



## بررسی کارایی پوسته تخم مرغ به عنوان جاذب طبیعی در حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از محلولهای آبی

نویسندگان: محمد تقی قانعیان\* محمد حسن احرامپوش\*\* قادر غنی زاده\*\*\* سید مجتبی ممتاز\*\*\*\*

\*استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد، ایران

\*\*دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد، ایران

\*\*\* نویسنده مسئول: استادیار گروه بهداشت محیط، مرکز تحقیقات بهداشت و دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی بقیه ا... (عج)، تهران تلفن: ۸۲۴۸۲۴۸۷-۰۲۱ شماره: ۰۲۱-۸۸۶۰۰۰۶۲ qanizadeh@BMSU.ac.ir

\*\*\*\* دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد، ایران

### چکیده

**سابقه و اهداف:** ترکیبات رنگی یکی از بحرانی ترین آلاینده ها برای اکوسیستم های طبیعی هستند. تخلیه فاضلاب های رنگی حاصل از عملکرد صنایع نساجی به آب های پذیرنده، منجر به کاهش نفوذ نور خورشید، بروز پدیده اتروفیکاسیون و تداخل در اکولوژی آبهای پذیرنده شده، که ضمن اثر بر شدت فتوسنتز گیاهان آبرزی و جلبک ها در محیط های آبی، باعث آسیب به محیط زیست می شود. هدف این مطالعه حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از محلولهای آبی با استفاده از پوسته تخم مرغ و بررسی تأثیر پارامترهای غلظت اولیه رنگ، جرم جاذب زمان واکنش و pH بر فرایند جذب می باشد. **روش بررسی:** این مطالعه به صورت تجربی و در مقیاس آزمایشگاهی انجام شد. جاذب مورد نظر در شرایط آزمایشگاهی تهیه و با استفاده از الک های استاندارد دانه بندی شد. خصوصیات سطحی پوسته تخم مرغ با استفاده از میکروسکوپ الکترونی مجهز به EDX و سطح ویژه آن با تکنیک جذب گاز ازت و با استفاده از ایزوترم BET تعیین گردید. طول موج حداکثر جذب رنگ ( $\lambda_{max}$ ) با استفاده از اسپکتروفتومتر UV/vis تعیین شد. هر کدام از مراحل مختلف آزمایشات بصورت سه بار تکرار انجام گرفته است.

**یافته ها:** طول موج حداکثر جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ با رسم طیف جذب در حد ۵۱۸ نانومتر تعیین گردید. مهمترین اجزاء پوسته تخم مرغ ترکیبات کلسیمی با سطح ویژه  $1/2 \text{ m}^2/\text{g}$  می باشد. افزایش دوز جاذب از ۲ به ۳ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر و افزایش pH از ۴ به ۱۰ منجر به افزایش راندمان جذب به ترتیب از ۸۰٪ به ۹۲٪ و از ۴۴٪ به ۶۴٪ شد. نتایج نشان داد افزایش غلظت اولیه رنگ از ۱۰ به ۱۰۰ میلی گرم در لیتر باعث کاهش راندمان جذب از ۷۲٪ به ۲۳٪ گردید. سنتیک جذب رنگ مورد نظر از واکنش درجه دوم تبعیت می کند ( $R^2 = 0/995$ ).

**نتیجه گیری:** نتایج مطالعه نشان داد که افزایش دوز جاذب به علت بالا بردن جایگاه های جذب موجب افزایش راندمان حذف شده است. افزایش غلظت اولیه رنگ به دلیل بالا بردن غلظت آلاینده نسبت به جایگاه های جذب ثابت موجب کاهش راندمان حذف شده است.

**واژه های کلیدی:** جذب سطحی، پوسته تخم مرغ، رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸، جاذب طبیعی

## طلوع بهداشت

فصلنامه علمی پژوهشی

دانشکده بهداشت یزد

سال دهم

شماره: اول

بهار ۱۳۹۰

شماره مسلسل: ۳۱

تاریخ وصول: ۱۳۹۰/۲/۱۶

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۰/۳/۲۹



## مقدمه

رنگ ها گروهی از مواد آلی پیچیده هستند که در نتیجه مراحل مختلف نظیر رنگرزی و تکمیل در صنعت نساجی به محیط زیست وارد می شوند، این مواد براساس کاربردشان به انواع وات، راکتیو، دایرکت، کاتیونی، اسیدی و دیسپرس تقسیم می گردند (۱-۲). صنایع نساجی بعلاوه تنوع رنگ مصرفی و روشهای تولید، پسابهایی با کمیت و کیفیت شیمیائی متفاوت، تولید می کنند. در این صنایع مقادیر زیادی از فاضلاب های بسیار رنگی تولید شده که معمولاً سمی، مقاوم به تجزیه بیولوژیک و پایدار در محیط زیست می باشد و لذا روش های بیولوژیکی متداول برای حذف اغلب رنگ های سنتتیک، به دلیل ساختار حلقوی پیچیده و ماهیت مقاوم رنگ، مؤثر نیستند (۳-۴). مطالعات نشان داده است که فاضلاب های نساجی دارای نسبت BOD به COD پایین (معمولاً کمتر از ۰/۱) بوده که ناشی از ماهیت غیر قابل تجزیه بیولوژیک رنگ ها است (۵). تخلیه فاضلاب های رنگی حاصل از عملکرد صنایع نساجی به آب های پذیرنده، منجر به کاهش نفوذ نور خورشید، بروز پدیده اتروفیکاسیون و تداخل در اکولوژی آبهای پذیرنده شده، که ضمن اثر بر شدت فتوسنتز گیاهان آبی و جلبک ها در محیط های آبی، باعث آسیب به محیط زیست می شود (۶-۸).

