

کارایی پوسته غلاف گیاه آکاسیا تورتیلیس به عنوان جاذب ارزان قیمت و قابل دسترس در حذف فنل

محمد ملکوتیان^۴

احمد جنیدی جعفری^۲

امیرحسین محوى^۱

حسین جعفری منصوریان^۳

پذیرش (۹۳/۳/۳۱)

دریافت (۹۲/۱۲/۶)

چکیده

امروزه وجود ترکیبات مقاوم سمی از جمله فنل در محیط زیست مشکلات بهداشتی و محیط زیستی فراوانی ایجاد کرده‌اند. در این پژوهش کارایی پوسته غلاف گیاه آکاسیا تورتیلیس به عنوان جاذب ارزان قیمت و قابل دسترس در حذف فنل بررسی شد. این پژوهش تجربی در مقیاس آزمایشگاهی در یک سیستم ناپیوسته انجام پذیرفت. در این راستا اثر متغیرهای مهم بهره‌برداری از قبیل غلظت اولیه فنل (۰/۵، ۱، ۲، ۴، ۸، ۱۶، ۳۲، ۶۴ و ۱۲۸ میلی گرم در لیتر)، دز جاذب (۱/۰، ۰/۴، ۰/۲، ۰/۱ و ۰/۰۶ گرم در لیتر در اندازه‌های مشخص شده میان ۳۰ تا ۶۰ و ۱۰۰ تا ۱۰۰۰ pH)، با مقادیر (۲، ۴، ۶، ۸، ۱۰، ۱۲، ۲۰، ۴۰، ۵۰ و ۶۰ دقیقه) بررسی شد. همچنین ایزوترم‌های جذب فرونالدیچ و لانگمیر به منظور تشریح ارتباط بین میزان محلول رنگی و جاذب تعیین شد. نتایج آزمایش‌ها نشان داد مؤثرترین ظرفیت جذب فنل در pH ۰ بهینه، دز جاذب بهینه (۰/۰۶ گرم در لیتر با میان ۶۰ تا ۱۰۰ و زمان تعیین شده ۱۰ دقیقه) به دست آمد که بالای ۹۵ درصد بود. با افزایش غلظت فنل، کارایی حذف نیز افزایش یافت؛ اما این سرعت حذف در غلظت‌های بالا کمتر بود. همچنین فرایند جذب با مدل فرونالدیچ انبساط بیشتری داشت. بر اساس یافته‌های حاصل از مطالعه حاضر، نتیجه گیری می‌شود که پوسته غلاف گیاه آکاسیا تورتیلیس با توجه به کارایی بالا، می‌تواند به عنوان جاذب طبیعی مؤثر، کارآمد و در عین حال ارزان قیمت در حذف فنل از محلول‌های آبی مورد استفاده قرار گیرد.

واژه‌های کلیدی: فنل، زائدات کشاورزی، آکاسیا تورتیلیس، ایزوترم جذب

Efficiency of *Acacia Tortillis* Plant Pod Shell as a Low Cost and Available Adsorbent for the Removal of Phenol

H. Jafari Mansoorian¹

A. H. Mahvi²

A. Jonidi Jafari³

M. Malakootian⁴

(Received Feb. 25, 2014 Accepted June 21, 2014)

Abstract

The presence of nondegradable toxic compounds such as phenol in the environment has nowadays led to many health and environmental problems. The present empirical study was conducted on the lab scale to evaluate the efficiency of *Acacia tortillis* pod shell as a new alternative and low cost adsorbent for removing phenol from aqueous solutions. The experiment was performed in a batch system and the effects of important operation variables including initial phenol concentrations of 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 32, and 64 mg/l, absorbent doses of 0.1, 0.2, 0.4, 0.8, and 1.6 g/l in predetermined mesh sizes (ranging over 30-60 and 60-100), pH levels of 2, 4, 6, 8, 10, and 12, and contact times of 10, 20, 30, 40, 50, and 60 min were evaluated. Finally, the Freundlich and Langmuir adsorption isotherms were determined in order to describe the relationship between the colored solution and the adsorbent. Results showed that the highest phenol absorption efficiency achieved was above 95% which was obtained with an optimum pH level of 2, an optimum absorbent dose of 0.2 g/l, and a mesh size of 60-100 for a contact time of 10 minutes and at a low pollutant concentration. Increasing phenol concentration increased its removal efficiency but this removal rate was lower at extreme concentrations. Also, the adsorption process was found to be more compatible with the Freundlich model. Based on the results obtained, the pod shells of *Acacia tortillis* pod shell may be claimed to be an effective, efficient, and cheap adsorbent for the removal of phenol from aqueous solutions.

Keywords: Phenol, Agricultural Solid Waste, *Acacia Tortillis*, Adsorption Isotherm.

1. Faculty Member of Health Faculty, Health Promotion Research Center, Zahedan University of Medical Sciences, Zahedan and Member of Young Researchers and Elite Club, Hamadan Branch, Islamic Azad University, Hamadan, Iran
پژوهشگاه زاهدان و عضو باشگاه پژوهشگران جوان و نخبگان، دانشگاه آزاد اسلامی واحد همدان، همدان، ایران
2. Assist. Prof. of Environmental Health Eng., Faculty of Public Health, Tehran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران
3. Assoc. Prof. of Environmental Health Eng., Faculty of Public Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران
4. Prof. of Environmental Health Eng. Research Center and Dept. of Environmental Health, Kerman University of Medical Sciences, Kerman, Iran (Corresponding Author) (+98 343) 1325105 m.malakootian@yahoo.com
استاد مرکز تحقیقات مهندسی بهداشت محیط و گروه بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی کرمان، کرمان، ایران (نویسنده مسئول) (۰۳۴۳) ۱۳۲۵۱۰۵ m.malakootian@yahoo.com

۱- مقدمه

آنژیمی و جذب سطحی اشاره کرد [۱۶-۱۸]. بیشتر این روش‌ها دارای معایبی نظیر هزینه بالای تصفیه، نیاز به تصفیه اضافی، تشکیل فراورده‌های جانبی خطرناک، راندمان پایین و قابلیت کاربرد برای غلظت‌های محدودی از آلاینده است [۷ و ۱۵]. در بین روش‌های تصفیه، فرایند جذب سطحی یکی از روش‌های کارآمد و مؤثر در جداسازی آلاینده‌های سمی از محیط‌های آبی است [۶ و ۱۹]. پژوهش‌ها نشان داده است که کربن فعال در جذب بسیاری از آلاینده‌های آبی مقاوم از سیستم‌های آبی مؤثر است. جذب توسط کربن فعال به عنوان یکی از بهترین فناوری‌های قابل دسترس در حذف ترکیبات آبی، توسط سازمان حفاظت محیط زیست آمریکا توصیه شده است؛ اما به دلیل قیمت بالا و مشکلات احیای مجدد، کاربرد آن در کشورهای در حال توسعه و کم درآمد، محدود است و این موضوع باعث شده که بسیاری از پژوهشگران به دنبال جاذب‌های ارزان قیمت و قابل دسترس محلی برای جایگزینی کربن فعال برای حذف ترکیبات مختلف آبی از قبیل فنل باشند [۹ و ۲۰].

