

# کار آبی مهره‌های مغناطیسی آلزینات سدیم در حذف رنگ اسید سیانین ۵ آر از محیط آبی

دکتر رضا شکوهی<sup>۱</sup> ادریس حسین‌زاده<sup>۲</sup> محمدرضا زارع<sup>۳</sup> الهه ترابی<sup>۴</sup> شیرین رحیمی<sup>۴</sup>

<sup>۱</sup> استادیار گروه بهداشت محیط، <sup>۲</sup> دانشجوی کارشناسی ارشد بهداشت محیط، <sup>۳</sup> دانشجوی کارشناسی بهداشت محیط، <sup>۴</sup> دانشگاه علوم پزشکی همدان <sup>۲</sup> دانشجوی

دکترای بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان

مجله پزشکی هرمزگان سال شانزدهم شماره دوم خرداد و تیر ۹۱ صفحات ۱۱۱-۱۰۱

## چکیده

**مقدمه:** امروزه حذف آلودگی از منابع آبی یک موضوع قابل بحث در علوم زیست محیطی می‌باشد. لذا کنترل آلودگی منابع آبی از اهمیت زیادی برخوردار است. این مطالعه با هدف دستیابی به اطلاعات کاربردی جهت توسعه و ارزیابی کارایی یکی از جدیدترین فناوریهای نوین به منظور حذف رنگ از محیط آبی صورت گرفته است.

**روش کار:** در این مطالعه تجربی، ابتدا با بکارگیری فناوری نانو، مهره‌های مغناطیسی آلزینات سدیم با روش ترسیب شیمیایی، سنتز شدند و ایزوترم فروندلیچ و لانگموئر برای آنالیز داده‌ها مطالعه شدند. در این تحقیق حذف رنگ اسید سیانین ۵ آر موجود در نمونه‌های فاضلاب رنگی سنتتیک توسط مهره‌های سنتز شده در رآکتور ناپیوسته مورد مطالعه قرار گرفت. همچنین تأثیر فاکتورهای محیطی شامل  $pH$  زمان تماس و غلظت ماده جانب و جذب شونده بر کارایی حذف رنگ اسید سیانین ۵ آر، مورد بررسی قرار گرفت. ترکیب ساختاری مهره‌های آلزینات فرآوری شده (کاتیونهای کلسیم، سدیم و آهن) با استفاده از دستگاه جذب اتمی تعیین گردید. غلظت رنگ در نمونه‌ها با استفاده از روش اسپکتروفتومتری در طول موج بیشینه  $578nm$  (UV-1700 Pharmaspec Shimadzo) اندازه‌گیری شد.

**نتایج:** نتایج این تحقیق نشان داد، کارایی حذف رنگ با زمان تماس رابطه مستقیم و با غلظت رنگ رابطه عکس دارد. رابطه بین زمان تماس با کارایی حذف رنگ نشان داد که پس از گذر ۲۱۰ دقیقه زمان تعادل حاصل می‌شود. بیشترین کارایی جذب زیستی در غلظت اولیه  $50 ppm$  وجود داشت. همچنین مشخص شد جذب رنگ اسید سیانین ۵ آر بر روی مهره‌ها، از ایزوترم فروندلیچ تبعیت می‌کند.

**نتیجه‌گیری:** در مجموع این فرآیند از نظر زیست محیطی، ایمن و از نظر فنی با سایر فرآیندهای مطرح قابل رقابت می‌باشد، لذا استفاده از این تکنیک جهت حذف آلاینده‌ها از محیط آبی پیشنهاد می‌شود.

**کلیدواژه‌ها:** آلزینات - اسید سیانین ۵ آر - تصفیه فاضلاب

نویسنده مسئول:

ادریس حسین‌زاده

دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی

همدان

همدان - ایران

تلفن:

پست الکترونیکی:

Edris-2009@live.com

دریافت مقاله: ۸۹/۱۲/۲۴ اصلاح نهایی: ۹۰/۴/۱۱ پذیرش مقاله: ۹۰/۵/۱۰

## مقدمه:

فیزیکی و کارایی مناسب، یکی از پر مصرف‌ترین مواد در حذف آلاینده‌های آلی به خصوص رنگها از فاضلاب صنایع به حساب می‌آید (۱). علیرغم وجود مزایای فوق‌الذکر، به دلیل بعضی از محدودیتها و معایب از جمله مشکل جداسازی پودر کربن فعال از پساب و هزینه بالای مربوط به مراحل تهیه، فعال‌سازی و احیای مجدد آن، مصرف این ماده با محدودیت روبرو است. اخیراً محققین جهت کاهش یا حذف مشکل جداسازی پودر کربن

