزنی نانوآلومینا بر انتخاب

### جدول ۱۰. ارزیابی واریانس برای انتخاب پذیری O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>

عبارتهای مدل	درجه آزادی	میانگین مربعات خطا	متوسط مربعات خطا	نسبت F	مقدار P	وضعیت
W PEG	۲	۰/۱۷۵۰	۰/۰۸۷۴۸	۰/۴۴	۰/۶۹۶	بی معنی
%PEG	۲	۰/۲۸۷۶	۰/۱۴۳۸۱	۰/۷۲	۰/۵۸۲	بی معنی
%AL <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	۲	۰/۵۷۹۶	۰/۲۸۹۸۱	۱/۴۵	۰/۴۰۹	بی معنی
خطای مانده	۲	۰/۴۰۰۶	۰/۲۰۰۲۸	-	-	-
کل	۸	۲۱/۵۰۸۰	-	-	-	-

در مقایسه با نیتروژن باشد. با افزایش پلی اتیلن گلايکول، نفوذپذیری متان از نیتروژن بالاتر می رود. این به دلیل ویژگی های نرم کننده پلی اتیلن گلايکول است که نرم شوندگی ساختار غشا را افزایش میدهد. در پلیمرهای لاستیکی، مکانیسم غالب فرآیند انحلال - نفوذ است. عامل تعیین کننده در فرآیند انحلال - نفوذ، میزان چگالش گاز است. در نتیجه، قابلیت میعان پذیری زیاد متان، ویسکوزیته آن را در مقایسه با نیتروژن افزایش می دهد.

غشای نانو کامپوزیتی حاوی ۲۰ درصد وزنی PEG6000 نفوذپذیری بیشتری نسبت به وزن های مولکولی دیگر پلی اتیلن گلايکول را نشان می دهد. این بیان کننده این است که زنجیره های بزرگ تر از پلی اتیلن گلايکول نفوذپذیری CO<sub>2</sub> را مطلوب تر میکند. به عبارت دیگر، پلی اتیلن گلايکول با وزن مولکولی بالاتر باعث افزایش بیشتر سرهای قطبی پلیمر در غشاهای کامپوزیت می شود. این موضوع باعث ایجاد تمایل واضحی برای افزایش هم افزایی انحلال - نفوذ می شود، خصوصاً برای دی اکسید کربن که دارای قطبش آبی است. در مورد نفوذپذیری گازها، حداکثر انتخاب برای انتخاب پذیری CO<sub>2</sub> / N<sub>2</sub> است. این نتایج را می توان به بیشترین نفوذپذیری گاز دی اکسید کربن و کمترین نفوذپذیری گاز نیتروژن برای غشاهای نانو کامپوزیتی / PU PEG/Nanoalomina نسبت داد. علاوه بر این، مشاهده شد که میزان انتخاب پذیری برای CO<sub>2</sub> / N<sub>2</sub> و CO<sub>2</sub> / CH<sub>4</sub> در غشای کامپوزیتی حاوی ۲۰ درصد وزنی از PEG 6000، در مقایسه با دیگر غشاها بیشتر است. این امر به دلیل افزایش نفوذپذیری دی اکسید کربن با توجه به افزایش گروه های قطبی در کامپوزیت های پلیمری در غشا نسبت داد.

افزایش قدرت انتخاب پذیری CO<sub>2</sub> / N<sub>2</sub> و CO<sub>2</sub> / CH<sub>4</sub>، در مقایسه با O<sub>2</sub> / N<sub>2</sub>، به دلیل بهبود نفوذپذیری CO<sub>2</sub> در مقایسه با نفوذپذیری گازهای دیگر است. حلالیت بالای CO<sub>2</sub> و مناطق جذب

