



## بازیافت لجن مازاد تصفیه‌خانه فاضلاب با کاربرد آن به عنوان کربن فعال پودری جهت حذف متیل ترشیری بوتیل اتر (MTBE) از محیط‌های آبی

نویسندگان: محمدرضا زارع<sup>۱</sup>، انسیه طاهری<sup>۲</sup>، علی فاتحی‌زاده<sup>۲</sup>، محمد مهدی امین<sup>۳</sup>

۱. استادیار گروه بهداشت عمومی، دانشکده بهداشت اوز، دانشکده علوم پزشکی و خدمات درمانی لارستان
۲. دکتری مهندسی بهداشت محیط، کمیته تحقیقات دانشجویی و گروه مهندسی بهداشت محیط، مرکز تحقیقات محیط زیست، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان
۳. نویسنده مسئول: استاد گروه مهندسی بهداشت محیط، مرکز تحقیقات محیط زیست، مرکز بیماریهای غیر واگیر، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان تلفن تماس: ۰۳۱-۳۷۹۲۳۲۷۶-۰۳۱ Email: amin@hlth.mui.ac.ir

### چکیده

**مقدمه:** امروزه استفاده رو به گسترش از MTBE و همچنین خواص فیزیکی و شیمیایی آن از جمله حلالیت بسیار بالا در آب، باعث ورود این ماده به منابع آب می‌شود. از طرف دیگر لجن فاضلاب شهری حاوی موادی است که عمده آن‌ها حاوی درصد کربن بالایی نیز می‌باشند. لذا هدف از این مطالعه تهیه کربن فعال از لجن تصفیه‌خانه فاضلاب شهری و بررسی کارایی آن جهت حذف MTBE می‌باشد.

**روش بررسی:** پس از تهیه زغال از لجن تصفیه‌خانه و فعال کردن آن به وسیله محلول ۳ مولار از  $H_2PO_4$  و KOH و محلول ۵ مولار از  $ZnCl_2$ ، اثر پارامترهایی چون نوع فعال‌کننده، pH (۱۰-۲)، زمان تماس (۲۴۰-۰ min)، دوز جاذب (۶-۲ g/L) و غلظت اولیه MTBE (۷۰-۲۰ mg/L) در جذب MTBE بر کربن ساخته شده تعیین گردید. غلظت باقی مانده MTBE در محلول با استفاده از دستگاه گاز کروماتوگرافی تعیین شد. در پایان داده‌های تجربی بدست آمده با استفاده از مدل‌های جذبی فروندلیخ و لانگموئر مدل‌سازی شدند.

**یافته‌ها:** هرچند از لحاظ آماری تفاوت معنی داری در استفاده از فعال‌کننده‌های مختلف حاصل نگردید، اما بیشترین جذب MTBE در هر گرم از کربن فعال هنگامی حاصل می‌شود که از  $ZnCl_2$  به عنوان فعال‌کننده استفاده شد. بیشترین راندمان حذف (حدود ۵۰٪) در pH اسیدی ۴، دوز ۶ g/L از کربن فعال و غلظت ۲۰ mg/L از MTBE حاصل شد. نتایج ایزوترم‌های جذب نشان داد که مدل جذبی فروندلیخ تطابق بیشتری با داده‌های تجربی دارد.

**نتیجه گیری:** با توجه به مشکلاتی که در دفع لجن تصفیه‌خانه‌های فاضلاب وجود دارد، بازیافت آن به عنوان یک جاذب می‌تواند بسیاری از این مشکلات را مرتفع سازد. لذا پیشنهاد می‌شود کارایی این ماده در حذف آلاینده‌های دیگر و بررسی‌های اقتصادی جهت کاربرد آن در مقیاس صنعتی مورد بررسی قرار گیرد.

**واژه‌های کلیدی:** بازیافت لجن، کربن فعال، حذف MTBE

## طلوع بهداشت

دو ماهنامه علمی پژوهشی

دانشکده بهداشت یزد

سال پانزدهم

شماره: اول

فروردین و اردیبهشت ۱۳۹۵

شماره مسلسل: ۵۵

تاریخ وصول: ۱۳۹۲/۳/۲۰

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۲/۷/۲۰

## مقدمه

در سال ۱۹۹۰ طی اصلاحیه قانون هوای پاک (CAAA)، اضافه شدن مواد سوختی اکسیژن دار در بنزین، جهت کاهش مونواکسید کربن در دستور کار مسئولین مربوطه قرار گرفت (۱). به همین استفاده از متیل ترشیاری بوتیل اتر (MTBE)، که از قبل به عنوان جایگزین سرب در بنزین مطرح بود، به عنوان یک ماده اکسیژن دار گسترش زیادی یافت (۲)، به طوری که این ماده در سال ۱۹۹۸ به عنوان چهارمین ماده از مواد آلی ای که بیشترین تولید را در ایالات متحده داشتند، ثبت شد (۳). امروزه استفاده رو به گسترش از MTBE و همچنین خواص فیزیکی و شیمیایی آن از جمله حلالیت بسیار بالا در آب، باعث ورود این ماده به منابع آب می شود (۴). مطالعات گذشته نشان داده اند که در مناطقی که میزان زیادی از MTBE مصرف می کردند، ۵-۱۰٪ از منابع آبی آنها آلوده به این ماده می باشد (۳). به طور مثال در یک دوره میزان MTBE در آب های زیرزمینی شهر سانتا مونیکا، Santa Nonica CA به دلیل نزدیکی چاه های آب به منابع MTBE تا  $610 \mu\text{g/l}$  اندازه گیری شد. این در حالی است که حد آستانه بویایی این ماده  $15 \mu\text{g/l}$  بیان شده است. همچنین دپارتمان سرویس سلامت کالیفرنیا (CAL-DHS) میزان استاندارد اولیه و ثانویه این ترکیب در آب آشامیدنی را به ترتیب  $13$  و  $5 \mu\text{g/l}$  عنوان کرده است.