امروزه ارزیابی فناوریهای نوین با هدف توسعه و تحول فرآیندهای موجود و دستیابی به روشهای مناسب‌تر، ایمن‌تر و ارزان‌تر جهت حذف آلاینده‌ها از پساب‌های صنعتی، یکی از مهمترین عرصه‌های اصلی پژوهش محققین محیط زیست محسوب می‌شود. بدیهی است کربن فعال به دلیل ویژگیهای مثبت متعدد از جمله سطح ویژه و ظرفیت جذب بالا، شرایط

استفاده از مهره‌های مغناطیسی آلزینات انجام شده است، به این نتیجه رسیده‌اند که با استفاده از این مهره‌ها در pH خنثی و زمان ۱۸۰ دقیقه به دلیل وجود گروه‌های کربوکسیلات موجود در ساختار آلزینات و نانو ذرات مغناطیسی و تبادل یون این گروه‌ها با یونهای کلسیم می‌توان راندمان مناسب و قابل قبولی به دست آورد (۶). رنگ یک آلاینده بصری است و صنایع نساجی، صنایع ساخت رنگ، صنایع کاغذ و خمیر چوب، دباغی‌ننده‌ها، کارخانجات آبکاری فلزات، کارخانه صنایع غذایی و... از جمله منابعی هستند که پساب‌های رنگی به محیط دفع می‌کنند. در اغلب موارد، پساب‌های رنگی تخلیه شده به محیط، نسبت به پساب‌های غیررنگی از سمیت کمتری برخوردار هستند اما از آنجا که رنگ یکی از شاخص‌های آلودگی است، لذا وجود پساب‌های رنگی منجر به انزجار عمومی می‌شود. همچنین تحقیقات انجام شده مشخص کرده است که در بیشتر موارد، زائدات رنگی شامل طیفی از فلزات سنگین و دیگر آلاینده‌های سمی است (۱۵). روشهای غالب حذف رنگ از پساب صنایع شامل: تصفیه بیولوژیکی، کواگولاسیون، شناورسازی و جذب سطحی می‌باشد (۱۶).

اگرچه مطالعات معدودی کارآیی مهره‌های مغناطیسی آلزینات سدیم را در حذف/جذب زیستی مواد خاصی از محیط آبی مورد بررسی قرار داده‌اند، اما با وجود اینکه رنگهای اسیدی از معضلات مهم صنایع نساجی به شمار می‌روند (۱۷)، تاکنون هیچ گونه تحقیقی در این زمینه صورت نگرفته و طبق مطالعات انجام شده، مطالعه حاضر اولین تحقیق در این زمینه می‌باشد. بدین منظور رنگ اسید بلو ۱۱۳ یا اسید سیانین ۵ آر به عنوان یک رنگ دی آزو که دارای دو گروه آزو در ساختار شیمیایی خود می‌باشد، به عنوان آلاینده مورد مطالعه در این تحقیق استفاده شد. رنگ اسید بلو ۱۱۳ در واکنش با اسیدها، آلدهیدها، کرباماتها، سیانیدها، فلوراید‌های غیر آلی، فلزات و ترکیبات آلی هالوژنه، ایزوسیاناتها، کتونها، نیتريتها، پروکسیدها و آکلیل هالیدها تولید گازهای سمی و عوامل اکسید کننده یا احیا کننده قوی می‌کند. در شکل ۱ ساختار و دیگر مشخصات این رنگ قابل مشاهده است.