در این پژوهش برای اولین بار از پوسته غلاف گیاه آکاسیاتورتیلیس به عنوان جاذب جایگزین جدید، ارزان قیمت و قابل دسترس برای حذف فنل استفاده شد. این گیاه یکی از رایج‌ترین گونه‌های درختی در مناطق خشک و نیمه‌خشک است که در آفریقای شمالی، شبه جزیره عربستان و قسمت‌های جنوبی ایران از جمله سیستان و بلوچستان و هرمزگان رشد می‌کند. این گیاه یک منبع غذایی برای حیوانات است و از آن برای تأمین هیزم و ساخت پناهگاه برای صحرانشینان استفاده می‌شود. پژوهش‌های انجام‌شده بر روی سرشاخه و میوه این درخت در مرکز تحقیقات کشاورزی و منابع طبیعی هرمزگان نشان می‌دهد که سرشاخه‌های جوان آن حاوی ۱۶/۶ درصد پروتئین خام، ۴/۲ درصد چربی خام، ۳/۱۸ درصد الیاف خام، ۸/۶ درصد خاکستر، ۷۷/۰ درصد کلسیم و ۲۱/۰ درصد فسفر است [۲۱ و ۲۲]. پژوهش حاضر با هدف کارایی پوسته غلاف میوه گیاه آکاسیاتورتیلیس به عنوان جاذب طبیعی در حذف فنل از محیط‌های آبی انجام پذیرفت. همچنین تأثیر عوامل مختلف محیطی مثل pH، غلظت آلاینده، زمان تماس، دز جاذب و اندازه آن بر روی ظرفیت جذب بررسی شد و در نهایت مدل‌های مربوط به ایزوترم جذب بررسی شد. الگوی اصلی در کاربرد این روش‌ها در مقیاس واقعی است.

۲- مواد و روش‌ها

این مطالعه یک پژوهش کاربردی-تجربی و در مقیاس آزمایشگاهی بود که در آزمایشگاه شیمی محیط دانشگاه علوم پزشکی زاهدان انجام گرفت. در این پژوهش پوسته‌های غلاف گیاه آکاسیاتورتیلیس که به عنوان زائدات کشاورزی شناخته می‌شوند، از

امروزه وجود ترکیبات مقاوم سمی در محیط زیست، مشکلات بهداشتی و محیط زیستی فراوانی را موجب شده‌اند. از جمله این ترکیبات می‌توان به فنل اشاره کرد که جزء آلاینده‌های درجه اول بوده و به دلیل اثرات سمی و خاصیت سلطان‌زاپی، توجه بسیاری از متخصصان محیط زیست را به خود جلب کرده است [۱ و ۲]. فنل با وزن مولکولی ۹۴/۱ گرم بر مول، یک هیدروکربن حلقوی آروماتیک و از مشتقات بنزن بوده که در حالت خالص، بی‌رنگ یا جامد سفید است. فنل حلالیت بسیار بالایی در آب دارد و پس از حل شدن، خاصیت بسیار کم اسیدی به آب می‌دهد [۳-۵]. ترکیبات فنلی، هیدروکربن‌هایی هستند که در ساختمان مولکولی آنها گروه هیدروکسیل با اتم کربن حلقه بنزنی پیوند تشکیل داده است [۶].

فنل به صورت طبیعی از قطران زغال سنگ و تقطیر بنزن و به صورت مصنوعی در اثر حرارت سولفات بنزن سدیمی با سود آبدار در فشار بالا تولید می‌شود [۷ و ۸]. این ماده و مشتقات آن در صنایع متعددی از جمله صنایع تولید رزین و پلاستیک، رنگ، سوموم دفع آفات، داروسازی، پالایشگاه‌های نفت، صنایع پتروشیمی، معادن زغال سنگ، صنایع فولاد و آلومینیوم و سرب، شوینده‌ها، منسوجات مصنوعی و چرم‌سازی کاربرد دارد و به عنوان یک آلاینده مهم در فاضلاب صنایع یادشده، مطرح است [۹-۱۱]. تشخیص، شناسایی و تعیین میزان ترکیبات فنلی در منابع آب و پایش‌های محیط زیستی متعاقب آن، اهمیت زیادی در کنترل انتشار این مواد و کاهش اثرات این آلاینده‌ها بر محیط زیست دارد [۱۲ و ۱۳]. استاندارد سازمان حفاظت محیط زیست ایران برای تخلیه مواد فنل دار به آب‌های سطحی، مصارف کشاورزی و آبیاری برابر ۱ میلی‌گرم در لیتر است. سازمان بهداشت جهانی^۱، غلظت ۱/۰ میلی‌گرم در لیتر در آب آشامیدنی را به عنوان حداقل غلظت مجاز در نظر گرفته است. همچنین طبق استاندارد سازمان حفاظت محیط زیست آمریکا^۲ مقدار مجاز فنل در آب آشامیدنی ۱ تا ۲ میکروگرم در لیتر و در پساب صنایع ۵۰۰ میکروگرم در لیتر است [۱۴ و ۱۵].

به منظور کاهش اثرات مضر زیستی فنل، باید با اعمال استانداردهای لازم بر انجام تصفیه مناسب و یا جلوگیری از تخلیه فاضلاب‌های محتوی ترکیبات فنل تمرکز کرد. تاکنون روش‌های مختلفی برای تصفیه پساب‌های حاوی فنل به کار برده شده که از آن جمله می‌توان به اکسیداسیون شیمیایی و فتوشیمیایی پیش‌رفته و ترکیبی، ترسیب، تبادل یون، تقطیر با بخار، روش‌های الکتروشیمیایی، پرتودهی، تغیریب فوتوكاتالیستی، روش‌های حذف

¹ World Health Organization (WHO)

² United State Environmental Protection Agency (USEPA)

C_0 و C_e به ترتیب غلظت اولیه و نهایی فنل در محلول بر حسب میلی گرم در لیتر، V حجم محلول بر حسب لیتر، M جرم جاذب بر حسب گرم، t مقدار آلاینده جذب شده در زمان تعادل بر حسب میلی گرم بر گرم و E راندمان حذف است.