[هر چند روش های مختلفی جهت حذف MTBE از آب همچون هوادهی، ازن زنی، اکسیداسیون پیشرفته، جداسازی غشایی و جذب پیشنهاد شده است] اما خواص ویژه MTBE، همچون حلالیت بالا، ضریب هنری پایین و مقاومت در برابر تجزیه زیستی،



حذف آن از آب را مشکل کرده است (۴). [حلالیت بالای این ماده می تواند عامل ناکارآمدی هوادهی باشد. به طوری که محققان نشان داده اند، نسبت هوا به آب جهت حذف این ترکیب، نسبت به دیگر هیدروکربن های نفتی، ۶ برابر بیشتر است] (۵). جداسازی غشایی به عنوان یکی دیگر از گزینه های روش حذف، بسیار گرانتر از آن است که در تصفیه آب کارایی داشته باشد. [ازن و ازن/پراکساید می توانند به خوبی MTBE را از آب آشامیدنی حذف کنند اما مشکل آن ها تولید محصولات جانبی همچون برمات و مواد آلی مورد نیاز میکروارگانیسم ها می باشد] (۶). در این میان جذب و به خصوص جذب بر روی کربن فعال به عنوان یک روش موثر جهت حذف ترکیبات آلی مولد طعم و بو شناخته شده است. کربن فعال می تواند MTBE، محصولات اکسیداسیون و سایر ترکیبات آلی مولد طعم و بو را حذف نماید (۷، ۱). اما از آنجایی که این ماده طیف وسیعی از ترکیبات آلی را می تواند جذب نماید، کاربرد آن در بیشتر آب ها باعث جذب مواد غیرهدف شده و از این طریق کارایی از کارایی آن کاسته می شود. به طوری که در مورد ترکیبات جزئی همچون MTBE مشخص شده است که وجود سایر ترکیبات به عنوان یک عامل رقابتی عمل کرده و مانع از جذب این ماده بر روی کربن فعال می شود. به همین دلیل ممکن است در عمل مقادیر زیادی از این ماده مورد نیاز باشد تا ابتدا عوامل مزاحم و غیرهدف و سپس ترکیبات مورد نظر حذف شوند (۳). لذا نیاز به مقادیر زیاد کربن فعال با توجه به هزینه های مربوط به ماده اولیه، هزینه های ساخت و میزان کارایی آن ممکن است جهت حذف MTBE اقتصادی نباشد.



(۱) ابتدا لجن در کوره الکتریکی به مدت ۲۴ ساعت در دمای  $^{\circ}\text{C}$  ۱۰۵ قرار داده شد تا خشک شود و سپس بصورت دستی خرد شد. این عمل باعث می‌شود تا ذرات ریزی با سطح بیشتری تولید شده که امکان فعال سازی شیمیایی بهتر را فراهم می‌کند. (۲) جهت دستیابی به ذرات با اندازه کوچکتر از  $600 \mu\text{m}$ ، ذرات خرد شده در مرحله قبل سرند شدند. (۳) جهت فعال سازی شیمیایی لجن از مواد فعال کننده مختلفی از جمله محلول ۳ مولار از  $\text{H}_2\text{PO}_4$  و  $\text{KOH}$  و محلول ۵ مولار از  $\text{ZnCl}_2$  استفاده شد. بدین منظور ۱۰۰ گرم از نمونه را به ۲۵۰ میلی لیتر از هریک از محلول هل افزوده و جهت حصول اطمینان از واکنش کامل بین مواد فعال کننده و ذرات لجن، دوغاب (حاصل از ذرات لجن و عوامل فعال کننده) به مدت ۵ ساعت در دمای  $^{\circ}\text{C}$  ۸۵ توسط همزن مغناطیسی به هم زده و ۲۴ ساعت بصورت ساکن در دمای اتاق قرار داده شد. (۴) پس از فعال سازی شیمیایی، نمونه به مدت ۲۴ ساعت درون کوره الکتریکی در دمای  $^{\circ}\text{C}$  ۱۰۵ قرار گرفت. (۵) پس از خشک سازی، لجن توسط خردکن به پودر زیر تبدیل شد. مقداری از لجن خشک شده در ظرف فلزی آب بند قرار داده شده و مقداری از زغال کک بر روی لجن ریخته و در کوره قرار داده شد. (۶) در این مرحله دمای کوره با میزان  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$  ۱۵ افزایش یافته تا به دمای  $^{\circ}\text{C}$  ۶۵۰ رسید. پس از دستیابی به دمای نهایی، این دما به مدت ۱ ساعت حفظ گردید. در هنگامی که دمای کوره در حال افزایش است، اکسیژن موجود در محفظه توسط زغال کک مصرف شده و لجن در یک محیط خنثی ناشی از ترکیبات فرار رها شده، پیرولیز می‌شوند. این روش یک فرایند پیرولیز بدون کاربرد نیتروژن و