لذا مدیریت فاضلاب های حاوی رنگ های راکتیو از دیدگاه زیست محیطی حائز اهمیت است. رنگ های راکتیو سولفوناته و بسیار محلول در آب بوده، جذب آنها بر روی توده های بیولوژیکی ضعیف است و تحت شرایط هوایی تجزیه نمی

شوند (۹،۱۰). به دلیل قابلیت تجزیه بیولوژیک کم رنگ های مصنوعی، سیستم های متداول تصفیه بیولوژیک فاضلاب دارای کارایی مناسبی در حذف رنگ نمی باشند. به همین دلیل معمولاً از فرآیندها و روشهای متداول فیزیکی و شیمیایی نظیر انعقاد-لخته سازی، شناورسازی، فیلتراسیون غشایی، تجزیه الکتروشیمیایی، پرتودهی، رسوبدهی، ازن زنی، استفاده از امواج ماوراء صوت، احیاء شیمیایی، جذب سطحی بصورت مجزا و یا توأم با فرآیندهای بیولوژیکی جهت حذف رنگ از فاضلاب صنعت نساجی استفاده می شود (۱۱-۱۲). جذب سطحی یکی از روش های کارآمد در حذف رنگ از فاضلاب های نساجی است که در آن از جاذب های متعدد نظیر کربن فعال، الیاف خرما، خاک اره، سبوس جو، پوسته برنج و کیتوزان استفاده گردیده است (۱۳-۱۴). با توجه به هزینه بالای تهیه کربن فعال و مشکلات مرتبط با احیاء جاذب های اشباع شده، در سال های اخیر کاربرد جاذب های ارزان قیمت توسعه یافته است. پوسته تخم مرغ از جمله این مواد ارزان است که دارای ساختار کلسیم هیدروکسی آپاتیت بوده و به دلیل ساختار حفره ای می تواند به عنوان یک جاذب مناسب جهت حذف آلاینده های زیست محیطی مورد استفاده قرار گیرد (۱۵-۱۶).

بررسی های انجام شده توسط چوناکا (سال ۲۰۰۵) در زمینه جذب کرم ۳ ظرفیتی بر روی ذرات خرد شده پوسته تخم مرغ نشان داد که این ماده در مقایسه با سایر جاذب ها دارای ظرفیت جذب بالایی است. ویجاپاراگاوان و همکارانش (سال ۲۰۰۵) و اوتون و همکارانش (سال ۲۰۰۶) نیز کاربرد پوسته تخم مرغ را



به عنوان جاذب جهت حذف مس، سرب، نیکل و کادمیوم از محلول های آبی گزارش کرده اند (۱۴). در مطالعه انجام شده توسط آرامی و همکارانش (۲۰۰۶) از غشاء پوسته تخم مرغ به عنوان جاذب برای حذف رنگ دایرکت قرمز ۸۰ و اسیدی آبی ۲۵ استفاده گردید. نتایج این بررسی نشان داد که غشاء پوسته تخم مرغ جاذبی مؤثر در حذف رنگ از محلول های آبی است (۱۷). رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از نظر ساختار جزء رنگ های منو آزو است که در حال حاضر در صنایع نساجی داخل کشور کاربرد بسیار گسترده ای دارد. با توجه به حجم بالای تولید فاضلابهای رنگی در کشور و اثرات سوء آنها، توسعه راهکارهای علمی مناسب برای تصفیه چنین فاضلابهایی ضروری است. در این راستا مطالعه حاضر با هدف امکان کاربرد پوسته تخم مرغ در حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از فاضلاب سنتتیک انجام شده است.

**روش بررسی**

رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ مورد استفاده در این تحقیق محصول شرکت دای استار و سایر مواد شیمیایی مورد استفاده در انجام آزمایشات محصول شرکت مرک آلمان بوده است. ویژگی های رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ مورد استفاده در جدول ۱ ارائه شده است (۱۸، ۱۹).

این مطالعه یک پژوهش کاربردی است که به صورت تجربی و در مقیاس آزمایشگاهی در آزمایشگاه شیمی دانشگاه علوم پزشکی شهید صدوقی یزد انجام گرفت. در این تحقیق از پوسته تخم مرغ به عنوان جاذب طبیعی استفاده گردید. برای آماده

سازی جاذب ابتدا پوسته تخم مرغ با آب مقطر شسته شده و در دمای آزمایشگاه (۲۵-۲۰ °C) خشک گردید. جهت خرد کردن پوسته های تخم مرغ از آسیاب برقی با تناوب های زمانی ۱۵ ثانیه و جهت دانه بندی اجزاء خرد شده از الکهای استاندارد ASTM استفاده شد (۲۰). اندازه موثر (D<sub>10</sub>) ، D<sub>60</sub> و ضریب یکنواختی (UC) جاذب مورد استفاده به ترتیب ۳ میلی متر، ۵/۱ میلی متر و ۱/۷ بود. مطالعه به صورت منقطع (ارلن های حاوی ۱۰۰ میلی لیتر نمونه) بر روی محلول آبی حاوی غلظت های ۱۰، ۲۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ انجام شد. در این مطالعه تأثیر جرم جاذب، غلظت اولیه رنگ، pH و زمان واکنش در راندمان حذف رنگ بررسی گردید. جهت اختلاط و تماس مناسب جاذب و رنگ از شیکر اریتالی (GFL 137) با سرعت ۸۰ دور در دقیقه استفاده گردید. جداسازی ذرات جاذب از محلول فاضلاب سنتتیک با استفاده از سانتریفوژ (Eppendorf 5810 R) با سرعت ۳۰۰۰ دور در دقیقه و زمان ۵ دقیقه انجام شد. جهت کنترل خطای ناشی از سانتریفوژ در جداسازی احتمالی رنگ از یک نمونه شاهد نیز استفاده گردید.

