

การแยกเกลือจากสารสกัด *ACANTHUS EBRACTEATUS* VAHL. ต้นเหเรือกปลาหมอ
โดยใช้นาโนฟิลเตรชัน

นางสาว เจริญ ทิ ทู ฮา

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาวิศวกรรมเคมี ภาควิชาวิศวกรรมเคมี
คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2546
ISBN 974-17-5049-8
ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

DESALINIZATION OF AQUEOUS EXTRACT OF *ACANTHUS EBRACTEATUS* VAHL.
BY NANOFILTRATION

Miss Nguyen Thi Thu Ha

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Engineering in Chemical Engineering

Department of Chemical Engineering


Chulalongkorn University

Academic Year 2003

ISBN 974-17-5049-8

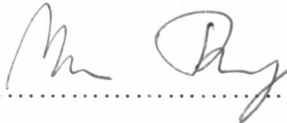
Thesis Title DESALINIZATION OF AQUEOUS EXTRACT OF *Acanthus*
ebracteatus Vahl. BY NANOFILTRATION
By Miss Nguyen Thi Thu Ha
Field of study Chemical Engineering
Thesis Advisor Muenduen Phisalaphong, Ph.D.
Thesis Co-Advisor Pongpun Siripong

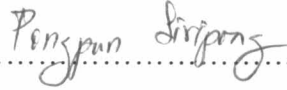
Accepted by the Faculty of Engineering, Chulalongkorn University, in Partial
Fulfilment of the Requirements for the Degree of Master of Engineering


 Dean of the Faculty of Engineering
(Professor Direk La vansiri, Ph.D.)


THESIS COMMITTEE

 Chairman
(Professor Wiwut Tanthapanichakoon, Ph.D.)

 Thesis Advisor
(Muenduen Phisalaphong, Ph.D.)

 Thesis Co-advisor
(Pongpun Siripong)

 Member
(Assistant Professor Kwanjai Kanokmedakul, Ph.D.)

 Member
(Assistant Professor Seeroong Prichanont, Ph.D.)

เหรียญน ที ทู ฮา : การแยกเกลือจากสารสกัด *ACANTHUS EBRACTEATUS* VAHL. ดันเหงือก
ปลาหมอคโดยใช้นาโนฟิลเตรชัน. (DESALINIZATION OF AQUEOUS EXTRACT OF
ACANTHUS EBRACTEATUS VAHL. BY NANOFILTRATION) อ. ที่ปรึกษา: ดร. เหมือนเดือน
พิศาลพงศ์, อ. ที่ปรึกษาร่วม: คุณผ่องพรรณ ศิริพงษ์, 54 หน้า. ISBN 974-17-5049-8.

ปริมาณเกลือจำนวนมาก (ประมาณ 14 เปอร์เซ็นต์น้ำหนักโดยน้ำหนัก) ถูกพบในสารสกัดตัน
เหงือกปลาหมอค ดังนั้นการลดปริมาณเกลือเป็นสิ่งจำเป็นก่อนการนำสารสกัดตันเหงือกปลาหมอคไปใช้
เป็นยาสมุนไพรหรืออาหารเสริม แผ่นเยื่อนาโนฟิลเตรชัน แบบ NTR 7450 จึงถูกเลือกสำหรับ
กระบวนการลดเกลือ โดยจากผลการทดลองพบว่าสภาวะที่เหมาะสมในการดำเนินการคือที่ความเร็ว
ในการไหล 0.875 เมตรต่อนาที ที่ความดัน 10 กิโลกรัมต่อตารางเซนติเมตร พบว่าแบบจำลองทาง
คณิตศาสตร์ โดย Steric-Hindrance Pore (SHP) model และ Teorell-Meyer-Sievers (TMS) มีผล
สอดคล้องที่ดีกับผลการทดลองที่ความเร็วในการไหลสูง เนื่องจากที่แรงเฉือนสูงจะมีการอุดตันแผ่น
เยื่อต่ำ การประยุกต์ใช้กระบวนการไดอาฟิเตรชัน (diafiltration) โดยประกอบด้วยขั้นตอนการทำเข้มข้น
เป็น 1.5 เท่า และการกรองแบบไดอาฟิเตรชันโดยเปลี่ยนน้ำ 2 เท่าปริมาตร สามารถลดปริมาณเกลือ
ได้ 80 เปอร์เซ็นต์ โดยพบว่าอัตราการความเร็วไหลผ่านจะสูงขึ้นในขั้นตอนไดอาฟิเตรชันเนื่องจากการ
ลดลงของการอุดตันแผ่นเยื่อจากการเติมน้ำเข้าไปในระบบ แบบจำลองทางคณิตศาสตร์สำหรับ
ขั้นตอนไดอาฟิเตรชันมีความสอดคล้องดีมากกับผลการทดลอง พบว่าสารสกัดหลังกระบวนการแยก
เกลือมีค่าการยับยั้ง (cytotoxic) ต่อเซลล์มะเร็งเยื่อของปาก (Human epidermoid carcinoma) และ
เซลล์มะเร็งปากมดลูก (Human cervical carcinoma) ดีกว่าเมื่อเทียบกับสารสกัดตั้งต้น โดยมีค่า IC_{50}
เท่ากับ 3200 และ 3500 ไมโครกรัมต่อมิลลิลิตรตามลำดับ