لجن فاضلاب شهری یک ماده هتروژن از مواد آلی و غیرآلی می‌باشد که بخش آلی این لجن معمولاً درصد بیشتری از آن را شامل می‌شود و حاوی موادی است که عمده آن‌ها حاوی درصد کربن بالایی نیز می‌باشند (۸). اما این ویژگی‌ها باعث شده تصفیه این ماده و دفع آن در بسیاری از تصفیه‌خانه‌های فاضلاب یک معضل اساسی محسوب شود. تصفیه بیولوژیکی هوازی این لجن، به دلیل نیاز به اکسیژن مورد نیاز بالا اقتصادی نبوده و تصفیه بیولوژیکی بی‌هوازی آن نیز به دلیل حساسیت بسیار زیاد به پارامترهای محیطی، بهره‌برداری پیچیده‌ای طلب می‌کند (۸) و زمان زیادی نیاز دارد. لذا تعیین و انتخاب یک روش دفعی مناسب، یکی از اولویت‌های پژوهشی بسیاری از تصفیه‌خانه‌ها می‌باشد. از آنجا که در تهیه کربن فعال دما تا بیش از ۶۵۰ درجه سانتیگراد افزایش می‌یابد، مطمئناً کاربرد این ماده به عنوان ماده پایه جهت تولید کربن فعال گرانولی، باعث نابودی تمام میکروارگانیسم‌های بیماریزای موجود در آن و تثبیت سایر اجزاء می‌شود که از یک طرف مشکلات مربوط به دفع این ماده را کاهش می‌دهد و از طرف دیگر تولید کربن فعال را با توجه به عدم نیاز به خرید ماده اولیه، اقتصادی‌تر می‌کند. لذا در این مطالعه ابتدا با تامین شرایط لازم جهت تولید کربن فعال گرانولی از لجن فعال تصفیه‌خانه، این ماده ساخته شد و سپس کارایی آن جهت حذف MTBE به عنوان یک ماده سرطانزای احتمالی (۹) مورد بررسی قرار گرفت.

### روش بررسی

مراحل تهیه کربن فعال از لجن تصفیه‌خانه فاضلاب بصورت زیر بود:



در این مرحله جهت حفظ نسبت جاذب به محلول، برای هر زمان یک ظرف در نظر گرفته شد. میزان اختلاط ۲۰۰ دور بر دقیقه بود. بررسی تاثیر دوز جاذب و غلظت اولیه MTBE: این مرحله با افزودن مقادیر ۲-۶g/L (۲، ۳، ۴، ۵ و ۶g/L) کربن فعال به محلول‌های ۱۰۰ میلی لیتری از MTBE با محدوده غلظت اولیه ۷۰-۲۰ mg/L (۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰، ۶۰ و ۷۰mg/L) انجام شد. مخلوط تا رسیدن به زمان تعادل (از مرحله قبل) با ۲۰۰ دور بر دقیقه هم زده شد. در نهایت مقادیر باقی مانده MTBE مورد سنجش قرار گرفت. کلیه مراحل انجام آزمایش در دمای آزمایشگاه انجام شود.

میانگین، انحراف معیار و دامنه تغییرات داده‌های بدست آمده محاسبه و از آنالیز تحلیل پراش یک راهه (ANOVA) برای تعیین تفاوت بین میانگین‌های جاذب و از رگرسیون خطی برای تعیین مناسب بودن معادلات جاذب هم‌دما استفاده شد. برای مقایسه میانگین‌ها در قبل و بعد از استفاده از جاذب در صورت نرمال بودن از آزمون زوج و در صورتی که نرمال نباشد از آزمون ناپارامتری معادل آن (آزمون ویلکاکسون) استفاده شد.

#### یافته‌ها

میزان جذب MTBE توسط کربن فعال مشتق شده از لجن مازاد تصفیه‌خانه فاضلاب به نوع ماده فعال‌کننده کربن، pH، زمان تماس، دوزاژ کربن فعال و غلظت MTBE بستگی دارد. در این مطالعه استفاده از سه فعال‌کننده  $ZnCl_2$ ، KOH و  $H_2PO_4$  جهت فعال کردن کربن مشتق شده از لجن نشان داد که بیشترین جذب

هلیوم بوده به باعث کاهش هزینه‌های تهیه کربن فعال می‌شود. (۷) لجن پیرولیز شده پس از خشک سازی به منظور حذف باقی مانده‌های عامل فعال‌کننده با اسید و باز شسته شدند. سپس کربن تولیدی چندین مرتبه با آب مقطر شسته تا pH آب ناشی از شستشو به حدود خنثی رسید. (۸) سپس کربن فعال در دمای  $105^{\circ}C$  به مدت ۲۴ ساعت خشک شده، خرد و غربال (اندازه  $600 \mu m$ ) گردید و در مراحل آزمایش مورد استفاده قرار گرفت. جهت بررسی تاثیر فاکتورهای موثر در جذب به صورت زیر اقدام شد. تاثیر pH بر میزان جذب: در این مرحله ابتدا محلول‌های ۱۰۰ میلی لیتری با غلظت ۱۰ mg/L از MTBE تهیه شده و سپس pH آنها با استفاده از HCl و NaOH ۰/۱ نرمال در محدوده ۲ تا ۱۰ (۲، ۳، ۴، ۵، ۶، ۷، ۸، ۹ و ۱۰) تنظیم شد. به هریک از این محلول‌ها مقدار ۱ گرم از کربن فعال افزوده و در میزان اختلاط ۲۰۰ دور بر دقیقه به هم زده شد. پس از گذشت ۱۲۰ دقیقه از انجام واکنش، غلظت باقی مانده MTBE در محلول با استفاده از دستگاه گاز کروماتوگرافی تعیین گردید.