فعال از پساب روش کپسوله کردن کربن فعال پودری در مهره‌های بیوپلیمری مانند آلزینات را پیشنهاد کرده‌اند (۷-۲). استفاده از آلزینات به عنوان کپسول و ماده حامل امکان انتخاب‌پذیری جذب مولکولهای آلی را بیشتر فراهم می‌کند، علت این امر برخورد این مولکولها با گروههای کربوکسیلات با بار منفی آلزینات می‌باشد (۱). آلزینات یک بیوپلیمر ارزان، در دسترس و غیر سمی و مؤثر در حذف آلاینده‌ها از محیط آبی می‌باشد که از جلبک دریایی قهوه‌ای بدست می‌آید. این بیوپلیمر به دلیل داشتن ویژگیهایی چون تجزیه‌پذیری زیستی، خصوصیات هیدروفیلیکی و ماهیت طبیعی بیشتر مورد توجه قرار گرفته و از آن جهت حذف رنگ و برخی فلزات سنگین استفاده شده است (۸،۹). تکنولوژی جدیدی که اخیراً توجه زیادی را به خود جلب کرده است، استفاده از مواد مغناطیسی در مهره‌های آلزینات می‌باشد. امروزه تکنیک جداسازی مغناطیسی مواد، در بسیاری از شاخه‌های علوم چون پزشکی تشخیصی، بیومولکولی، بیوشیمی، شیمی معدنی و شیمی تجزیه مورد استفاده قرار می‌گیرد (۱۰). استفاده از نانوذرات آهن در مهره‌های آلزینات باعث سهولت جداسازی مهره‌ها از جریان سیال می‌شود. در زمینه‌های محیطی از مهره‌های آلزینات برای حذف بعضی از یونهای فلزات سنگین استفاده شده است، در تحقیقات مختلفی از مهره‌های آلزینات کلسیم همراه یا بدون اسید هومیک برای حذف بسیاری از فلزات کاتیونی مانند  $Pb(II)$ ،  $Cu(III)$ ،  $Cd(II)$  و  $Co(II)$  استفاده شده است (۱۱،۱۲). آراواینده‌ها و همکاران، حذف رنگ از فاضلاب صنعت دباغی را با استفاده از مهره‌های آلزینات کلسیم مورد بررسی قرار داده‌اند که با تعیین مقادیر بهینه زمان تماس، دما، غلظت اولیه جاذب و رنگ به راندمان مناسبی در حذف رنگ مورد نظر رسیده‌اند (۱۳). نگوامسک و همکاران در تحقیقی از مهره‌های آلزینات مغناطیسی حاوی سیانکس ۲۷۲ برای حذف یونهای کبالت از فاضلاب استفاده کرده‌اند نتایج آنها نشان داده است که در حذف این فلز سنگین تنظیم pH تأثیر به سزایی در راندمان نهایی دارد. این گروه توانستند با استفاده از ظرفیت جذب مناسب، خواص انتخاب‌پذیری و مغناطیسی مهره‌ها این آلاینده را با راندمان بالایی حذف نمایند (۱۴). در تحقیقی که توسط ویسنست راجر و همکاران به منظور حذف رنگهای متیلن بلو و متیل اورانژ با