۳- نتایج و بحث

نتایج آزمایش و آنالیزهای انجام شده بر روی جذب فنل به کمک جاذب طبیعی پوسته غلاف گیاه آکاسیاتورتیلیس در شکل‌های ۱ تا ۱۰ و جدول ۱ ارائه شده است. این نتایج نشان می‌دهد که بالاترین کارایی حذف فنل با هر دو مش بین ۳۰ تا ۶۰ و ۶۰ تا ۱۰۰ جاذب، در pH برابر ۲ اتفاق افتاده و با افزایش pH، میزان حذف فنل کاهش یافت (شکل ۱). تأثیر دز جاذب و اندازه آن در میزان حذف فنل در شکل ۲ نشان داده است. با افزایش دز جاذب از ۱/۱ تا ۱/۶ گرم در لیتر، میزان جذب فنل به‌طور بسیار جزئی افزایش یافت. هرچند با افزایش میزان جاذب، فنل کمتری در محلول باقی می‌ماند اما محاسبات نشان داد که با افزایش دز جاذب، مقدار آلاینده جذب شده در واحد جرم جاذب در حد ۰/۲ گرم در لیتر بر اساس این محاسبات، دز بهینه جاذب در حد ۰/۰۸ گرم در لیتر تعیین و در سایر بخش‌های مطالعه استفاده شد. همچنین مشاهده شد همان‌طور که اندازه ذرات کاهش می‌یابد به‌طوری که آلاینده جذب شده در شرایط pH بهینه یعنی pH برابر ۲، ظرفیت جذب با افزایش زمان تماس بین ۱۰ تا ۶۰ دقیقه، در غلظت‌های مختلف فنل به‌طور جزئی افزایش یافت. همچنین با افزایش غلظت فنل، راندمان حذف توسط جاذب طبیعی افزایش یافت (شکل‌های ۳ تا ۸).

برای تحلیل جذب فنل توسط جاذب طبیعی از ایزوترم‌های فروندلیچ و لانگمیر استفاده شد (شکل‌های ۹ و ۱۰). بهمین منظور محلولی با غلظت فنل ۴ میلی گرم در لیتر، pH بهینه ۲ و زمان تماس ۳۰ دقیقه با دزهای مختلف جاذب در تماس قرار گرفت و در انتهای غلظت باقیمانده فنل اندازه‌گیری شد. به‌منظور تعیین ایزوترم‌های جذب نیز از شکل خطی این مدل‌ها استفاده شد. همان‌طور که در جدول ۱ مشاهده می‌شود، فرایند جذب فنل بر روی جاذب طبیعی با ایزوترم فروندلیچ تطابق بیشتری داشت.

۱-۳- اثر pH بر روی حذف فنل

pH یکی از فاکتورهای مهمی است که از طریق تأثیر بر ساختار آلاینده و بار سطحی جاذب در فرایند جذب تأثیر می‌گذارد. همچنین pH بر روی شارژ الکتریکی سطح جاذب بر اساس درجه یونیزاسیون اثر گذاشته و درجه یونیزاسیون فنل را تغییر می‌دهد [۶]. همان‌طوری که نتایج نشان داد با افزایش pH کارایی حذف

شهر ایرانشهر واقع در استان سیستان و بلوچستان تهیه شد. برای تهیه جاذب، دانه‌ها از غلاف جدا شد و غلاف‌ها به منظور حذف ناخالصی، چندین بار با آب مقطر شسته شدند. پوسته غلاف‌ها پس از شستشو، به مدت ۲۴ ساعت در فر با دمای ۷۰ درجه سلسیوس خشک شد و برای خنک شدن در دسیکاتور قرار گرفت. برای پودر کردن پوسته غلاف‌ها، از آسیاب برقی استفاده شد و دانه‌بندی اجزای پودر شده با استفاده از الکهای استاندارد ASTM با اندازه‌های مش بین ۳۰ تا ۶۰ و ۶۰ تا ۱۰۰ انجام شد.

در این مطالعه تأثیر غلظت اولیه فنل، اندازه جاذب، جرم جاذب، زمان واکنش و pH بررسی شد. برای ساخت غلظت‌های مشخص از فنل در آب مقطر، این ماده از شرکت مرک^۱ آلمان، به صورت جامد با درجه خلوص ۹۹/۹ درصد و جرم مولکولی ۹۴/۱۱ گرم بر مول تهیه شد. آزمایش‌ها به صورت ناپیوسته در ارلن‌های ۱۰۰ میلی لیتر صورت گرفت. در مرحله نخست با ثابت نگه داشتن غلظت فنل، زمان تماس و دز جاذب، pH بهینه از میان pH‌های ۴، ۶، ۸، ۱۰ و ۱۲ مشخص شد. برای تنظیم pH از محلول اسید سولفوریک و هیدروکسید سدیم انرمال استفاده شد. در مرحله بعد با ثابت نگه داشتن غلظت فنل، زمان تماس و pH، دز بهینه جاذب از مقادیر ۱/۰، ۰/۸، ۰/۴، ۰/۲ و ۰/۰۱ گرم در لیتر تعیین شد. دز بهینه جاذب با دو مش بین ۳۰ تا ۶۰ و ۶۰ تا ۱۰۰ تعیین شد. برای مخلوط کردن و تماس مناسب جاذب و محلول سنتیک از شیکر اوربیتالی مدل ۱۳۷ GFL با سرعت ۱۲۰ دور در دقیقه استفاده شد. سپس در زمان‌های ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰ و ۶۰ دقیقه از غلظت‌های مختلف اولیه فنل یعنی ۰/۵، ۱، ۲، ۴، ۸، ۱۶ و ۳۲ میلی گرم در لیتر، به میزان ۲۵ میلی لیتر نمونه برداشته شد. برای جداسازی ذرات جاذب از محلول از روش فیلتر اسیون (فیلتر ۴۵/۰ میکرومتر) استفاده شد. غلظت فنل باقیمانده در نمونه‌های برداشته شده با استفاده از اسپکتروفوتومتر^۲ در طول موج ۵۵۰ نانومتر مطابق با روش‌های مندرج در کتاب روش‌های استاندارد برای آزمایش آب و فاضلاب قرائت شد. در این مطالعه ایزوترم‌های جذب لانگمیر و فروندلیچ به منظور تشریح ارتباط بین میزان آلاینده و جاذب استفاده شده و به عنوان متغیرهای سینتیک بررسی شد. مقدار فنل جذب شده در زمان تعادل و کارایی حذف رنگ به ترتیب توسط روابط ۱ و ۲ تعیین شد

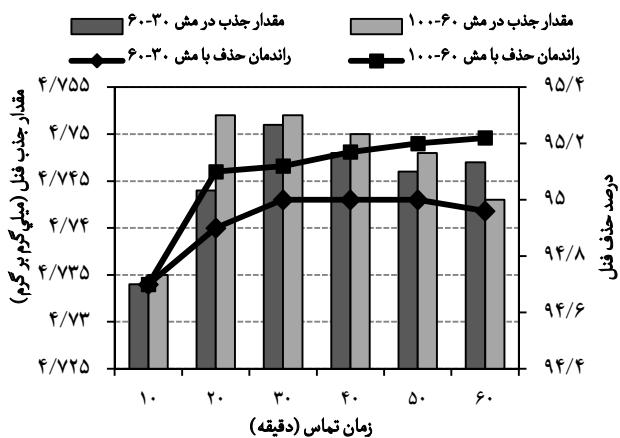
$$q_e = \frac{V}{M} \times (C_0 - C_e) \quad (1)$$