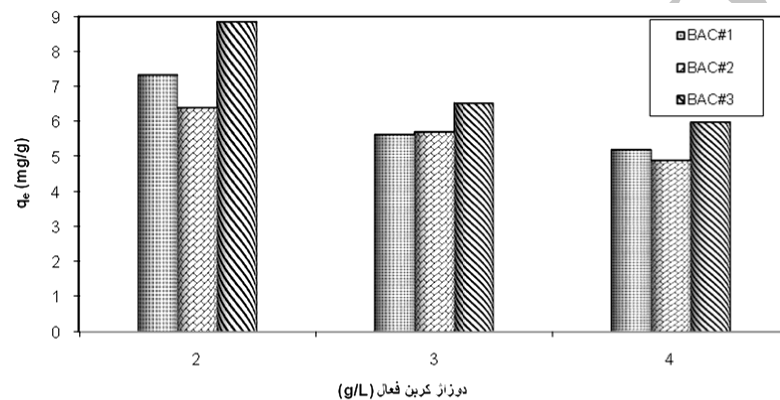
بررسی تاثیر زمان بر میزان جذب: بدین منظور محلول‌های ۱۰۰ میلی لیتری با غلظت‌های ۵، ۱۰ و ۲۰ mg/L از MTBE تهیه و پس از تنظیم pH در محدوده بهینه (بدست آمده از مرحله قبل) مقدار ۱ گرم کربن فعال به آن افزوده شد. سپس در فواصل زمانی ۱۵ دقیقه تا رسیدن به مدت زمان تعادل (زمانی که جذب و واجذب برابر شود) عمل نمونه برداری انجام و غلظت باقی مانده MTBE اندازه گیری شد.



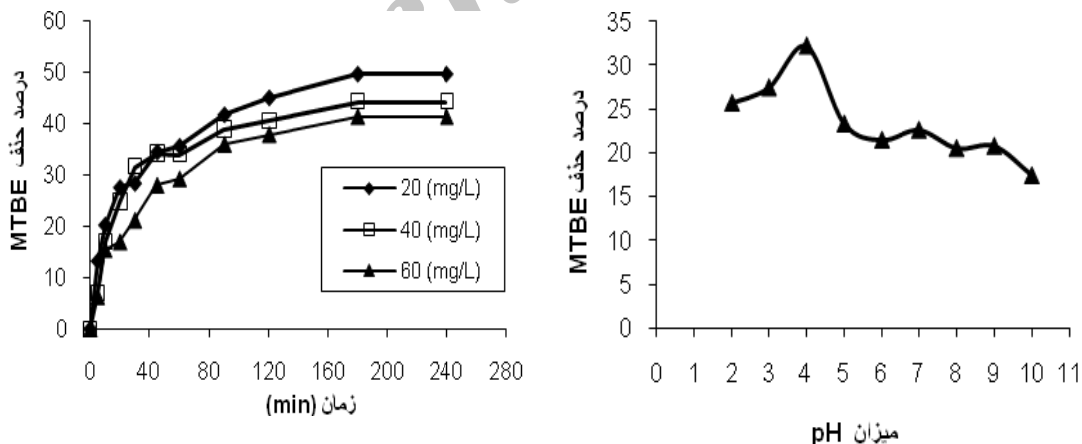
۴ بیشترین درصد حذف MTBE حاصل شد. نمودار زمان تماس و درصد حذف MTBE (شکل ۲-ب) نشان داد که در هر سه غلظت از MTBE (۲۰، ۴۰ و ۶۰ mg/L) با افزایش زمان تماس، درصد حذف افزایش می‌یابد. به طوری که در زمان تماس ۲۴۰ دقیقه در هر سه غلظت بیشترین راندمان حذف حاصل شد.

MTBE در هر گرم از کربن فعال هنگامی حاصل می‌شود که از  $ZnCl_2$  به عنوان فعال کننده استفاده شود (شکل ۱).

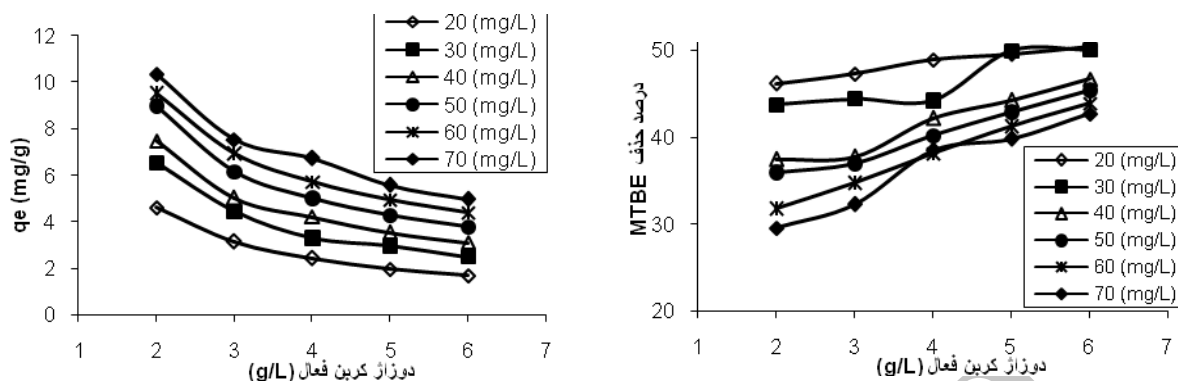
بر این اساس در ادامه مطالعه جهت تعیین اثرات pH، زمان تماس، دوزاژ کربن فعال و غلظت MTBE از کربن فعالی استفاده شد که به وسیله  $ZnCl_2$  فعال شده بود. شکل ۲-الف نشان می‌دهد که میزان جذب در pHهای اسیدی بهبود می‌یابد. به طوری که در pH