با در نظر گرفتن سطح اطمینان برابر با ۹۵ درصد، مقادیر عواملی که مقدار p آن ها کمتر از ۰/۰۵ باشد، مورد قبول می باشند. مقدار p برای هر سه عامل بیشتر از مقدار بحرانی است و هر سه عامل و سطوح انتخاب شده برای آن ها تأثیر معنی دار و قابل تحلیلی ندارند. در تمامی غشاها انتخاب پذیری برای گازهای O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> به دلیل کاهش تراوایی بیشتر نیتروژن نسبت به اکسیژن نتایج متفاوتی را نشان میدهد، اما این مقدار افزایش به دلیل نزدیک بودن مقدار تراوش پذیری این دو گاز، نقش عامل تأثیر گذاری را با اهمیت و مهم نشان نمیدهد. میتوان بیان کرد که به دلیل نزدیک بودن قطر مولکولی این دو گاز و دانستن اهمیت این مطلب در غشاهای لاستیکی و همچنین حضور نانوآلومینا و اثر محدود کننده آن بر عبور پذیری گازها و کاهش تقریباً برابر این مؤلفه در این دو گاز، هیچ کدام از فاکتورهای مورد بحث برای غشاهای ساخته شده در این تحقیق تأثیر گذار شناخته نشدند.

### نتیجه گیری

نتایج نشان داد نفوذپذیری CO<sub>2</sub> از سایر گازهای مورد بررسی بسیار متفاوت است. با افزودن پلی اتیلن گلايکول به ساختار غشایی و افزایش وزن مولکولی و همچنین ترکیب پلی اتیلن گلايکول، نفوذپذیری دی اکسید کربن در مقایسه با سایر گازها افزایش می یابد. دلایل این افزایش را میتوان به بیضوی بودن مولکولهای این گاز نسبت داد که منجر به قطر سینتیکی کمتر نسبت به گازهای دیگر، خاصیت قطبی بالاتر و میعان پذیری بیشتر می شود و همچنین منجر به افزایش درجه حلالیت می شود. نیتروژن به دلیل ماهیت غیر قطبی بودن و خنثی بودن، حلالیت کمی در غشای کامپوزیت دارد؛ بنابراین، نفوذپذیری آن از سایر گازها کمتر است. بعلاوه، نفوذپذیری متان و اکسیژن در مقایسه با دی اکسید کربن پایین تر است، اما نفوذپذیری آن ها از نیتروژن بیشتر می شود. این امر ممکن است به دلیل قطر جنبشی کوچک تر این گازها

با توجه به نتایج استفاده از پلیمرهای لاستیکی دیگر به عنوان پلیمر دوم در ماتریس غشا و استفاده از نانو ذرات دیگر همچون سیلیکا، نانو ذرات اکسید تیتانیوم و نانولوله‌های کربنی در ساختار غشای نانو کامپوزیت سه گانه پیشنهاد می‌شود.

### مشارکت نویسندگان

طراحی و ایده پردازی، روش شناسی و تحلیل داده‌ها: و نگارش نهایی: مهدی عزیزی

### تعارض منافع

بنا بر اظهار نویسندگان مقاله حاضر فاقد هرگونه تعارض منافع بوده است.

### ملاحظات اخلاقی

### پیروی از اصول اخلاق پژوهش

ر مطالعه حاضر، فرم‌های رضایت‌نامه آگاهانه توسط تمامی آزمودنی‌ها تکمیل شد.

### تشکر و قدردانی

نویسنده از معاونت پژوهشی دانشگاه مرودشت به خاطر حمایت در انجام کار تحقیقاتی حاضر تشکر و قدردانی می‌کند.

بیشتر، به دلیل وجود ذرات نانو در پلیمر، منجر به نفوذپذیری بالای CO<sub>2</sub> در غشاهای نانو کامپوزیت، همسو با افزایش حلالیت گازهای O<sub>2</sub>، CH<sub>4</sub> و N<sub>2</sub> است. افزایش جزئی در انتخاب O<sub>2</sub> / N<sub>2</sub> ممکن است به دلیل نفوذ پایین نیتروژن به دلیل اندازه مولکولی نسبتاً بزرگ در غشای نانو کامپوزیت باشد.