با توجه به اینکه در منابع مختلف طول موج حداکثر جذب ( $\lambda_{max}$ ) متفاوتی برای رنگ مورد نظر ارائه شده است، ابتدا طیف جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ تهیه و براساس آن طول موج حداکثر جذب برای رنگ مورد مطالعه (۵۱۸ nm) تعیین شد. در این تحقیق سنجش غلظت رنگ با استفاده از منحنی استاندارد تهیه شده (با غلظت های ۵، ۱۰، ۲۵، ۵۰ و ۷۵



تصادفی و با سه بار تکرار آزمون شده و نتایج ارائه شده بر اساس میانگین این تکرارها می باشد. خصوصیات ظاهری پوسته تخم مرغ با استفاده از میکروسکوپ الکترونی مجهز به EDX (Pilips XL۳۰) و میزان سطح ویژه ذرات به روش BET و BJH تعیین شد (۲۳).

میلی گرم در لیتر) با استفاده از اسپکتروفتومتر (UV/Vis مدل Optima SP-3000 Plus، ژاپن) انجام شد. برای تعیین غلظت های مجهول رنگ از این منحنی و معادله بهترین خط برازش با ضریب همبستگی مناسب ( $R^2 = 0.997$ ) استفاده شد (۲۲-۲۱). در این مطالعه نمونه های انتخاب شده جهت آنالیز رنگ و بررسی تأثیر سایر فاکتورهای مورد نظر در مطالعه به صورت

### جدول ۱: مشخصات رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸

ساختار شیمیایی	
منوآزو	نوع رنگ
$C_{27}H_{18}ClN_7Na_4O_{15}S_5$	فرمول شیمیایی
۹۶۷/۵	وزن مولکولی (g/mol)

### یافته ها

لیتر و مدت زمان واکنش جذب ۲۴ ساعت بوده است. بر این اساس جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ بر روی پوسته تخم مرغ به عنوان تابعی از جرم جاذب در شکل ۱ ارائه شده است.

### جدول ۲: اجزاء تشکیل دهنده و خصوصیات سطحی پوسته تخم مرغ

مقدار	جزء / مشخصه
۶۱/۵ درصد	کلسیم
۱/۹۴ درصد	منیزیم
۲۸/۳۴ درصد	فسفر
۸/۲ درصد	گوگرد
۲/۱ مترمربع بر گرم	سطح ویژه (BET)

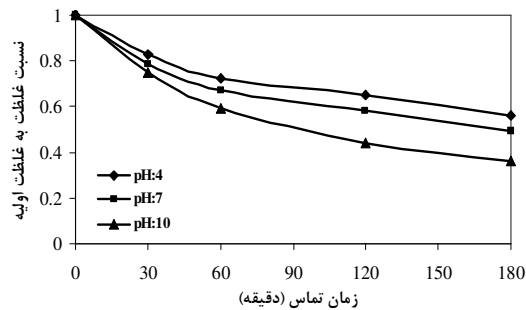
مطابق شکل ۱ با افزایش جرم جاذب حذف رنگ افزایش یافته، بطوری که برای جرم های جاذب ۲ و ۳ گرم، غلظت باقیمانده رنگ (راندمان حذف رنگ) به ترتیب ۵ میلی گرم در لیتر

تعیین ساختار جاذب مورد استفاده با تکنیکهای متداول از مهمترین مسائلی است که در مطالعات جذب بایستی مورد توجه قرار گیرد. بر اساس جدول ۲ مهمترین اجزاء تشکیل دهنده پوسته تخم مرغ سه عنصر کلسیم، فسفر و گوگرد است که به ترتیب ۶۱/۵، ۲۸/۳۴ و ۸/۲ درصد از پوسته تخم مرغ را تشکیل می دهند. بررسی ساختار پوسته تخم مرغ موید آن است که قسمت عمده ساختار این ماده از ترکیبات کلسیمی تشکیل شده است.

در مرحله تعیین اثر جرم جاذب غلظت اولیه رنگ در نمونه فاضلاب مصنوعی ۲۵ میلی گرم در لیتر، جرم جاذب ۰/۵ تا ۳ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر، pH = ۷، حجم محلول رنگی ۱۰۰ میلی



مرحله، راندمان حذف رنگ برای pH ۴، ۷ و ۱۰ پس از مدت زمان ۳ ساعت به ترتیب ۴۴، ۵۱ و ۶۴ درصد بوده است.