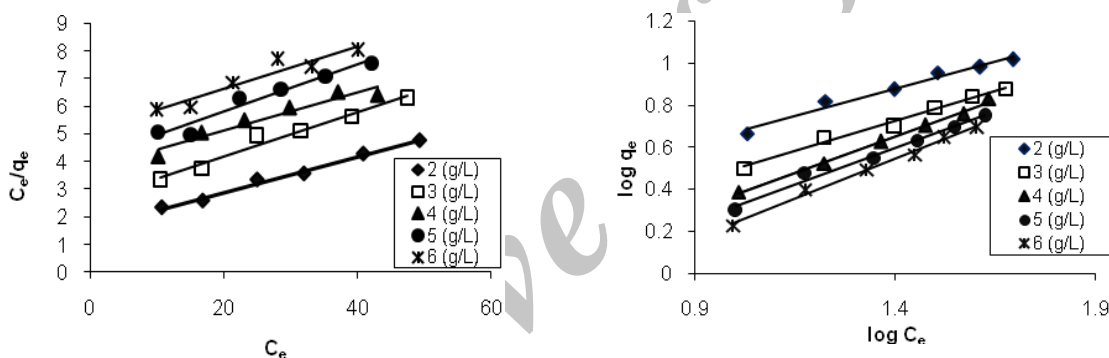
شکل ۱: میزان جذب MTBE در هر گرم از کربن فعال (q<sub>e</sub>) در سه دوز مختلف از کربن فعال (۲، ۳ و ۴ g/L) و در سه نوع کربن فعال مختلف (کربن نوع ۱: فعال شده به وسیله  $H_2PO_4$ ، کربن نوع ۲: فعال شده توسط KOH و کربن نوع ۳ فعال شده با  $ZnCl_2$ ) (غلظت MTBE برابر با ۷۰ mg/L، pH طبیعی، دما ۲۵ °C، سرعت اختلاط ۲۰۰۱/min)



شکل ۲: درصد حذف MTBE به وسیله کربن فعال مشتق شده از لیجن فاضلاب: فعال شده به وسیله  $ZnCl_2$ ، سرعت اختلاط ۲۰۰۱/min، دما ۲۵ °C (الف) در pHهای مختلف و غلظت اولیه MTBE برابر با ۷۰ mg/L (ب) درصد حذف MTBE در زمان تماس‌های مختلف با غلظت اولیه ۲۰ تا ۶۰ mg/L



شکل ۳: درصد حذف MTBE (الف) و میزان جذب MTBE در هر گرم از کربن فعال ( $q_e$ ) (ب) در دوزهای مختلف کربن فعال (۶-۲) و غلظت‌های مختلف MTBE (۷۰-۲۰ mg/L)، pH ۴ و زمان تماس ۲۴۰ min سرعت اختلاط ۲۰۰ l/min، دما ۲۵ °C



۴: ایزوترم فروندلیخ (الف) و لانگموئیر (ب) برای جذب MTBE بر غلظت‌های مختلف (۶-۲) از کربن فعال مشتق شده از لجن فاضلاب  
 جدول ۱: مقادیر شدت جذب ( $1/n$ )، ظرفیت جذب ( $K_F$  و  $Q_m$ )، ثابت لانگموئیر ( $K_L$ )، میزان تطابق ( $r^2$ ) و درصد خطای نسبی (APE) ایزوترم‌های فروندلیخ و لانگموئیر در دوزهای مختلف کربن فعال مشتق شده از لجن (فعال شده به وسیله  $ZnCl_2$ )

دوزهای کربن فعال مشتق شده از لجن (فعال شده به وسیله $ZnCl_2$ ) بر حسب g/L					پارامتر	ایزوترم
۶	۵	۴	۳	۲		
۰/۷۵۹	۰/۶۹۳	۰/۶۹۲	۰/۵۷۳	۰/۵۱۸	$1/n$	
۰/۳۰۴	۰/۴۲۱	۰/۴۸۱	۰/۸۳۷	۱/۴۲۱	$K_F$	فروندلیخ
۰/۹۹۱	۰/۹۹۱	۰/۹۹۳	۰/۹۸۷	۰/۹۷۷	$r^2$	
۲/۸۰	۲/۸۴	۱/۷۵	۳/۰۴	۳/۶۹	APE (%)	
۱۳/۱۷	۱۱/۸۹	۱۴/۵۶	۱۲/۵۶	۱۵/۴۹	$Q_m$	
۰/۰۱۵	۰/۰۲۰	۰/۰۱۸	۰/۰۳۱	۰/۰۴۱	$K_L$	لانگموئیر
۰/۹۸۹	۰/۹۸۹	۰/۹۸۴	۰/۹۸۳	۰/۹۸۹	$r^2$	
۲/۷۷	۲/۸۹	۳/۶۵	۲/۹۵	۲/۳۴	APE (%)	



جذب در این جدول نیز نشان می‌دهد که با افزایش غلظت کربن فعال ظرفیت جذب کاهش می‌یابد. هر چند بر خلاف ظرفیت جذب، افزایش غلظت کربن باعث افزایش شدت جذب می‌شود.