$$E = \frac{C_0 - C}{C_0} \times 100 \quad (2)$$

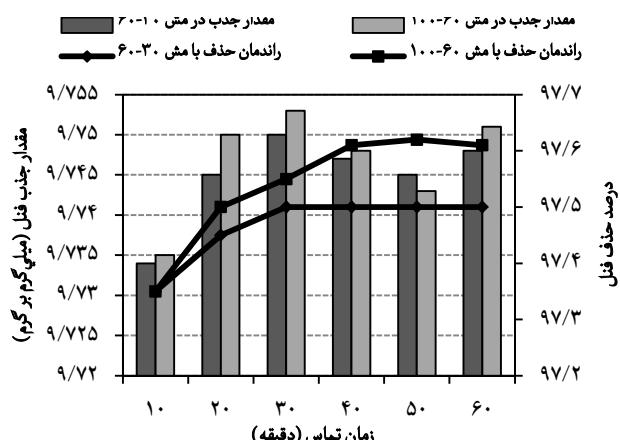
که در این روابط

¹ Merck

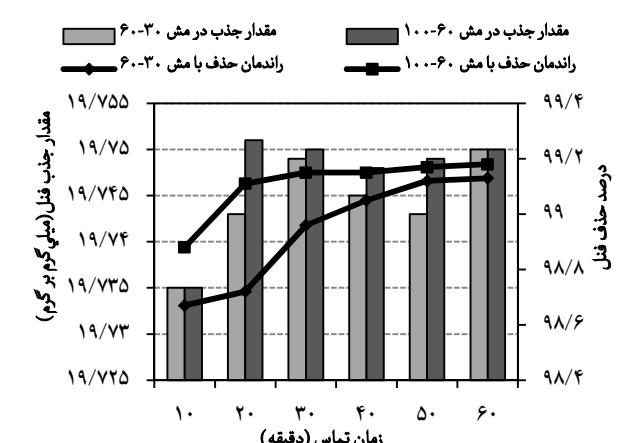
² Spectrophotometer UV\Visible Optima SP-3000 Plus



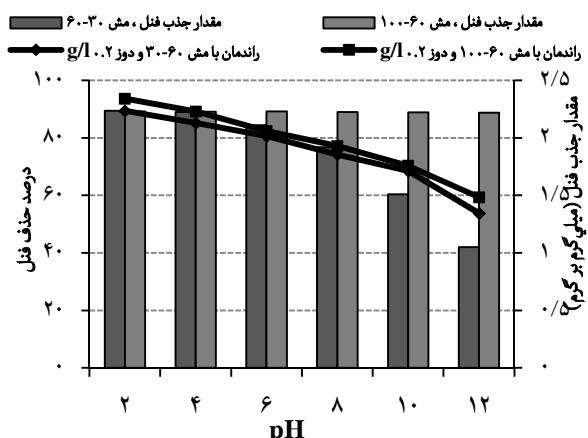
شکل ۴- راندمان حذف فتل در غلظت ۱ میلی گرم در لیتر از طریق
جذب بر روی پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس
(pH برابر ۲ و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر)



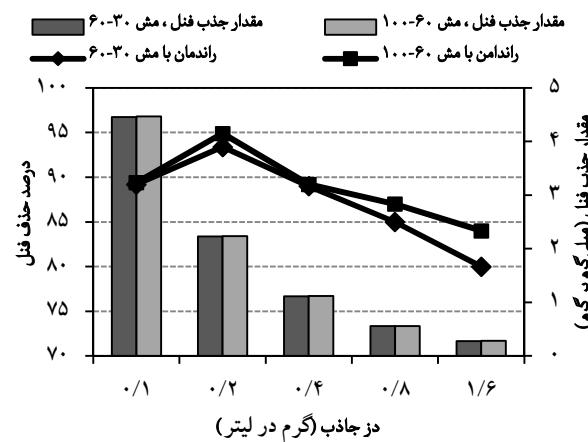
شکل ۵- راندمان حذف فتل در غلظت ۰/۱ میلی گرم در لیتر از طریق
جذب بر روی پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس
(pH برابر ۲ و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر)



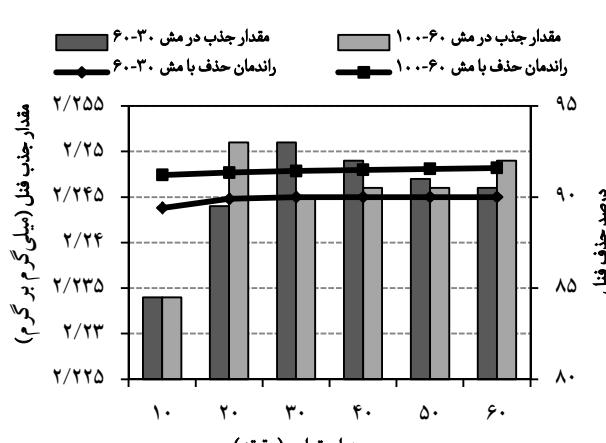
شکل ۶- راندمان حذف فتل در غلظت ۰/۰۳ میلی گرم در لیتر از طریق
جذب بر روی پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس
(pH برابر ۲ و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر)



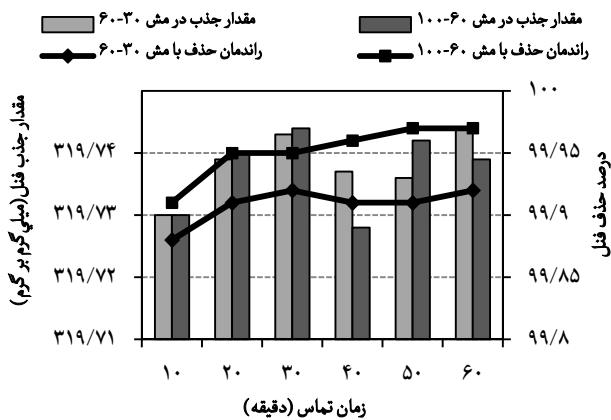
شکل ۱- اثر pH در حذف فتل از طریق جذب بر روی پوسته غلاف
آکاسیاتورتیلیس و تعیین بهینه آن
(غلظت فتل ۸ میلی گرم در لیتر زمان تماس ۳۰ دقیقه و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر)



شکل ۲- اثر دز جاذب در حذف فتل از طریق جذب بر روی پوسته
غلاف آکاسیاتورتیلیس و تعیین بهینه آن
(غلظت فتل ۸ میلی گرم در لیتر، زمان تماس ۳۰ دقیقه و pH برابر ۲)



شکل ۳- راندمان حذف فتل در غلظت ۰/۰۶ میلی گرم در لیتر از طریق
جذب بر روی پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس
(pH برابر ۲ و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر)



شکل ۶- راندمان حذف فنل در غلظت ۶۴ میلی گرم در لیتر از طریق جذب بر روی پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس pH برابر ۲ و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر