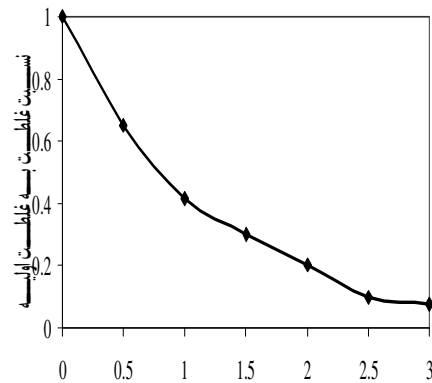


شکل ۲: تأثیر pH بر جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ (غلظت اولیه رنگ ۲۵ میلی گرم در لیتر و جرم جاذب ۲/۵ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر)

به منظور تعیین درجه واکنش جذب رنگ مورد نظر نمودار معکوس غلظت در برابر زمان برای فاضلاب با pH ۱۰ و شرایط فوق رسم گردید (شکل ۳). بر اساس نتایج، سینتیک جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ در حضور پوسته تخم مرغ یک واکنش درجه دوم است.

جهت بررسی تأثیر غلظت اولیه رنگ در راندمان حذف، تأثیر غلظتهای ۱۰، ۲۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر رنگ مورد بررسی قرار گرفت. با توجه به اینکه جذب رنگ در pH ۱۰ دارای بیشترین کارایی بوده، بنابراین در این مرحله جرم جاذب ۲/۵ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر و pH محیط واکنش ۱۰ بوده که نتایج آن در شکل ۴ ارائه شده است. نتایج این مرحله نشان داد که راندمان حذف رنگ با افزایش غلظت اولیه رنگ، کاهش و با افزایش زمان تماس راندمان جذب رنگ، افزایش می یابد. با توجه به شکل ۴ بیشترین میزان جذب در طی ۶۰ دقیقه اول واکنش انجام شده و میزان رنگ

(۸۰ درصد) و ۱/۹ میلی گرم در لیتر (۹۲/۱ درصد) بوده است. این پدیده با افزایش سطح قابل دسترس برای جذب آلاینده مرتبط می باشد. با توجه به نتایج این مرحله از تحقیق، جرم بهینه جاذب ۲/۵ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر تعیین گردید.



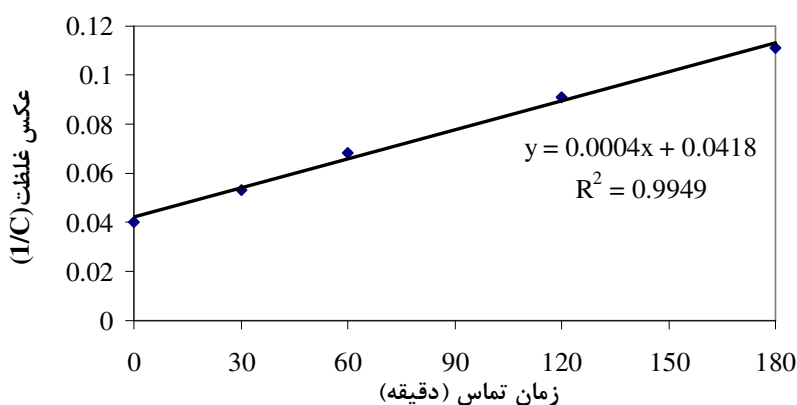
شکل ۱: تأثیر دوز جاذب در حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ (غلظت اولیه رنگ ۲۵ میلی گرم در لیتر و pH: ۷)

pH محیط واکنش از مهمترین فاکتورهایی است که باعث یونیزاسیون آلاینده ها و بار سطحی جاذب شده و در مطالعه فرآیندهای جذب بایستی مورد توجه قرار گیرد. در این مرحله غلظت اولیه رنگ در نمونه فاضلاب مصنوعی ۲۵ میلی گرم در لیتر، جرم جاذب ۲/۵ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر و حجم محلول رنگی ۱۰۰ میلی لیتر بوده است. بر این اساس جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ بر روی پوسته تخم مرغ در pH ۴، ۷ و ۱۰ در طی مدت ۳ ساعت در شکل ۲ ارائه شده است. مطابق شکل ۴ با افزایش pH و قلیایی شدن محیط واکنش راندمان جذب رنگ افزایش می یابد که این افزایش احتمالاً به تغییر بار الکتریکی سطح جاذب که تابعی از pH محیط است مرتبط می باشد. بر اساس نتایج حاصل از این