### بحث و نتیجه‌گیری

آنالیز یک طرفه ANOVA نشان داد که تفاوت معنی داری در استفاده از فعال کننده‌های شیمیایی متفاوت ( $ZnCl_2$ ،  $KOH$  و  $H_2PO_4$ ) وجود ندارد ( $P > 0.05$ ). اما چون بیشترین راندمان حذف در نتیجه استفاده از  $ZnCl_2$  حاصل شد، بررسی سایر پارامترها با استفاده از کربنی صورت گرفت که با این ماده فعال شده بود. در فرآیند جذب، pH محلول تاثیر مستقیمی بر خواص فیزیکی و شیمیایی جاذب و جذب شونده دارد (۱۰).

این تاثیر به خوبی در شکل ۲- الف نمایان شده است. طبق این شکل حذف MTBE توسط کربن فعال مورد مطالعه در pH ۴ بیشترین راندمان را دارد و افزایش یا کاهش pH در این محدوده باعث کاهش راندمان می‌شود. دلیل عمده این پدیده می‌تواند این باشد که بار مثبت نسبتاً ضعیف ترکیبات غیرقطبی (non-polarity) همچون MTBE در pHهای پایین دارای بیشترین مقدار است.

در نتیجه این بار مثبت باعث جذب بهتر MTBE بر سطح کربن فعال می‌شود. همچنان که pH افزایش می‌یابد، بار سطحی نیز کم می‌شود و در نتیجه راندمان حذف MTBE توسط کربن فعال کاهش می‌یابد (۱۱). به نظر می‌رسد که در pHهای کمتر از ۴ این فرضیه صادق نیست و لذا نیاز است در این مورد مطالعات کامل تری صورت گیرد. نتایج این تحقیق در ارتباط با اثر pH مطابق با

شکل ۳- الف نشان می‌دهد که با افزایش دوز کربن فعال از ۲ به ۶g/L، درصد حذف MTBE افزایش می‌یابد. از طرف دیگر این شکل نشان می‌دهد که با افزایش غلظت MTBE از ۲۰mg/L به ۷۰mg/L میزان جذب کاهش می‌یابد. بر این اساس بیشترین میزان جذب در دوز ۶g/L از کربن فعال و غلظت ۲۰mg/L از MTBE حاصل شد.

در شکل ۳- ب میزان جذب MTBE در هر گرم از کربن فعال در ستون عمودی نمودار و غلظت‌های کربن فعال در نمودار افقی نشان داده شده‌اند. طبق این شکل بیشترین میزان  $q_e$  در غلظت ۲g/L از کربن فعال و ۷۰mg/L از MTBE حاصل شده است. در حالی که افزایش دوز کربن فعال یا کاهش غلظت MTBE باعث کاهش میزان  $q_e$  می‌شود.

در این مطالعه اطلاعات به دست آمده در خصوص میزان جذب به وسیله دو مدل لانگموئیر و فروندلیخ مدلسازی شد. براساس این مدل‌های ایزوترم که نتایج آن‌ها در شکل ۴- الف (ایزوترم فروندلیخ) و شکل ۴- ب (ایزوترم لانگموئیر) ارائه شده است، می‌توان مقدار جاذب مورد نیاز جهت حذف مقدار مشخصی از MTBE را تعیین نمود. شکل ۴- الف (ایزوترم فروندلیخ) نشان می‌دهد که با افزایش غلظت MTBE در محلول، ظرفیت جذب ( $q_e$ ) کم می‌شود.

با استفاده از نمودارهای شکل ۴- الف و ۴- ب، جدول ۱ ارائه شده است. در این جدول مقادیر شدت جذب ( $1/n$ )، ظرفیت جذب ( $K_f$  و  $Q_m$ )، ثابت لانگموئیر ( $K_L$ )، میزان تطابق ( $r^2$ ) و درصد خطای نسبی ایزوترم (APE) ارائه شده است. داده‌های ظرفیت



اطلاعات تجربی به دست آمده در این تحقیق با مدل فروندلیخ تطابق بیشتری دارد. این مدل بر اساس نوعی جذب تک لایه ای ارائه شده است که در آن محل‌های فعال جذب به صورت هتروژن توزیع شده اند و در آن بین مولکول‌های جذب شده اثر متقابل جذبی وجود دارد (۱۶). داده‌های ایزوترم فروندلیخ که در شکل ۴- الف و جدول ۱ نشان داده شده است، نشان می‌دهد که با افزایش دوز کربن فعال، شدت جذب کاهش می‌یابد (در شکل ۴- الف میزان خروجی MTBE (C<sub>e</sub>) افزایش یافته است). دلیل عمده این پدیده این است که با افزایش غلظت کربن، محل‌های جذب زیادی در سیستم فراهم می‌شود که امکان تماس مولکول‌های MTBE با همه آن‌ها، وجود ندارد و در نتیجه مقادیری از آن‌ها بلا استفاده باقی می‌مانند.

ایزوترم لانگموئیر حداکثر ظرفیت جذبی را نشان می‌دهد که از یک ناحیه جذب تک لایه ای به اندازه کل سطح جاذب، جذب می‌شود (۱۷). این مدل نشان می‌دهد که جذب بر روی یک سطح هموژن انجام می‌شود و در آن بین مولکول‌های جذب شده اثر متقابل جذبی وجود دارد (۱۸). به علاوه در این مدل فرض شده است که انرژی سطح جذب یکنواخت بوده و پس از جذب، واکنش و جذب در آن رخ نمی‌دهد (۱۹). هر چند در این مطالعه داده‌های تجربی تطابق بیشتری با مدل فروندلیخ حاصل شد، اما باید در نظر داشت، که در مورد مدل لانگموئیر نیز در تمام غلظت‌های مورد آزمایش، ضریب همبستگی (R<sup>2</sup>) بیش از ۰/۹۸۳ بدست آمد. لذا می‌توان گفت که این مدل نیز تا حد مناسبی می‌تواند در تعیین رفتارهای جذبی کربن فعال مشتق شده از لجن فاضلاب مفید باشد.