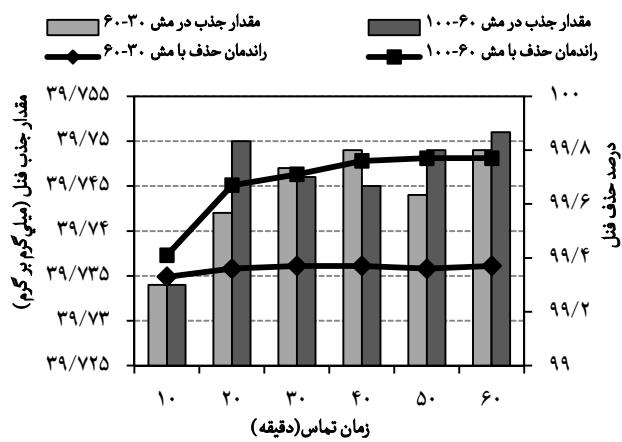
جدول ۱- پارامترهای مدل‌های ایزوتروم فرونالیج و لانگمیر در دمای ۲۲±۲ درجه سلسیوس

ایزوتروم فرونالیج				ایزوتروم لانگمیر		
R _L	R ²	Q _m (L mg ⁻¹)	K _L (Lg ⁻¹)	R ²	n	K _f
۰/۰۸۷	۰/۸۸	۲۱/۳۲	۰/۳۱	۰/۹۳	۲/۵۷	۲/۴۶
۰/۳۱۶	۰/۸۲	۲۰/۱۸	۰/۲۷	۰/۸۶	۱/۹۹	۳/۷۵

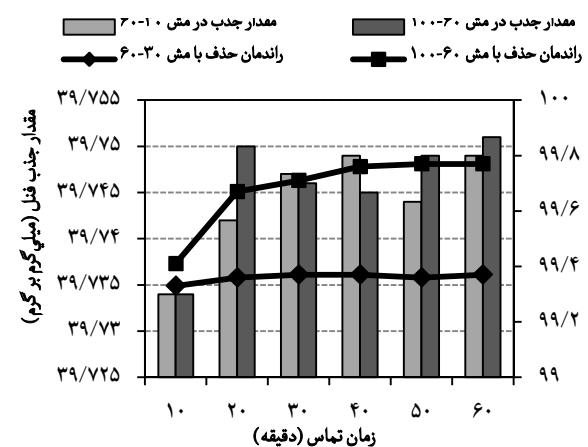
کاهش یافته، به طوری که در pH برابر ۱۲، حداقل جذب فنل صورت گرفت. این پدیده مربوط به اثر pH در یونیزاسیون فنل است. بخش یونی فنل (φ_{ions}) توسط رابطه ۳ قابل محاسبه است [۲۳]

$$\varphi_{ions} = \frac{1}{[1 + 10^{(pka - ph)}]} \quad (3)$$

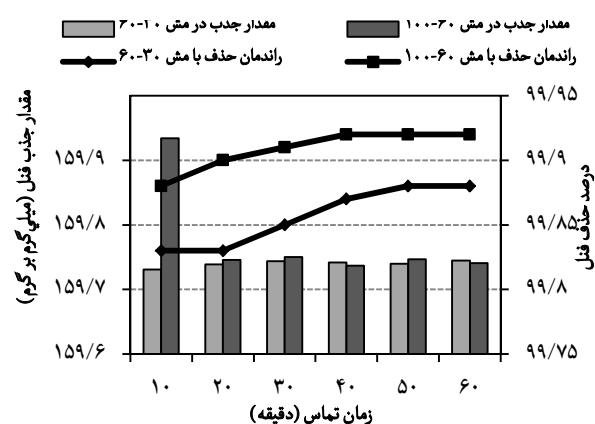
با افزایش pH افزایش یافت. در نتیجه فنل که یک اسید ضعیف است به مقدار خیلی جزئی در pH بالا جذب خواهد شد که علت آن نیروهای دافعه غالب در pH بالا است. همچنین در pH های بالا، فنل به شکل نمک خواهد بود که به سادگی یونیزه شده و ایجاد بار منفی در گروه های فنلی می کند و در همین لحظه وجود گروه های یونی OH⁻ بر روی جاذب از جذب یون های فنالات جلوگیری می کند [۲۴] و [۲۵]. نتایج مشابهی در این خصوص برای جذب فنل بر روی کربن فعال حاصل شده از هسته خرما توسط الناس و همکاران، جذب فنل بر روی رس ارزان قیمت توسط نیاک، حذف فنل و کلروفنل با استفاده از زئولیت اصلاح شده توسط کولین و همکاران ارائه شده است [۲۶-۲۸]. تغییر در pH بر فرایند جذب سطحی و طی تجزیه و گسترش گروه های وابسته در سطوح فعال جاذب تأثیر می گذارد. در نتیجه، این مسئله منجر به تغییر در سینتیک واکنش جذب و خصوصیات تعادلی بین جاذب و ماده جذب شونده در فرایند جذب سطحی می شود. جذب سطحی



شکل ۷- راندمان حذف فنل در غلظت ۸ میلی گرم در لیتر از طریق جذب بر روی پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس pH برابر ۴ و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر



شکل ۸- راندمان حذف فنل در غلظت ۱۶ میلی گرم در لیتر از طریق جذب بر روی پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس pH برابر ۲ و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر



شکل ۹- راندمان حذف فنل در غلظت ۳۲ میلی گرم در لیتر از طریق جذب بر روی پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس pH برابر ۲ و دز جاذب ۰/۰ گرم در لیتر

لین و همکاران در جذب فنل با استفاده از رزین و جاذب‌های ارزان قیمت و سایتوح و همکاران در حذف فنل با استفاده از کیتوزان متصل شده به پلیمر، نتایج مشابهی را گزارش کردند.

۳-۳-اثر اندازه جاذب بر روی حذف فنل

تأثیر اندازه ذرات، اطلاعات مهمی برای رسیدن به مصرف بهینه جاذب و حداقل جذب فراهم می‌کند. سینتیک آزمایش‌های انجام شده برای حذف فنل با استفاده از دو مش مختلف ۳۰ تا ۶۰ و ۱۰۰ جاذب بود. نتایج مشاهده شده در شکل‌های ۳ تا ۸ نشان می‌دهد که فرایند جذب با اندازه کوچک‌تر جاذب، سریع‌تر به حالت تعادل می‌رسد. زمانی که غلظت‌های اولیه مختلف آلاینده با اندازه‌های مختلف جاذب آزمایش می‌شود، غلظت‌های تعادل متفاوت است. در این پژوهش نیز جاذب با مش ۶۰ تا ۱۰۰ بالاترین میزان جذب را داشت، برای پوسته غلاف آکاسیاتورتیلیس، بیشترین ظرفیت جذب سطحی در کانال‌های ریزمند بود زیرا وقتی ذرات جاذب کوچک‌تر هستند، منافذ ریز بیشتری در معرض مولکول‌های جذب‌شونده قرار می‌گیرند؛ بنابراین دیفیوژن سریع‌تر خواهد بود. میزان جذب بر روی سطح جامد با مساحت سطحی قابل دسترس برای یک جرم جاذب ثابت با اندازه ذره، متفاوت بوده و ظرفیت جذب سطحی به طور مستقیم متناسب با کل سطح در معرض تماس و به طور معکوس متناسب با قطر ذره برای جاذب‌های غیرمتخلخل است [۳۱ و ۳۲]. اگرچه آکاسیاتورتیلیس با سایز ۶۰ تا ۱۰۰ نتایج سینتیکی بهتری می‌دهد، اما کار با ذرات کوچک‌تر آسان نیست، زیرا این ذرات بعد از هر آزمایش در دیواره ظروف مورد استفاده، گیر می‌افتد. روستایی و همکاران در پژوهشی بر روی حذف فنل از طریق جذب سطحی، نتایج مشابهی را گزارش نموده‌اند [۳۳].