## روش کار:

## ۱- فرآیند حذف:

تحقیق حاضر یک مطالعه تجربی است. آزمایش جذب در سیستم ناپیوسته انجام گرفت و فاکتورهای مؤثر بر انجام فرآیند مورد مطالعه شامل زمان تماس، pH، دوز جاذب و غلظت رنگ در مراحل جداگانه بررسی شدند. به طوری که در هر یک از آزمایش‌ها، غیر از فاکتور متغیر، دیگر فاکتورها ثابت در نظر گرفته می‌شدند. همه آزمایشات در سه نوبت تکرار و میانگین آنها به عنوان نتیجه نهایی گزارش گردید که پس از تثبیت شرایط با تعیین اثر هر متغیر در هر مرحله بر فرآیند جذب، عملیات نمونه‌برداری صورت گرفت. برای انجام این تحقیق از نمونه‌های فاضلاب سنتتیک (ساختگی) با استفاده از آب دیونیزه و رنگ استفاده شد. جهت بررسی اثر pH محلول رنگی بر کارایی حذف رنگ، آزمایش در pH های ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱ انجام شد. همچنین زمان تماس‌های مورد بررسی شامل ۵، ۱۵، ۳۰، ۶۰، ۹۰ و ۱۲۰، ۱۵۰، ۱۸۰ و ۲۱۰ دقیقه، رنگ در مقادیر ۵۰، ۷۰، ۹۰ و ۱۰۰ پی پی ام و ماده جاذب در مقادیر ۰/۵، ۱، ۱٫۵، ۲، ۳، ۴، ۵ و ۶ گرم بررسی شدند. در این تحقیق سرعت اختلاط (۲۰۰ rpm)، دما (±۲۵ درجه سلسیوس)، اندازه ذرات جاذب و حجم محلولهای آزمایش (۲۵۰ سی سی) در تمامی مراحل آزمایش ثابت بود. بخش اصلی آزمایشات با ثابت نگه داشتن سایر متغیرها و تغییر یک متغیر در هر مرحله، جهت بررسی اثر تغییرات انجام شده بر کارایی سیستم، مورد مطالعه قرار گرفت. اسپکتروفوتومتر ماوراو بنفش - مرئی UV-1700 Pharmaspec Shimadzo برای اندازه‌گیری میزان رنگ باقیمانده در نمونه در طول موج بیشینه ۵۷۴ نانومتر استفاده شد. جهت انجام این تحقیق ابتدا طی چند مرحله مهره‌های مغناطیسی آلزینات سدیم سنتز شدند و جهت استفاده در آزمایشات جذب در یک ظرف درب بسته نگهداری شدند. همه مواد شیمیایی مصرفی از محصولات شرکت‌های مرک و آلدریچ بودند. برای تجزیه و تحلیل داده‌های حاصل از آزمایش از نرم افزار SPSS.16 و برای انتخاب مناسب ترین مدل ایزوترمی از روش ضریب رگرسیونی مربوط به تطابق داده‌های آزمایش با مدل استفاده شده است.

## ۲- آماده سازی جاذب:

جهت فرآوری مهره‌های مغناطیسی آلزینات سدیم ابتدا نانو ذرات اکسید آهن با روش ترسیب شیمیایی سنتز شدند که به این منظور ۱۰/۸ گرم کلروفریک با ۵/۶ گرم سولفات آهن دو ظرفیتی در ۳۰۰ میلی لیتر آب دیونیز حل شده و محلول حاصل به مدت ۱۵ دقیقه در دمای ۸۰ درجه سانتیگراد توسط میکسر (Germany)، کاملاً مختلط شده و سپس ۲۰۰ میلی لیتر آمونیاک ۲۵٪ به محلول مذکور اضافه و به مدت ۱۵ دقیقه میکس شده و سپس با چند بار شستشو، pH آن به ۷ رسانیده شد (schott Germany, CG-824)، در انتهای این مرحله رسوب سیاه رنگی ایجاد گردید. در ادامه، رسوب حاصل با استفاده از آهنربا و به منظور کنترل خاصیت مغناطیسی از محیط آبی جدا گردید. سپس جهت پایداری نانو ذرات تولید شده در محیط آبی با استفاده از آنیونهای سیترات پوشش‌دار شدند که بدین منظور ۵ گرم اسیدسیتریک در ۱۰ میلی لیتر آب مقطر حل شده و نانوذرات تولید شده به این محلول اضافه گردید و به حجم ۲۵۰ میلی لیتر رسانیده شد، سپس به مدت ۹۰ دقیقه در دمای ۹۰ درجه سلسیوس هم زده شد. جهت سنتز مهره‌های مغناطیسی آلزینات سدیم ۷۹/۲۵ میلی لیتر از محلول حاوی نانو ذرات آهن پوشش‌دار شده با ۳ گرم پودر آلزینات سدیم و ۰/۳ گرم کربن فعال پودری (جدول شماره ۲) در آب مقطر اضافه شده و به مدت ۱ ساعت هم زده شد تا یک سوسپانسیون کاملاً یکنواخت حاصل گردید. سپس سوسپانسیون حاصله به صورت قطره قطره به ۴۰۰ میلی لیتر محلول کلسیم کلراید ۰/۵ مولار از ارتفاع ۳ سانتیمتری از سطح محلول به آرامی اضافه گردید (شکل شماره ۱) (۳، ۶، ۷، ۱۲).