ภาควิชาวิศวกรรมเคมี.....ลายมือชื่อนิสิต.....

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

ปีการศึกษา.....2546.....ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม.....

##45 70707121 : CHEMICAL ENGINEERING

KEYWORDS : *ACANTHUS EBRACTEATUS* VAHL., NANOFILTRATION, DIAFILTRATION, DESALINIZATION, CYTOTOXICITY.

NGUYEN THI THU HA: DESALINIZATION OF AQUEOUS EXTRACT OF *ACANTHUS EBRACTEATUS* VAHL. BY NANOFILTRATION. THESIS ADVISOR: DR. MUENDUEN PHISALAPHONG, THESIS CO-ADVISOR: MS. PONGPUN SIRIPONG, 54 PP. ISBN: 974-17-5049-8

The aqueous extract of *Acanthus ebracteatus* Vahl was found to have high content of salts in solid weight (about 14% w/w of sodium chloride), so the desalination of aqueous extract of *A. ebracteatus* Vahl. is required before the utilization of this plant as herbal medicine or supplement. The nanofiltration membrane NTR 7450 was chosen for the desalination process. The results show that the optimal condition is at flow velocity of 0.875 m/min and applied pressure of 10 kg/cm². The mathematical models based on Steric-Hindrance Pore (SHP) model and Teorell- Meyer- Sievers (TMS) model seem to well agree at high flow velocity due to less fouling effect at high shear rate. The application of diafiltration process comprised 1.5 concentration step followed by 2 times diafiltration allowed 80% salt removal. In addition, the used of diafiltration enhanced the permeate flux due to the reducing of membrane fouling by adding fresh water. The mathematical model for diafiltration step was found to be excellent to the experiment. The aqueous extract of *A. ebracteatus* Vahl. after the desalination shows better cytotoxicity against both of KB (human epidermoid carcinoma) and HeLa (human cervical carcinoma) cell lines compared with the initial extract with IC₅₀ values of 3200 and 3500 µg/ml, respectively.

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

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

Academic year..... 2003.....Co-advisor's signature.....

ACKNOWLEDGMENTS

With the help and support from organizations and people, I completed my study. Thus, I would like to express my appreciation and grateful thanks to the followings:

First, I would like to express my deep gratitude to my advisors: Dr. Muenduen Phisalaphong and Ms. Pongpun Siripong for providing me invaluable comments and academic suggestions on my research paper. I'm grateful for everything they have done for me.

The JICA Project for AUN/SEED-Net (ASEAN University Network/ Southeast Asia Engineering Education Development Net Work) for providing me the scholarship for studying in Chulalongkorn University.

The International School of Engineering (ISE), Chulalongkorn University for giving me the chance to have the scholarship for studying in Chulalongkorn University.

The Natural Products Research Section, Research Division, National Cancer Institute Bangkok, Thailand for providing me the plant material and for cytotoxic activity testing.

I would like to extend my sincerest gratitude to all professors of the Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Chulalongkorn University, for their guide and help during the time I have studied in Chulalongkorn University. My special thanks to Prof. Dr. Wiwut Tanthapanichakoon, Assistant Prof. Dr. Seeroong Prichanont and Assistant Prof. Dr. Kwanjai Kanokmedakul who served as thesis committee.

My appreciation goes to my friends for their enthusiasm and all what they have done for me during my study in Thailand.

The last but not least, my special thanks go to all members of my family for their love and encouragement. With their help, my study was successfully completed. Especially thanks to Mr. Cao Xuan Thang for sharing such a nice time in Thailand.