۴-اثر زمان تماس بر روی حذف فنل

به منظور بررسی اثر زمان تماس در راندمان فرایند جذب فنل، آزمایش‌ها در زمان تماس ۱۰ تا ۶۰ دقیقه انجام شد. نتایج حاصل نشان داد که زمان لازم در فرایند جذب فنل بر روی پوسته غلاف گیاه آکاسیاتورتیلیس با هر دو مش، ۱۰ دقیقه بود. این نتایج همچنین نشان داد که فرایند جذب، یک فرایند سریع است، زیرا مقادیر غلظت‌های بالای مورد بررسی فنل در این پژوهش در ۱۰ دقیقه فرایند، جذب جاذب شد. با افزایش زمان تماس نمونه‌ها با جاذب، میزان حذف فنل افزایش یافت. نتایج اثر زمان تماس در شکل ۲ نشان داده شده است. این نتایج با یافته‌های برخی پژوهشگران مشابه و با برخی دیگر تفاوت دارد. سورش و همکاران جذب فنل و نیتروفنل را بر روی کربن گرانوله بررسی و

گونه‌های مختلف آنیونی و کاتیونی بر روی چنین جاذب‌هایی براساس رقابت جذب سطحی یون‌های H^+ و OH^- با ماده جذب‌شونده تعریف می‌شود. سطوح جذب، آنیون‌ها را در pH پایین و در حضور یون‌های H^+ بهتر جذب می‌کند در حالی که سطوح، با افزایش pH و حضور یون‌های OH^- برای جذب کاتیون‌ها فعال می‌شوند [۲۶ و ۲۷]. فنل یک اسید ضعیف است که در pH بالا مقدار جذب آن در رقابت با OH^- محیط اسیدی بازنده بوده و کاهش می‌یابد زیرا، سطوح مثبت جاذب، تمایل چندانی به جذب یون فلزی نواهند داشت و دلیل آن دفعه الکترواستاتیکی است. با افزایش میزان جذب، pH نهایی نمونه‌ها افزایش یافت که این به علت افزایش جذب سطحی یون $C_6H_5O^-$ فنل به سطوح دارای بار مثبت جاذب بود زیرا وقتی میزان جذب افزایش می‌یابد، فنل در رقابت با یون OH^- حاصل از آب برای خشک کردن یون H^+ برند شده، و حضور یون OH^- در محلول، pH را بالا می‌برد [۲۶ و ۲۷].

۲-۳-اثر در جاذب بر روی حذف فنل

تعیین دز بهینه جاذب به دلیل مسائل اقتصادی پارامتر دیگری است که باید در مطالعات جذب بهویژه در سیستم‌های با مقیاس بزرگ تعیین شود. نتایج این مرحله نشان داد که با افزایش جرم جاذب از ۱/۰ تا ۰/۲ گرم در لیتر، میزان حذف فنل از ۷۰ به ۹۰ درصد افزایش یافت. هر چند که با افزایش میزان جاذب، غلظت فنل باقیمانده در محیط کمتر می‌شود؛ اما محاسبات نشان داد که با افزایش دز جاذب، مقدار آلاینده جذب شده در واحد جرم جاذب کاهش می‌یابد به طوری که براساس این محاسبات، دز بهینه جاذب ۰/۲ گرم در لیتر تعیین و در بررسی سایر پارامترها استفاده شد. با وجود این که انتظار می‌رود افزایش دز جاذب منجر به افزایش نقاط سطحی فعال و افزایش جذب شود، اما نتایج مطالعات متعدد عکس این حالت را تأیید نمی‌کردند. علت این پدیده به دلیل غیراشباع ماندن برخی از نقاط فعال موجود در سطح جاذب است که منجر به کاهش میزان جذب در واحد جرم جاذب می‌شود [۲۶ و ۲۷].

کلیک و همکاران گزارش کردند که افزایش نیافتن جذب با افزایش دز جاذب به این دلیل است که در غلظت‌های بالاتر جاذب، رقابت آنیون فنل برای دستیابی به نقاط فعال سطحی و در نتیجه دانسیته جذب افزایش می‌یابد. از طرفی دزهای بالاتر جاذب در واحد حجم آب منجر به همپوشانی سطح جاذب و تجمع آن می‌شود. بنابراین برایند آنها باعث کاهش سطح کل در دسترس و کاهش میزان جذب آلاینده می‌شود زیرا تجمع جاذب‌ها باعث افزایش مسیر انتشار در طی مرحله انتشار آلاینده در سطوح قابل جذب جاذب می‌شود که نتیجه آن، کاهش میزان جذب خواهد بود [۲۰].

$$\log q = \log k + \frac{1}{n} \log C_e \quad (4)$$

که در این رابطه

q میزان رنگ جذب شده در واحد جرم جاذب بر حسب میلی گرم بر گرم، K و n ثابت فروندلیچ و C_e غلظت رنگ باقیمانده در محلول بعد از رسیدن به حالت تعادل بر حسب میلی گرم در لیتر است. رابطه خطی ایزووترم لانگمیر نیز مطابق رابطه ۵ است [۲۷]

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{b} + \frac{1}{abc} \quad (5)$$

که در این رابطه

b حداکثر ظرفیت جذب بر حسب میلی گرم بر گرم و a ثابت لانگمیر است. همچنین به منظور تعیین قابلیت مطلوب بودن فرایند جذب فنل بر روی جاذب پوسته غلاف گیاه آکاسیاتورتیلیس یک ثابت بدون بعد (R_L) به نام فاکتور جداسازی یا پارامتر تعادل از ایزووترم لانگمیر مشتق و مطابق با رابطه ۶ تعریف می شود که در این پژوهش ارزیابی شد