برای جلوگیری از برخورد مهره‌های موجود با مهره‌های مغناطیسی جدید، آهنربایی در زیر محلول کلسیم قرار داده شد تا مهره‌ها از سطح جمع‌آوری شوند و از برخورد آنها با مهره‌های جدید جلوگیری به عمل آید. مهره‌های سنتز شده به مدت ۲۴ ساعت در محلول کلسیم کلراید نگهداری شدند تا زمان کافی برای انجام واکنش و تشکیل آنها وجود داشته باشد. حضور آلزینات در مهره‌ها و واکنش آن با یونهای کلسیم از خارج شدن نانو ذرات اکسید آهن و کربن فعال از مهره‌ها جلوگیری می‌کند. بعد از ۲۴ ساعت زمان ماند چند مرتبه

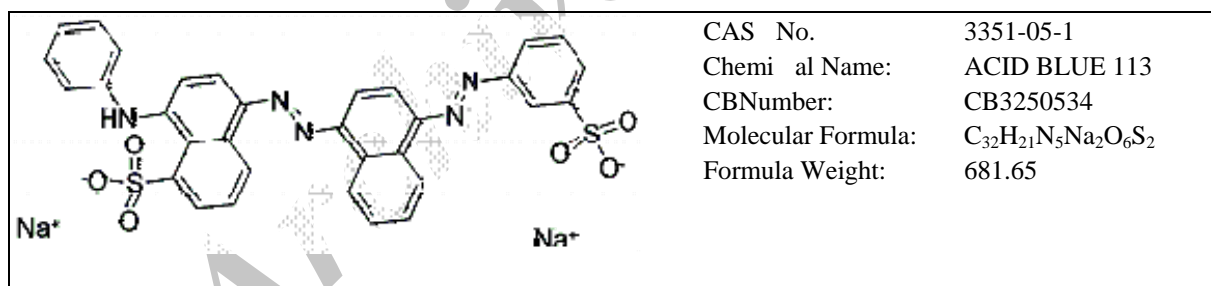
مهره‌های سنتز شده با آب مقطر شستشو داده شدند تا کلسیم مازاد که با آلزینات وارد واکنش نشده است، جدا گردد. جهت جلوگیری از ایجاد تغییر در ساختار مهره‌ها و نیز جلوگیری از کاهش رطوبت جهت استفاده در مراحل مختلف آزمایش، مهره‌های سنتز شده در آب مقطر نگهداری شدند (شکل ۳). درصد وزن خشک یا درصد وزن رطوبت مهره‌های تهیه شده پس از خشک شدن (در آون در دمای ۵۰ درجه سانتیگراد، به مدت زمان ۲۴ ساعت) اندازه گرفته شد. از مهره‌های ژلاتینی فرآوری شده به صورت دیجیتالی عکس گرفته شد و بدین ترتیب میانگین قطر بیش از ۲۰۰ مهره با استفاده از آنالیز عکس‌ها اندازه‌گیری شد و پراکنندگی آنها بدست آمد (۱۲). جهت تعیین ترکیبات ساختاری مهره‌های آلزینات فرآوری شده (کاتیونهای کلسیم، سدیم و آهن) از دستگاه جذب اتمی (AAS-240, Varian BV, Inc.) استفاده گردید، بدین صورت که قبل از آنالیز هر یک از کاتیونهای فلزی در ابتدا مقدار مشخصی از مهره‌های فرآوری شده در ۳ml اسید هیدروکلریک ریخته شده و سپس با آب بدون یون رقیق شد (۶). در نهایت بعد از رسم منحنی استاندارد، غلظت هر یک از کاتیونهای فلزی بدست آمد. آزمایشات جذب جهت ارزیابی کارایی مهره‌های آلزینات

سنتز شده در حذف رنگ بصورت ناپیوسته و با تغییر فاکتورهای pH زمان تماس، غلظت اولیه رنگ و دوز جاذب صورت گرفت. برای اندازه‌گیری مقدار جذب رنگ از دستگاه اسپکتروفوتومتر Pharmaspec Shimadzo با مدل UV-1700 در طول موج ۵۷۴ نانومتر استفاده شد. در این تحقیق سرعت اختلاط (۲۰۰ rpm)، دما (۲۵±۳ درجه سلسیوس) و اندازه ذرات جاذب مورد بررسی قرار نگرفته و در تمامی مراحل آزمایش ثابت بودند. حجم محلولهای آزمایش ۲۵۰ سی‌سی بود.