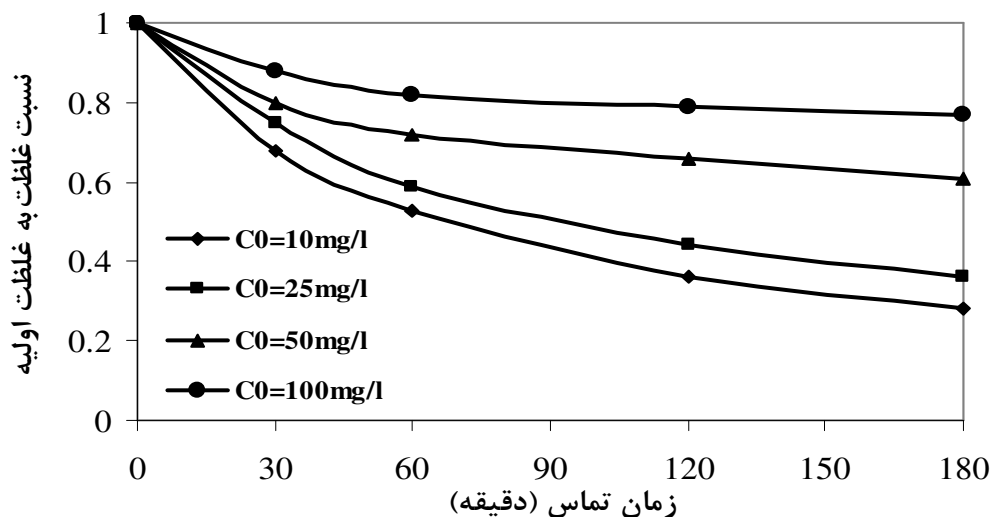


بیشتر در سطوح داخلی جاذب می گردد با تأخیر اتفاق می افتد. مطابق شکل ۴، راندمان حذف رنگ طی زمان ۳ ساعت برای فاضلاب مصنوعی با غلظت ۱۰، ۲۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر به ترتیب ۷۲، ۶۴، ۳۹ و ۲۳ درصد بوده است.

جذب شده در واحد جرم جاذب با افزایش غلظت اولیه رنگ از ۱۰ به ۱۰۰ میلی گرم در لیتر افزایش یافته است. این نتایج نشان می دهد که در جذب این رنگ پخش در لایه نازک که اولین مرحله جذب است سریع تر اتفاق می افتد اما نفوذ در خلل و فرج به عنوان یک مرحله بعدی فرآیند جذب که منجر به افزایش جذب



شکل ۳: نمودار واکنش درجه دوم ( غلظت اولیه رنگ ۲۵ میلی گرم در لیتر، جرم جاذب ۲/۵ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر و pH:۱۰)



شکل ۴: اثر غلظت اولیه رنگ در حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ (جرم جاذب ۲/۵ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر و pH:۱۰)

**بحث و نتیجه گیری**

بر اساس نتایج حاصله از این مطالعه می توان چنین نتیجه گیری کرد که ترکیبات کلسیمی مهمترین اجزاء تشکیل دهنده ساختار جاذب پوسته تخم مرغ می باشد. مقایسه این نتایج با یافته های سایر محققین نیز مطابقت دارد. زیرا در مطالعات انجام شده توسط دنگ و همکارانش در سال ۲۰۰۷ مهمترین جزء تشکیل دهنده پوسته تخم مرغ ترکیبات کلسیمی تعیین شده است. این محققین به این نتیجه رسیدند که حدود ۹۰ درصد ساختار پوسته تخم مرغ از کربنات کلسیم تشکیل شده است (۱۵). سطح ویژه و حجم خلل و فرج از مشخصه های دیگری است که میزان جذب آلاینده توسط جاذب ها را تحت تأثیر قرار می دهد. بر اساس نتایج ارائه شده در جدول ۱ سطح ویژه پوسته تخم مرغ با مدل های بررسی شده معادل ۱/۲ متر مربع در هر گرم می باشد که نشان دهنده سطح کمتر این جاذب نسبت به سایر جاذب های طبیعی نظیر خاکستر استخوان می باشد (۲۴). مطالعات انجام شده توسط Tsai و همکارانش در سال ۲۰۰۶ نیز موید این نتایج می باشد (۱۶). این محققین سطح ویژه و حجم خلل و فرج پوسته تخم مرغ را به ترتیب در حدود  $1/02 \text{ m}^2/\text{g}$  و  $0/065 \text{ cm}^3/\text{g}$  گزارش کرده اند این محققین در مطالعه دیگری در سال ۲۰۰۸ گزارش کرده اند که اندازه پوسته تخم مرغ در میزان سطح ویژه قابل دسترس بسیار موثر می باشد و گزارش کرده اند که سطح ویژه پوسته پودری شکل در حد  $21 \text{ m}^2/\text{g}$  است (۱۴). هر چند بر اساس یافته های این محققین استفاده از شکل پودری پوسته تخم مرغ سطح ویژه زیادی را تأمین می کند اما در فرآیند جذب با توجه به اینکه ذرات کوچک جاذب تمایل به تجمع و همپوشانی

دارند چنین شرایطی ممکن است منجر به کاهش سطح قابل دسترس برای جذب آلاینده گردد که برآیند نتایج، تفاوتی با استفاده از فرم غیر پودری نخواهد داشت.

بررسی اثر جرم جاذب و تعیین جرم بهینه جاذب های مورد استفاده در فرایندهای جذب یکی از مهمترین مسائلی است که باید مورد توجه قرار گیرد. هر چند بر اساس یافته های این مطالعه میزان جذب آلاینده با افزایش میزان جاذب افزایش یافته است اما بررسی دقیق تر نتایج مطالعه نشان می دهد که با افزایش جرم جاذب میزان رنگ جذب شده در واحد جرم جاذب کاهش یافته است. علت چنین پدیده ای به عدم اشباع شدن نقاط فعال در جذب آلاینده ارتباط دارد. به طوریکه با افزایش جرم جاذب ظرفیت کل نقاط فعال موجود در سطح جاذب به طور کامل مورد استفاده قرار نگرفته و همین امر منجر به کاهش میزان جذب در واحد جرم جاذب می گردد. نتایج مشابهی توسط سولک و همکارانش نیز تأیید شده است (۲۵). زهنگ و همکارانش در سال ۲۰۰۷ جذب مس (II) و کادمیوم (II) را بر روی هیدروکسی آپاتیت استخراج شده از پوسته تخم مرغ بررسی کرده و گزارش کرده اند که با افزایش نسبت جرم جاذب به حجم مایع از نسبت ۱:۱ به نسبت ۵:۱ در حجم ۲۰۰ میلی لیتر از محلول حاوی آلاینده های فوق میزان جذب مس و کادمیوم از ۷۵ درصد به ۹۷ درصد افزایش می یابد. این محققین علت چنین پدیده ای را به افزایش سطح فعال یا سطح در دسترس برای جذب عنوان کرده اند که با یافته های این پژوهش مطابقت دارد (۱۸). نتایج مشابهی در سال ۲۰۰۹ توسط غنی زاده و عسگری نیز گزارش شده است. این محققین در مطالعه حذف