نتایج تحقیقی است که در آن بیشترین راندمان حذف MTBE توسط زئولیت طبیعی در pH ۴ حاصل شد (۱۲). بررسی اثر زمان تماس در این مطالعه نشان داد که بیش از ۵۰٪ از کل حذف MTBE در ۳۰ دقیقه اولیه رخ داده است. میزان جذب قابل ملاحظه در زمان تماس‌های اولیه مبین این موضوع است که جذب MTBE بر روی کربن فعال بیشتر به صورت جذب فیزیکی است (۱۳).

نتایج میزان جذب MTBE در هر گرم از کربن فعال (q<sub>e</sub>) نشان می‌دهد که هر چه غلظت MTBE در محلول بیشتر باشد، میزان جذب آن در هر گرم از کربن فعال بیشتر است. از طرف دیگر اگر دوز کربن فعال افزایش یابد، میزان جذب در هر گرم از کربن فعال کاهش می‌یابد. در واقع این نتایج تصدیق می‌نمایند که هر چه دوزهای بیشتری از آلاینده (MTBE) در محلول آبی وجود داشته باشد، میزان بیشتری از ظرفیت جذب کربن فعال مورد استفاده قرار می‌گیرد و در نتیجه میزان جذب بیشتری در هر گرم از کربن فعال حاصل می‌شود. نتایج این بخش با نتایج سایر تحقیقات قبل که هدف اصلی آن‌ها بررسی راندمان جذب کربن فعال جهت حذف انواع آلاینده‌ها بوده است، مطابقت دارد (۱۰، ۱۲، ۱۴ و ۱۵).

هر چند مدل‌های جذبی مختلفی می‌توانند جهت توصیف داده‌های تجربی به کار روند ولی دو نوع از پرکاربردترین مدل‌ها، مدل جذبی لانگموئیر و فروندلیخ است. در این مدل‌ها تعیین میزان I<sup>2</sup> یا ضریب همبستگی نشان می‌دهد که داده‌های تجربی با داده‌های به دست آمده از مدل، تا چه میزان مطابقت دارد. در این خصوص، با بررسی اطلاعات به دست آمده از محاسبه I<sup>2</sup> مشخص شد که





هر چند این مقدار حذف، درصد بالایی نیست ولی با توجه به مشکلاتی که در دفع لجن تصفیه‌خانه‌های فاضلاب وجود دارد، بازیافت آن به عنوان یک جاذب می‌تواند بسیاری از این مشکلات را مرتفع سازد. لذا پیشنهاد می‌شود کارایی این ماده در حذف آلاینده‌های دیگر و بررسی‌های اقتصادی جهت کاربرد آن در مقیاس صنعتی در مطالعات آینده مورد بررسی قرار گیرد.

### تشکر و قدردانی

این گزارش حاصل طرح تحقیقاتی شماره ۲۹۰۲۶۹ مصوب شورای پژوهشی دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی اصفهان می‌باشد، لذا نویسندگان این تحقیق کمال سپاس و قدردانی را از همکاران این بخش دارند.

### References

- 1- Sutherland J, Adams C, Kekobad J. Treatment of MTBE by air stripping, carbon adsorption, and advanced oxidation: technical and economic comparison for five groundwaters. *Water Res* 2004; 38(2): 193-205.
- 2- Gonzalez-Olmos R, Iglesias M, Goenaga JM, Resa MJ. Influence of Temperature on Thermodynamic Properties of Methyl t-Butyl Ether (MTBE)+Gasoline Additives. *Int J Thermophysics* 2007; 28: 1199-227.
- 3- Quinlivan PA, Li L, Knappe DRU. Effects of activated carbon characteristics on the simultaneous adsorption of aqueous organic micropollutants and natural organic matter. *Water Res* 2005; 39(4): 1663-1673.
- 4- Happel AM, Beckenbach EH, Halden RU. An evaluation of MTBE impacts on California groundwater resources. UCRL-AR-13089. Livermore, CA: Environmental Protection Department, Environmental Restoration Division, Lawrence Livermore National Laboratory, University of California 1998.
- 5- Sevilla A, Beaver P, Cherry P. Effect of MTBE on the treatability of petroleum hydrocarbons in water. 213<sup>th</sup> National Meeting of the American Chemical Society, Division of Environmental Chemistry 2007; 37(1): 407-9.
- 6- Wang Q, Zhai X, Ma J, Yang Y, Wang Q, Ma J. Catalytic Ozonation of MTBE in Water in the Presence of Iron Hydroxide (FeOOH) and Cerium Dioxide (CeO<sub>2</sub>). 2010 International Conference on Challenges in Environmental Science and Computer Engineering, Cesce, 2010; 12(2): 480-3.