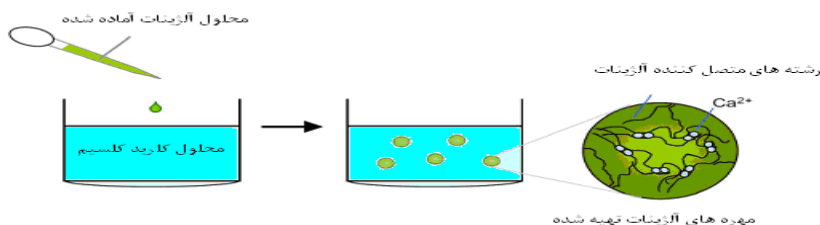
### نتایج:

#### مشخصات مهره‌های مغناطیسی سنتز شده:

اندازه ذرات یکی از متغیرهای مهم در کارایی آنهاست و کاربرد یک جاذب در مقیاس واقعی، نیازمند آگاهی از مناسب‌ترین اندازه جاذب می‌باشد (۱۸). آنالیز اطلاعات مربوط به اندازه مهره‌ها نشان داد، توزیع اندازه مهره‌های مغناطیسی آلزینات سدیم در محدوده نسبتاً کوچکی قرار داشته و میانگین قطر مهره‌های فرآوری شده  $2/75 \pm 0/33$  mm می‌باشد. دیگر مشخصات این مهره‌ها در جدول شماره ۲ ارائه شده است.

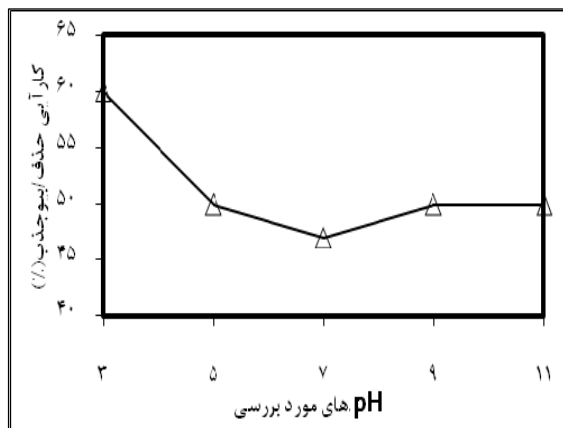


شکل ۱- مشخصات رنگ اسید سیانین ۵ آر

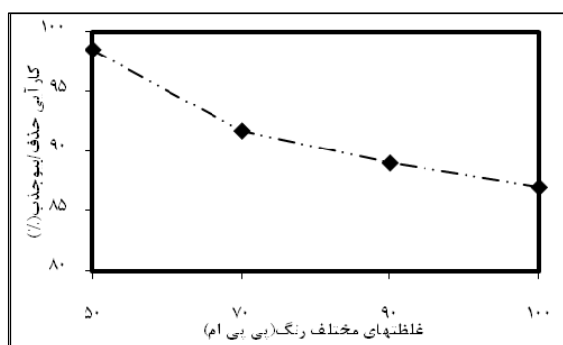


شکل ۲- شماتیک نحوه ایجاد مهره‌های آلزینات

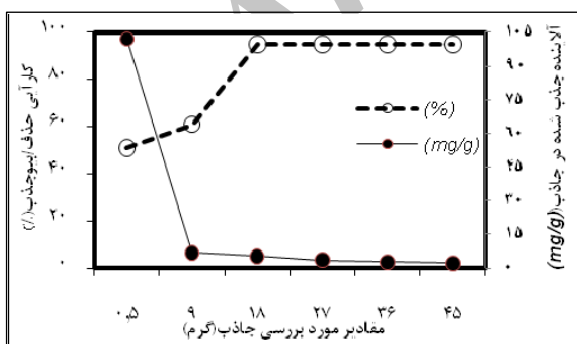
ملاحظه‌ای در کارایی حذف رنگ شده است (از ۵۱٪ به ۹۵٪) اما با افزایش مقدار جاذب از ۱۸ گرم به ۴۵ گرم عملاً افزایشی در کارایی حذف رنگ از محلول رنگی حاصل نشده است.