جاذب جهت حذف کادمیوم و مس از محلول های آبی استفاده کردند، نشان داد که با افزایش pH از ۲ به ۶، راندمان حذف این فلزات افزایش یافته ولی در مقادیر pH بالاتر از ۶، راندمان جذب کاهش می یابد (۱۸).

تغییرات غلظت اولیه آلاینده های جذب شونده از عوامل دیگری است که میزان جذب را در این سیستم ها تحت تأثیر قرار می دهد. بر اساس یافته های این مطالعه میزان رنگ جذب شده در واحد جرم جاذب با افزایش غلظت اولیه رنگ از ۱۰ به ۱۰۰ میلی گرم در لیتر افزایش می یابد (شکل ۴).

این نتایج نشان می دهد میزان جذب رنگ در واحد جرم جاذب تابعی از غلظت اولیه رنگ است به طوریکه میزان جذب در واحد جرم جاذب در غلظت های بالاتر بیشتر می باشد. چنین نتایجی توسط عسگری و غنی زاده در سال ۲۰۰۹ و Mehmet و همکارانش در سال ۲۰۰۴ تایید شده است. علت افزایش میزان جذب در غلظت های بالاتر به این دلیل است که در چنین شرایطی نیروی انتقال جرم افزایش یافته و همین پدیده بر نیروی مقاومت کننده در برابر جذب غلبه کرده و باعث ایجاد نیروی رانش قابل توجهی جهت انتقال آلاینده از فاز مایع به سطح مشترک جاذب- مایع شده و در نتیجه باعث افزایش میزان جذب در واحد جرم جاذب می گردد (۲۴، ۲۶). اگر این مسئله را از نقطه نظر راندمان رنگ حذف شده مورد بررسی قرار دهیم نتایج نشان می دهد که با افزایش غلظت اولیه رنگ راندمان حذف رنگ کاهش می یابد. نتایج مشابهی توسط Yeddou Mezenner و Bensmaili در سال ۲۰۰۹ گزارش شده است. این محققین گزارش کرده اند که در فرآیند جذب فسفر بر روی زائدات پوسته تخم مرغ با افزایش

رنگ متیلن بلو با استفاده از خاکستر استخوان به این نتیجه رسیدند که با افزایش جرم جاذب میزان آلاینده جذب شده در واحد جرم جاذب کاهش می یابد (۲۴).

عوامل محیطی نظیر pH و درجه حرارت فاکتورهای دیگری هستند که میزان و سرعت جذب آلاینده ها را توسط جاذبهای مختلف تحت تأثیر قرار می دهند. pH محیط واکنش یکی از مهمترین عواملی است که با تأثیر بر بار سطحی جاذب، راندمان فرآیند را تحت تأثیر قرار می دهد. براساس نتایج مطالعه حاضر، میزان رنگ جذب شده در واحد جرم جاذب با افزایش pH محیط از ۴ به ۱۰ افزایش یافته است.

این پدیده به  $pH_{zpc}$  جاذب استفاده شده بستگی دارد و با توجه به نتایج آزمایشات این مطالعه می توان نتیجه گیری کرد که پوسته تخم مرغ از جمله جاذبهایی است که  $pH_{zpc}$  آن در محدوده کمتر از ۷ می باشد. این امر سبب می گردد در دامنه pH پایین سطح جاذب توسط عوامل کربوکسیلیک حاوی پروتون احاطه شود که این امر مانع از جذب رنگهای راکتیو در سطح جاذب می گردد (۱۹). اونگ و همکارانش در سال ۲۰۰۷ از سبوس برنج اصلاح شده با اتیلن دی آمین به عنوان جاذب جهت حذف رنگ بازی آبی ۳ و راکتیو نارنجی ۱۶ استفاده کردند.

این محققین نیز گزارش کردند با افزایش pH راندمان حذف رنگ بازی آبی ۳ افزایش و راندمان حذف رنگ راکتیو نارنجی ۱۶، کاهش یافته است که این نتایج به تغییرات ماهیت آلاینده و بار سطحی جاذب در شرایط مختلف pH بستگی دارد (۱۳). نتایج مطالعه انجام شده توسط زهنگ و همکارانش در ۲۰۰۷ که از کربنات هیدروکسی آپاتیت سنتز شده از پوسته تخم مرغ به عنوان





دارای pH قلیایی می باشد، عملکرد خوب پوسته تخم مرغ در چنین شرایطی از مهمترین نکاتی است که می تواند کاربرد این جاذب در حذف رنگ از نمونه فاضلابهای واقعی صنایع نساجی را مورد توجه قرار دهد.