هر چند در این مطالعه میزان حذف MTBE در شرایط مختلف توسط کربن فعال مورد بررسی قرار گرفت، اما باید توجه داشت که جهت استفاده کاربردی از این ماده، باید میزان حذف سایر آلاینده‌ها توسط کربن فعال مشتق شده از لجن فعال نیز مورد بررسی قرار گیرد. همچنین پس از تعیین کارایی این ماده در حذف تمام آلاینده‌های خطرناک نیاز است آنالیزهای اقتصادی کاملی در این باره صورت گیرد تا مقرون به صرفه بودن آن نیز اثبات شود. نتایج این تحقیق نشان داد که کربن فعال مشتق شده از لجن تصفیه‌خانه فاضلاب که با استفاده از ZnCl<sub>2</sub> فعال شده است، قادر است در بهترین شرایط (pH ۴، زمان تماس ۲۴۰ دقیقه) با دوز ۲g/L حدود ۵۰٪ از MTBE با غلظت ۲۰mg/L را حذف نماید.



- 7- Shih TC, Wangpaichitr M, Suffet M. Evaluation of granular activated carbon technology for the removal of methyl tertiary butyl ether (MTBE) from drinking water, *Water Res* 2003; 37(2): 375-85.
- 8- Czechowski F, Marcinkowski T. Sewage sludge stabilisation with calcium hydroxide: Effect on physicochemical properties and molecular composition. *Water Res* 2006; 40(9): 1895-905.
- 9- Hung HW, and Lin TF. Adsorption of MTBE from contaminated water by carbonaceous resins and mordenite zeolite, *J Hazard Material* 2006; 135(1-3): 210-17.
- 10- Malakootian M, Fatehizadeh A, Yousefi N, Ahmadian M, Mossazadeh M. Fluoride removal using Regenerated Spent Bleaching Earth (RSBE) from groundwater: Case study on Kuhbonan water. *Desalination* 2011; 277(1-3): 244-9.
- 11- Lu C, Su F, Hu S. Surface Modification of Carbon Nanotubes for Enhancing BTEX Adsorption from Aqueous Solution, *Appl Surf Sci* 254 2008; (21): 7035 – 41.
- 12- Ghadiri SK, Nabizadeh R, Mahvi AH, et al. Methyl tert-butyl ether adsorption on surfactant modified natural zeolites. *Iran J Environ Health Sci Engineer* 2010; 7(3): 241-52.
- 13- Dianati Tilaki R, Naseri S, Shariat SM. Investigation the efficiency of Cadmium removal by Granular activated carbon (GAC). *Sci J Mazandaran Uni Med Sci* 2002; 12(37): 11-20. [Persian]
- 14- Dubinin MM, Zaverina ED, Radushkevich LV. Sorption and structure of active carbons I. Adsorption of organic vapors, *J phys Chem* 1947; 21: 1351-1362.
- 15- Redlich O, Peterson DL A useful adsorption isotherm. *J Phys Chem* 1959; 63(6): 1024-8.
- 16- Freundlich HMF. Uber die adsorption in losungen, *J Phys Chem* 1906; 57(A): 385-470.
- 17- Langmuir I. The constitution and fundamental properties of solids and liquids, *J An Chem Soc* 1916; 38: 2221-95.
- 18- Uluozlu OD, Sari A, Tuzen M, Soylak M. Biosorption of Pb(II) and Cr(III) from aqueous solution by lichen (*Parmelina tiliaceae*) biomass. *Bioresource Tech* 2008; 99(8): 2972-80.
- 19- Nembr AE. Potential of pomegranate husk carbon for Cr(VI) removal from wastewater: Kinetic and isotherm studies. *J Hazard Materials* 2009; 161: 132-41.



## Sludge Recycle of Wastewater Treatment Plant via its Application as Powdered Activated Carbon for Removal of Methyl Tertiary-Butyl Ether (MTBE) from Aqueous Solutions

Zare M(Ph.D)<sup>1</sup>, Taheri E(Ph.D)<sup>1</sup>, Fatehizade A(Ph.D)<sup>1</sup>, Amin M M(Ph.D)<sup>2</sup>

1. Ph.D Student of Environmental Health Engineering. Environment Research Center, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran.
2. Corresponding Author: Ph. D of Environmental Health Engineering, Environment Research Center, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran.

### Abstract

**Introduction:** Nowadays, application of MTBE due to its physical and chemical characteristics including high solubility in water has been increased, resulting in its release into the water resources. On other hand, waste activated sludge derived from municipal wastewater treatment plant (MWTP) contains high amount of carbon. Therefore, this study aimed to provide the activated carbon via sludge of MWTP as well as to evaluate its efficiency for MTBE removal.

**Methods:** The effect of some parameters such as kind of activator, pH (2-10), contact time (0-240min), adsorbent dose (2-6g/L) and initial concentration of MTBE (20-70mg/L) was investigated on MTBE adsorption via activated carbon, after preparation of coal from wastewater sludge and activation of this coal via 3 molar solution of H<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>, and KOH as well as 5 molar solution of ZnCl<sub>2</sub>. MTBE concentration in solution was determined via Gas-Chromatography instrument. The obtained experimental data were modeled by adsorption model of Freundlich and Langmuir.

**Results:** The maximum adsorbed MTBE per gram of activated carbon was obtained when the ZnCl<sub>2</sub> was used as an activator; however, there was no statistically significant difference among different activators. In addition, maximum removal efficiency (about 50%) was obtained in acidic pH of 4, 6g/L of activated carbon and 20mg/L of MTBE concentration. Results of adsorption isotherm showed that Freundlich adsorption model had a better compliance with the experimental data.

**Conclusion:** Regarding the problems associated with sludge disposal of wastewater treatment plant, recycling of this sludge, as an adsorbent, can eliminate most of these problems. As a result, the economical features with respect to industrial scale application and the efficiency of this substance in removal of other pollutants are recommended to be investigated.

**Keywords:** Activated carbon; MTBE removal; Sludge recycling