$$R_L = \frac{1}{(1+k_1 C_0)} \quad (6)$$

بررسی ضرایب همبستگی منحنی های این دو مدل جذب نشان می دهد که جذب فنل بر روی پوسته غلاف گیاه آکاسیاتورتیلیس با ایزووترم جذب فروندلیچ تطابق بهتری داشت. زمانی که $n/1$ برابر صفر باشد، نوع ایزووترم تغییر ناپذیر^۱، $n/1$ بین صفر و یک باشد، نوع ایزووترم مطلوب^۲ و $n/1$ کوچکتر از صفر باشد، نوع ایزووترم نامطلوب^۳ است [۳۰ و ۳۴]. در این پژوهش مقدار n به دست آمده (برای مش ۶۰-۱۰۰) برابر با $1/99$ و $n/1$ برابر با $1/5$ بود، از این رو جذب فنل توسط پوسته غلاف گیاه آکاسیاتورتیلیس با مدل ایزووترمی فروندلیچ تطابق بیشتری داشت. نتایج این مطالعه با نتایج رostستایی و همکاران همخوانی داشت و با مطالعات سریو استاو و همکاران متفاوت بود [۲۴ و ۳۳]. همچنین با توجه به R_L ، فرایند جذب می تواند برگشت ناپذیر (R_L برابر صفر)، مطلوب (R_L بین ۰ و ۱)، خطی (R_L برابر ۱) یا نامطلوب (R_L بزرگتر از ۱) باشد [۳۲ و ۳۳]. مقدار محاسبه شده R_L برای جذب فنل توسط جاذب حاصل شده از مواد زائد جامد کشاورزی همچون پوسته غلاف گیاه آکاسیاتورتیلیس، بین صفر و یک حاصل شد که نشان دهنده مطلوب بودن فرایند جذب فنل بر روی جاذب مورد بررسی بود. بر اساس نتایج این پژوهش و پژوهش های مشابه، نتیجه گیری می شود که

گزارش کردند که جذب فنل بر روی جاذب در مدت زمان ۲۰ دقیقه به تعادل رسید [۲۳]. علی و همکاران آژینات کلسیم را به عنوان بیوکاتالیست در حذف فنل بررسی و مدت زمان ۸۰ ساعت را به عنوان زمان تعادل گزارش کردند [۲۹]. تفاوت در نتایج این پژوهش در مقایسه با یافته های سایر پژوهشگران، احتمالاً به تفاوت ساختاری جاذب های مورد استفاده ارتباط دارد.

۵-۳- اثر غلظت فنل

ظرفیت تعادلی جذب جاذب در غلظت های متفاوتی از فنل بررسی شد. نتایج به دست آمده نشان داد که ظرفیت جذب جاذب با افزایش غلظت فنل افزایش می یابد، در حالی که بازده جذب فنل در همان زمان یک روند عکس را نشان داد. دلیل این پدیده آن است که با افزایش غلظت فنل، نیروی محرك انتقال جرم و بنابراین سرعت عبور مولکول های فنل از محلول به طرف لا یه مایع احاطه کننده جاذب و در نهایت به طرف سطح ذرات جاذب افزایش می یابد. از سوی دیگر درصد حذف فنل با افزایش غلظت اولیه آن کاهش می یابد [۲۵ و ۲۶]. افزایش غلظت اولیه فنل منجر به افزایش راندمان حذف و کاهش غلظت باقیمانده فنل می شود. این پدیده به این دلیل است که سطح جاذب دارای نقاط مشخصی برای جذب آلاند است که با افزایش غلظت فنل، نسبت سطح در دسترس به تعداد مول های آلاند است که باید جذب شوند، کمتر می شود. این پدیده منجر به کاهش راندمان و افزایش غلظت باقیمانده فنل در آب می شود [۲۶]. چنین نتایجی را کلیک و همکاران گزارش داده اند. این پژوهشگران گزارش کردند که با افزایش غلظت فنل، میزان جذب آن توسط کربن فعال حل شده از باقیمانده تنبکو، کاهش می یابد [۲۰]. همچنین ما و همکاران در حذف فنل با استفاده از ارگانوبنتونیت مصنوعی نیز به نتیجه مشابهی دست یافتند که علت آن را کاهش نسبت سطح جذب به مول آلاند قابل جذب، گزارش کردند [۱۱].

۶-۳- تعیین ایزووترم های جذب

در مطالعات مربوط به جذب آلاند، ها بر روی جاذب های مختلف، تعیین ایزووترم جذب و ظرفیت جاذب مورد استفاده از مهم ترین مشخصه هایی است که باید به آن توجه شود. تحلیل ایزووترم جذب به منظور توسعه یک رابطه، به منظور نمایش دقیق نتایج و برای مقاصد طراحی سیستم های جذب بسیار مهم است [۲۳]. تعیین ایزووترم جذب با استفاده از روابط عمومی ایزووترم فروندلیچ و لانگمیر بررسی شد. شکل خطی ایزووترم فروندلیچ به صورت رابطه ۴ است [۲۷]

¹ Irreversible

² Favourable

³ Unfavourable

جذب فنل با جاذب پوسته غلاف گیاه آکاسیا تورتیلیس با مدل فروندلیچ انطباق بیشتری داشت. نتایج آزمایش‌ها، قابلیت کاربرد این جاذب را برای حذف فنل اثبات کرد.

نمی‌توان یک مدل واحد برای جذب آلاینده‌ها توسط جاذب‌ها ارائه کرد و مدل جذب قابل ارائه، تابعی از نوع آلاینده و جاذب مورد استفاده است [۲۳].

۵- قدردانی

این پژوهش با حمایت مالی معاونت تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی زاهدان به انجام رسید. نویسنده‌گان بر خود لازم می‌دانند از رئیس محترم دانشگاه و مسئولان محترم پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی زاهدان و کارشناسان محترم آزمایشگاه دانشکده بهداشت زاهدان، قدردانی نمایند (شماره طرح: ۵۵۲۰).

۴- نتیجه‌گیری

در پژوهش حاضر، پوسته غلاف گیاه آکاسیا تورتیلیس به عنوان یک جاذب جایگزین جدید، در دسترس و ارزان قیمت در حذف فنل بررسی شد. مؤثرترین ظرفیت جذب فنل در pH ۷ بهینه برابر ۲، دز جاذب بهینه $2/0$ گرم در لیتر با مش ۶۰ تا ۱۰۰ و زمان تماس ۱۰ دقیقه به دست آمد. با افزایش غلظت فنل، راندمان حذف افزایش یافت. اما این سرعت حذف در غلظت‌های بالا، کمتر بود. همچنین