بر این اساس و با توجه به پتانسیل دسترسی به این جاذب طبیعی لازم است عملکرد این جاذب در حذف آلاینده های دیگر نظیر رنگهای مختلف، فلزات سنگین و ... مورد بررسی قرار گیرد. از طرفی با توجه به هزینه بالای جاذب های سنتتیک که در برخی موارد عدم دسترسی آنها به دلیل وابستگی خارجی سبب مشکلات زیادی می گردد، اهمیت توجه به توسعه و کاربرد چنین جاذب هایی را ضروری می نماید.

### تشکر و قدردانی

نویسندگان مقاله بر خود لازم می دانند از همکاری کارشناسان محترم آزمایشگاه آب و فاضلاب دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد تشکر و قدردانی کنند.

### References

- 1- Xu X, Li H, Wang W, Gu J. Degradation of dyes in aqueous solutions by the Fenton process. *Chemosphere* 2004; 57(7): 595-600.
- 2- Al-Momani F, Touraud E, Degorce-Dumas J R. Biodegradability enhancement of textile dyes and textile wastewater by VUV photolysis. *Photochemical Photobiological A* 2002; 153(1-3): 191-197.
- 3- Dince A R, Gunesn Y, Karakaya N. Coal-based bottom ash (CBBA) waste material as adsorbent for removal of textile dyestuffs from aqueous solution. *Journal of Hazardous Materials* 2007; 141(3): 529-535.
- 4- Ledakowicz S, Solecka M, Zylla R. Biodegradation, decolourisation and detoxification of textile wastewater enhanced by advanced oxidation processes. *Biotechnology* 2001; 89(2-3): 175-184.
- 5- Chao H, Yun Y, Xing F H, Larbot A. Influence of silver doping on the photocatalytic activity of titania films. *Applied Surface Science* 2002; 200(1-4): 239-247.

غلظت اولیه فسفر از ۲/۸ به ۱۱۰ میلی گرم در لیتر راندمان حذف از ۹۵ درصد به ۶۴ درصد کاهش یافته است (۱۹). علت این پدیده به نسبت تعداد مولهای آلاینده در دسترس و سطح فعالی که جاذب در آنها اتفاق می افتد بستگی دارد به طوریکه در یک جرم ثابت از جاذب با افزایش غلظت اولیه میزان سطح فعال در دسترس برای جذب ثابت مانده اما تعداد مول های آلاینده موجود در محیط واکنش جذب افزایش می یابد که این امر باعث کاهش در راندمان فرآیند می گردد با توجه به اینکه در این مطالعه در یک جرم ثابت جاذب، غلظت آلاینده از ۱۰ به ۱۰۰ میلی گرم در لیتر افزایش یافته است، نسبت تعداد مول های آلاینده به سطح در دسترس افزایش یافته که نتیجه آن کاهش راندمان جذب می باشد که این نتیجه با یافته های سایر محققین مطابقت دارد (۱۹، ۲۷).

بر اساس نتایج این مطالعه، جاذب پوسته تخم مرغ به عنوان یک جاذب می تواند در جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ مورد استفاده قرار گیرد که ظرفیت جذب آن به پارامترهایی نظیر pH، جرم جاذب، زمان واکنش و غلظت رنگ در نمونه فاضلاب وابسته است. با توجه به اینکه بسیاری از فاضلابهای نساجی و رنگرزی



- 6- Sauer T, Cesconeto G, Jose H J, et al. Kinetics of photocatalytic degradation of reactive dyes in a TiO<sub>2</sub> slurry reactor. *Journal of Photochemical Photobiological A*. 2002; 149(1-3): 147–154.
- 7- Nilsson I, Moller A, Mattiasson B, et al. Decolorization of synthetic and real textile wastewater by the use of white-rot fungi. *Enzyme and Microbial Technology* 2006; 38(1-2): 94–100.
- 8- Arslan I, Balcioglu I A, Bahnemann D W. Advanced chemical oxidation of reactive dyes in simulated dyehouse effluents by ferrioxalate-Fenton/UV-A and TiO<sub>2</sub>/UV-A processes. *Dyes and Pigments* 2000; 47(3): 207-218.
- 9- Lee Y H, Pavlostathis S G. Decolorization and toxicity of reactive anthraquinone textile dyes under methanogenic conditions. *Water Research* 2004; 38(7): 1838–1852.
- 10- Andrade L S, Ruotolo L, Rocha-Filho R, Bocchi N, Biaggio S R, Iniesta J, Montiel V. On the performance of Fe and Fe,F doped Ti–Pt/PbO<sub>2</sub> electrodes in the electrooxidation of the Blue Reactive 19 dye in simulated textile wastewater. *Chemosphere* 2007; 66(11): 2035–2043.
- 11- Zille A. Laccase reactions for textile applications.[Ph.D thesis]. Universidade do Minho. 2005; 5-20.
- 12- Fu Y, Viraraghavan T. Fungal decolorization of dye wastewaters: a review. *Bioresorce Technology* 2001;79(3): 251-262.
- 13- Ong S T, Lee C K, Zainal Z. Removal of basic and reactive dyes using ethylenediamine modified rice hull. *Bioresorce Technology* 2007; 98(15): 2792-2799.
- 14- Tsai W T, Hsien K J, Hsu H C, et al. Utilization of ground eggshell waste as an adsorbent for the removal of dyes from aqueous solution. *Bioresorce Technology* 2008; 99(6): 1623-1629.
- 15- Dong Q, Su H, Zhang D, et al. Synthesis of hierarchical mesoporous titania with interwoven networks by eggshell membrane directed sol-gel technique. *Microporous Mesoporous Materials* 2007; 98(1-3): 344-351.
- 16- Tsai W T, Yang J M, Lai C W, et al. Characterization and adsorption properties of eggshells and eggshells membrane. *Bioresorce Technology* 2006; 97(3): 488-493.
- 17- Arami M, Yousefi Limaee N, Mahmoodi N M. Investigation on the adsorption capability of egg shell membrane towards model textile dyes. *Chemosphere* 2006; 65(11): 1999–2008.
- 18- Janus M, Kusiak E, Choina J, Ziebro H, Morawski A W. Enhanced adsorption of two azo dyes produced by carbon modification of TiO<sub>2</sub>. *Desalination* 2009; 249(1): 359–363.
- 19- Moussavi G, Mahmoudi M. Degradation and biodegradability improvement of the reactive red 198 azo dye using catalytic ozonation with MgO nanocrystals. *Chemical Engineering Journal* 2009; 152(1): 1–7.
- 20- Cheul S, Yong N, Choel L, Hee L, Lim Ch. Characterization of HANARO neutron radiography facility in accordance with ASTM standard E545-91/E803-91 for KOLAS/ISO17025. *Applied Radiation and Isotopes* 2004; 61(4): 631-638.
- 21- Ling C, Mohamed A, Bahatia S. Photo degradation of methylene blue dye in aqueous stream. *Journal of Teknology* 2004; 40: 91-103.