CONTENTS

	Page
ABSTRACT IN THAI.....	iv
ABSTRACT IN ENGLISH.....	v
ACKNOWLEDGEMENTS.....	vi
CONTENTS.....	vii
LIST OF TABLES.....	ix
LIST OF FIGURES.....	x
CHAPTER 1 INTRODUCTION.....	1
1.1 Introduction.....	1
1.2 Research objectives.....	3
CHAPTER 2 LITERATURE REVIEW.....	4
2.1 Background on nanofiltration membrane and NF process.....	4
2.1.1 Nanofiltration membranes.....	4
2.1.2 Diafiltration.....	5
2.2 Nanofiltration membrane applications for desalinization.....	5
2.3 <i>A. ebracteatus</i> Vahl.....	7
CHAPTER 3 MATERIAL AND METHODS.....	9
3.1 Plant material.....	9
3.2 Membrane.....	9
3.3 Experimental procedure.....	10
3.3.1 Continuous filtration for the determination of optimal conditions.....	10
3.3.2 Dialysis process.....	10
3.4 Analytical method.....	12
3.5 Calculation.....	13
3.5.1 Volumetric permeate flux.....	13
3.5.2 Observed rejection of sodium chloride.....	13
CHAPTER 4 MATHEMATICAL MODELS FOR NANOFILTRATION MEMBRANE.....	14
4.1 Introduction.....	14
4.2 Basic concepts.....	15
4.3 Determination of membrane parameters.....	17
4.4 Diafiltration simulation.....	19

CONTENTS (continued)

4.4.1 Concentration step.....	19
4.4.2 Diafiltration step.....	20
CHAPTER 5 RESULT AND DISCUSSION.....	21
5.1 Effect of flow velocity and trans membrane pressure (TMP) on permeate flux of aqueous extract of <i>A. ebracteatus</i> Vahl.....	21
5.2 Effect of flow velocity and TMP on observed rejection of NaCl.....	24
5.3 Membrane parameters.....	25
5.4 Optimal conditions consideration.....	27
5.5 Diafiltration process.....	28
5.5.1 Concentration step.....	28
5.5.2 Diafiltration step.....	30
5.6 Percentages of C, H and N.....	32
5.7 Removal of other charged solutes.....	34
5.8 Results of HPLC analysis.....	36
5.9 Bioactivity.....	42
CHAPTER 6 CONCLUSIONS AND RECOMMENDATIONS.....	43
6.1 Conclusions.....	43
6.2 Recommendations.....	43
NOMENCLATURE.....	45
REFERENCES.....	47
APPENDICES.....	51
BIOGRAPHY.....	54

LIST OF TABLES

	Page
Chapter 5	
5.1 Weight percent of salt in dry solid at different TMP and Flow velocity	25
5.2 The reflection coefficient, σ_{salt} , and the permeability, P_{salt} of salt obtained from experiment data by fitting curve.....	26
5.3 Weight percent of salt in total solid content and the removals of salt and other compounds than salt in feed at each step.....	32
5.4 Percentage of C, H and N in retentate and permeate.....	34
5.5 Concentration and removal of cations in feed, concentrate and permeate.....	35
5.6 Cytotoxicity of compounds from the initial aqueous extract, the concentrate and the permeate after the concentration and the diafiltration step.....	42

LIST OF FIGURES

	Page
Chapter 1	
1.1 <i>A. ebracteatus</i> Vahl. Plant.....	2
Chapter 3	
3.1 Picture of Nanofiltration unit.....	9
3.2 Schematic procedure for optimal condition determination.....	10
3.3 Diagram of diafiltration process.....	11
3.4 Schematic procedure for diafiltration step.....	11
3.5 Nanofiltration plant for diafiltration step.....	12
Chapter 5	
5.1 Permeate flux of aqueous extract of <i>A. ebracteatus</i> Vahl. at different operating conditions.....	23
5.2 Effect of flow velocity on permeate flux of aqueous extract of <i>A. ebracteatus</i> Vahl.....	23
5.3 NaCl rejection of aqueous extract of <i>A. ebracteatus</i> Vahl. at different operating conditions.....	24
5.4 Rejection of sodium chloride by NTR7450 membrane as a function of volume flux.....	27
5.5 Permeate flux at the concentration step and the diafiltration step.....	28
5.6 C_f/C_{f0} as a function of V_{f0}/V_f at the concentration step in overall diafiltration process.....	29
5.7 NaCl Rejection with time at the concentration step.....	30
5.8 Variation of feed concentration during diafiltration step.....	31
5.9 The color of initial aqueous extract of <i>A. ebracteatus</i> Vahl.; concentrate and permeate.....	33
5.10 The chromatogram of the initial aqueous extract of <i>A. ebracteatus</i> Vahl. at injection volume of 100 μ l.....	37
5.11 The chromatogram of the retentate after concentration step at injection volume of 100 μ l.....	38
5.12 The chromatogram of the concentrate at injection volume of 100 μ l.....	39

LIST OF FIGURES (continued)

	Page
Chapter 5	
5.13a The chromatogram of the average permeate in concentration step at injection volume of 100 μl	40
5.13b The chromatogram of the average permeate in concentration step at injection volume of 200 μl	41