۶- منابع

1. Abdelwahab, O., Amin, N.K., and El-Ashtoukhy, E.S.Z. (2009). "Electrochemical removal of phenol from oil refinery wastewater." *J. of Hazardous Materials*, 163(2-3), 711-716.
2. Shen, S., Chang, Z., and Liu, H. (2006). "Three-liquid-phase extraction systems for separation of phenol and p-nitrophenol from wastewater." *J. of Separation and Purification Technology*, 49(3), 217-222.
3. Adak, A., and Pal, A., (2006). "Removal of phenol from aquatic environment by SDS-modified alumina: Batch and fixed bed studies." *J. of Separation and Purification Technology*, 50(2), 256-262.
4. Adak, A., Pal, A., and Bandyopadhyay, M. (2006). "Removal of phenol from water environment by surfactant-modified alumina through adsolubilization." *J. of Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 277(1-3), 63-68.
5. Bi, X.-Y., Wang, P., Jiang, H., Xu, H.Y., Shi, J., and Huang, J. I. (2007). "Treatment of phenol wastewater by microwave-induced $\text{ClO}_2\text{-CuOx/Al}_2\text{O}_3$ catalytic oxidation process." *J. of Environmental Sciences*, 19(12), 1510-1515.
6. Chen, S., U, P., Change, Q., Lu, G. Q. M., Hao, Z. P., and Liu, S. (2009). "Studies on adsorption of phenol and 4-nitrophenol on MgAl-mixed oxide derived from MgAl-layered double hydroxide." *J. of Separation and Purification Technology*, 67(2), 194-200.
7. Gondal, M.A., Sayeed, M.N., and Seddig, Z. (2008). "Laser enhanced photo-catalytic removal of phenol from water using p-type NiO semiconductor catalyst." *J. of Hazardous Materials*, 155(1-2), 83-89.
8. Hayat, K., Gondalal, M.A., Khaled, M. M., Ahmed, S., and Shemsi, A.S. (2011). "Nano ZnO synthesis by modified sol gel method and its application in heterogeneous photocatalytic removal of phenol from water." *Applied Catalysis A: General*, 393(1-2), 122-129.
9. Kujawski, W., Warsszawski, A., Ratajczak, W., Parbski, T., Capal, W., and Ostrowska, I. (2004). "Removal of phenol from wastewater by different separation techniques." *J. of Desalination*, 163(1-3), 287-296.
10. Kujawski, W., Warsszawski, A., Ratajczak, W., Parbski, T., Capal, W., and Ostrowska, I. (2004). "Application of pervaporation and adsorption to the phenol removal from wastewater." *J. of Separation and Purification Technology*, 40(2), 123-132.
11. Ma, J., and Zhu, L. (2007). "Removal of phenols from water accompanied with synthesis of organobentonite in one-step process." *J. of Chemosphere*, 68(1), 1883-1888.
12. Marotta, E., Marotta, E., Ceriani, E., Schiorlin, M., Ceretta, C., and Paradisi, C. (2012). "Comparison of the rates of phenol advanced oxidation in deionized and tap water within a dielectric barrier discharge reactor." *J. of Water Research*, 46(19), 6239-6246.
13. Praveen, P., and Loh, K.C. (2013). "Trioctylphosphine oxide-impregnated hollow fiber membranes for removal of phenol from wastewater." *J. of Membrane Science*, 437, 1-6.
14. Senel, S., Kara, A., Alsancak, G., and Denizli, A. (2006). "Removal of phenol and chlorophenols from water with reusable dye-affinity hollow fibers." *J. of Hazardous Materials*, 138(2), 317-324.

15. Tilaki, R.D. (2009). "Effect of assimilable substrate and plant density on removal of phenol from water by Lemna minor." *J. of Toxicology Letters*, 189, 206-206
16. Xu, J.Q., Duan, W.H., Zhou, X. Z., and Zhou, J. Z. (2006). "Extraction of phenol in wastewater with annular centrifugal contactors." *J. of Hazardous Materials*, 131(1-3), 98-102.
17. Turhan, K., and Uzman, S. (2008). "Removal of phenol from water using ozone." *J. of Desalination*, 229(1-3), 257-263.
18. Tor, A., Cengeloglu, Y., Aydin, M.E., and Ersoz, M. (2006). "Removal of phenol from aqueous phase by using neutralized red mud." *J. of Colloid and Interface Science*, 300(2), 498-503.
19. Kamble, S.P., Mangrulaka, P.A., Banswal, A. K., and Rayalu, S.S. (2008). "Adsorption of phenol and o-chlorophenol on surface altered fly ash based molecular sieves." *Chemical Engineering Journal*, 138(1-3), 73-83.
20. Kilic, M., Apaydin-Varol, E., and Putun, A.E. (2011). "Adsorptive removal of phenol from aqueous solutions on activated carbon prepared from tobacco residues: Equilibrium, kinetics and thermodynamics." *J. of Hazardous Materials*, 189(1-2), 397-403.
21. Wiliam, E., Cooper, Jr., and Martin, J.W. (2000). "Islands in a sea of sand: Use of Acacia tree by tree skinks in the Kalahari Desert." *J. of Arid Environments*, 44, 373-381.
22. Sher, A.A., Wiegand, K., and Ward, D. (2001). "Do acacia and tamarix trees compete for water in the negev desert?." *J. of Arid Environments*, 74, 338-343.
23. Suresh, S., Srivastava, V.C., and Mishra, I.M. (2011). "Adsorptive removal of phenol from binary aqueous solution with aniline and 4-nitrophenol by granular activated carbon." *Chemical Engineering Journal*, 171(3), 997-1003.
24. Srivastava, V.C., Swamy, M.M., Mall, I.D., Prasad, B., and Mishra, I.M. (2006). "Adsorptive removal of phenol by bagasse fly ash and activated carbon: Equilibrium, kinetics and thermodynamics." *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 272(1-2), 89-104.
25. Saitoh, T., Asano, K., and Hiraide, M. (2011). "Removal of phenols in water using chitosan-conjugated thermo-responsive polymers." *J. of Hazardous Materials*, 85(2-3), 1369-1373.
26. El-Naas, M.H., Al-Zuhair, S., and Alhaija, M.A. (2010). "Removal of phenol from petroleum refinery wastewater through adsorption on date-pit activated carbon." *Chemical Engineering Journal*, 162(3), 997-1005.
27. Nayak, P.S., and Singh, B.K. (2007). "Removal of phenol from aqueous solutions by sorption on low cost clay." *J. of Desalination*, 207(1-3) 71-79.
28. Kuleyin, A. (2007). "Removal of phenol and 4-chlorophenol by surfactant-modified natural zeolite." *J. of Hazardous Materials*, 144(2-1), 307-315.
29. Ali, O., Namane, A., and Hellal, A. (2013). "Use and recycling of Ca-alginate biocatalyst for removal of phenol from wastewater." *J. of Industrial and Engineering Chemistry*, 19(4), 1384-1390.
30. Lin, S.H., and Juang, R.S. (2009). "Adsorption of phenol and its derivatives from water using synthetic resins and low-cost natural adsorbents: A review." *J. of Environmental Management*, 90(3), 1336-1349.
31. Khattri, S.D., and Singh, M.K. (2009). "Removal of malachite green from dye wastewater using neem sawdust by adsorption." *J. of Hazardous Materials*, 167(1-3), 1089-1094.
32. Santhi, T., Manonmani, S., Vasantha, V.S., and Chang Y.T. (2011). "A new alternative adsorbent for the removal of cationic dyes from aqueous solution." *Arabian J. of Chemistry*, DOI : 10. 1016/j. arabic. 2011.06.004.
33. Roostaei, N., and Tezel, F.H. (2004). "Removal of phenol from aqueous solutions by adsorption." *J. of Environmental Management*, 70(2), 157-164.
34. Huang, J., Wang, X., Jin, Q., Liu, Y., and Wang, Y. (2007). "Removal of phenol from aqueous solution by adsorption onto OTMAC-modified attapulgite." *J. of Environmental Management*, 84(2), 229-236.