- 22- Chakrabarti S, Dutta B K. Photo catalytic degradation of model textile dyes in wastewater using ZnO as semiconductor catalyst. *Journal of Hazardous Materials* 2004; 112(3): 269-278.
- 23- Shieldes J E, Thomas M A, Thommes M. Characterization of porous solids and powders: Surface area, pore size and density. Netherland: Kluwer Academic Publishers; 2004: 58-63.
- 24- Qanizadeh Gh, Asgary Gh. Removal of Methylene Blue dye from synthetic wastewater by using bone char. *Journal of Health and Environment* 2009; 2(2): 104-113. [Persian]
- 25-Sulak MT, Demirbas E, Kobya M. Removal of Astrazon Yellow 7GL from aqueous solutions by adsorption onto wheat bran. *Bioresource Technology* 2007; 98(13):2590-2598.
- 26-Mehmet D, Mahir A, Aydın T, Yasemin O. Kinetics and mechanism of removal of methylene blue by adsorption onto perlite. *Journal of Hazardous Materials* 2004; 109(1-3): 141-148.
- 27- Ghaneian M T, Ghanizadeh Gh, Gholami M, Ghderinasab F. Application of eggshell as a natural sorbent for the removal of reactive red 123 dye from synthetic textile wastewater. *Tabib-e Shargh* 2009; 11(4): 25-34. [Persian]

Archive of SID



## ***Study of Eggshell Performance as a Natural Sorbent for the Removal of Reactive Red 198 Dye from Aqueous Solution***

***Ghaneian M.T(Ph.D)\* Ehrampoush M.H.(Ph.D)\*\* Gh. Ghanizadeh\*\*\* Momtaz M.(MS.c)\*\*\*\****

*\*Assistant Professor, of Environmental Health Engineering Department, Health Faculty, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.*

*\*\* Associate Professor, Environmental Health Engineering Department, Health Faculty, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.*

*\*\*\*Corresponding Author: Assistant Professor, Department Environmental Health, Health Research Center, Baqiyatallah University of Medical Sciences, Tehran, Iran*

*Tel: 021-82482487-09125599827 Fax: 021-88600062- E-mail: qanizadeh@BMSU.ac.ir*

*\*\*\*\*M.Sc of Environmental Health Engineering, Environmental Health Engineering Department, Health Faculty, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.*

### **Abstract**

**Background:** Dye compounds is one of the most critical contaminant for natural ecosystems. The aim of this study were to determine the primary concentrations of reactive red 198 dye (RR 198), adsorbent dosage and pH influences for the adsorption of RR 198 onto chicken's eggshell (ES) as an adsorbent.

**Methods:** The target adsorbent was prepared in laboratory conditions and pulverized by ASTM standard sieves. Surface characteristics and measurement of the adsorbent surface area was carried out with Scanning electronic microscope (SEM) and via N<sub>2</sub> gas adsorption with Brunauer-Emmett-Teller isotherm. The maximum absorption wave length of this dye ( $\lambda_{max}$ ) was determined by spectrophotometer (Optima SP-3000 Plus).

**Results:** Analysis of absorption spectra showed that the  $\lambda_{max}$  of RR198 is 518 nm. The results show the Calcium components are the main constituent of ES with 1.2 m<sup>2</sup>/g. Elevation of the ES dose (2 to 3 g) lead to increasing of dye removal from 80% to 92%. The results show that elevation of pH from 4 to 10 would lead to increasing of RR 198 adsorption from 44% to 64% but increasing of preliminary dye concentration would lead to decreasing of dye adsorption from 72% to 23%. The kinetic studies revealed that the adsorption of RR 198 is rapid and complying with second-order kinetic ( $R^2= 0.995$ ) which the kinetic constant is 0.0004min<sup>-1</sup>.

**Conclusion:** Eggshell is a cheap adsorbent that can be used for the removal of dye components from alkaline solutions.

**Keywords:** Adsorption, Eggshells waste, Reactive red 198 dye, Natural sorbent