آزمون‌های SEM و FTIR و XRD برای بررسی مشخصه فیزیکی غشا استفاده شد. آزمون SEM نشان داد که با افزوده شدن پلی اتیلن گلایکول در ماتریس پلی یورتان، غشایی همگن و امتزاج‌پذیر تشکیل شده است، همچنین در غشاهای نانو کامپوزیت در اثر تماس بین دو فاز پلیمر و نانو ذرات در ساختار شبکه پلیمری هیچ‌گونه تجمع و کلوخه شدن نانو ذرات در ساختار پلیمر مشاهده نشده است. آزمون FTIR هم بیانگر پیوندهای مورد انتظار در غشاهای ساخته شده بود. نتایج آزمون XRD نشان داد که غشای پلیمری خالص حاوی پلییورتان را میتوان آمورف در نظر گرفت چراکه در هیچ زاویه‌ای پیک خیلی تندی مشاهده نشده است. طیف XRD در درصد‌های بالای PEG نشان‌دهنده فضای باز و گسترده بدون کریستال است. با افزایش درصد PEG، پیک قله‌ها منتقل می‌شوند که این از آلیاژ شدن خوب غشاهای نانو کامپوزیتی Pu/PEG /Nano alumina می‌باشد، این انتقال با افزایش درصد PEG افزایش می‌یابد. الگوی XRD در غشای نانو کامپوزیت شامل Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>، فضای باز و گسترده بدون کریستال را نشان می‌دهد. در مورد غشاهای نانو کامپوزیتی، با اضافه شدن نانو ذرات، شدت قله‌ها کاهش یافته و قله‌ها وسیع‌ترند، این موضوع بیان‌کننده این است که با افزایش مقدار نانو ذرات، مناطق آمورف غشا افزایش می‌یابد.

## References

1. Ghalei B, Semsarzadeh MA, editors. A novel nano structured blend membrane for gas separation. Macromolecular Symposia; 2007: Wiley Online Library.
2. Car A, Stropnik C, Yave W, Peinemann K-V. PEG modified poly (amide-*i> b</i>/i>-ethylene oxide) membranes for CO<sub>2</sub> separation. J Membr Sci. 2008;307(1):88-95.*
3. Amooghin AE, Sanaeepur H, Moghadassi A, Kargari A, Ghanbari D, Mehrabadi ZS. Modification of ABS membrane by PEG for capturing carbon dioxide from CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> streams. Sep Sci Technol. 2010;45(10):1385-94.
4. Sadeghi M, Semsarzadeh MA, Barikani M, Pourafshari Chenar M. Gas separation properties of polyether-based polyurethane-silica nanocomposite membranes. J Membr Sci. 2011;376(1):188-95.

5. Rafiq S, Man Z, Maulud A, Muhammad N, Maitra S. Separation of CO<sub>2</sub> from CH<sub>4</sub> using polysulfone/polyimide silica nanocomposite membranes. Sep Purif Technol. 2012;90:162-72.
6. Rahman MM, Filiz V, Shishatskiy S, Abetz C, Neumann S, Bolmer S, et al. PEBAX® with PEG functionalized POSS as nanocomposite membranes for CO<sub>2</sub> separation. J Membr Sci. 2013;437:286-97.
7. Hussain M, Koenig A. Mixed-matrix membrane for gas separation: polydimethylsiloxane filled with zeolite. Chem Eng Technol. 2012;35(3):561-9.
۸. صادقی م، وفایی منش ع. ر. مقدمه ای بر غشا و فرآیندهای غشایی. اصفهان: انتشارات سپاهان؛ ۱۳۸۸.
9. Baker RW. Membrane Technology and Application: Wiley; 2000.
۱۰. مدائنی س، اسماعیلی م. جداسازی گازها توسط فرآیندهای غشایی. کرمانشاه: انتشارات دانشگاه رازی، ۱۳۸۵.
11. Cong H, Radosz M, Towler BF, Shen Y. Polymer-inorganic nanocomposite

membranes for gas separation. Sep Purif Technol. 2007;55(3):281-91.

12. Kim JH, Lee YM. Gas permeation properties of poly (amide-6-b-ethylene oxide)-silica hybrid membranes. J Membr Sci. 2001;193(2):209-25.