شکل ۳- نتایج بررسی اثر pH بر کارایی حذف / جذب زیستی (در غلظت ثابت رنگ، زمان تماس و دوز جاذب)



شکل ۴- بررسی غلظت‌های مختلف رنگی بر روی کارایی حذف / جذب زیستی (در pH، زمان تماس و دوز جاذب ثابت)



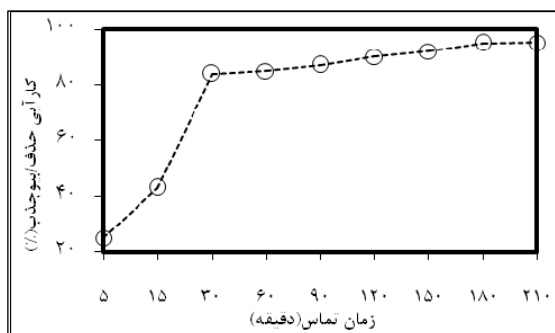
شکل ۵- نتایج بررسی مقادیر مختلف جاذب بر روی راندمان حذف / جذب زیستی و میزان آلاینده جذب شده در واحد جرم جاذب (غلظت رنگ، زمان تماس و pH ثابت)

جدول شماره ۱- مشخصات کربن فعال پودری تجاری مورد

استفاده در این تحقیق	
سطح ویژه به روش BET ( $m^2 gr^{-1}$ )	$1149 \pm 20$
حجم منافذ ( $ml gr^{-1}$ )	۰/۸۴
اندازه دانه‌های کربن فعال پودری ( $\mu m$ )	<1۴۹

#### اثر زمان تماس بر کارایی حذف رنگ:

در شکل ۲ رابطه بین زمان تماس با کارایی حذف رنگ نشان داده شده است. چنانکه از شکل استنباط می‌شود، پس از گذر ۲۱۰ دقیقه زمان تعادل حاصل شده اثر pH بر کارایی حذف رنگ برای بررسی اثر pH محلول رنگی بر کارایی حذف رنگ، آزمایش در pHهای ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱ انجام شد و نتایج این مرحله در شکل ۳ نشان داده شده است؛ همانگونه که در شکل هم قابل مشاهده است، بیشترین کارایی حذف رنگ در  $pH=3$  حاصل اثر غلظت رنگ بر کارایی حذف رنگ برای بررسی غلظت‌های مختلف رنگ بر کارایی حذف رنگ، آزمایشات با ۴ غلظت رنگ (۵۰، ۷۰، ۹۰ و ۱۰۰ پی پی ام) بررسی شد. همانگونه که در شکل ۴ مشاهده می‌شود بیشترین کارایی حذف رنگ در غلظت اولیه ۵۰ پی پی ام وجود داشته است.



شکل ۶- بررسی زمان تماس بر روی حذف / جذب زیستی اسید سیانین ۵ آر (در pH ثابت زمان، زمان تماس و دوز جاذب)

برای بررسی اثر مقدار اولیه جاذب (مهره‌های مغناطیسی فراوری شده) بر کارایی حذف رنگ، آزمایشات با مقادیر ۰/۵، ۱۸، ۲۷، ۳۶ و ۴۵ گرم از جاذب انجام شد. نتایج این مرحله از آزمایشات در شکل ۵ آورده شده است. چنانچه از شکل استنباط می‌شود، در ابتدا افزایش مقدار جاذب باعث افزایش قابل

جذب جاذب مورد استفاده می‌باشد. در این مطالعه برای بررسی تطابق داده‌های حاصل از بررسی آزمایشات ایزوترم، از مدل‌های لانگموئر و فروندلیچ که معادله آنها به صورت معادلات ۱ و ۲ می‌باشد (۱۹)، استفاده گردید.

یکی از روشهای انتخاب بهترین تطابق داده‌های آزمایشات با مدل‌های ایزوترم جذب، ضریب رگرسیونی مربوط به تطابق داده‌ها با مدل است (۲۰). بر اساس ضرایب رگرسیونی منحنی‌های مربوط به این دو مدل (شکل ۷) جذب رنگ اسید سیانین ۵ آر بر روی مهره‌های مغناطیسی فرآوری شده در این تحقیق، از ایزوترم فروندلیچ تبعیت می‌کند.

با توجه به شکل ۶ و محاسبات انجام شده، نتایج مطالعه نشان داد که با افزایش میزان جاذب از ۰/۵ گرم به ۴۵ گرم، مقدار رنگ جذب شده در واحد جرم جاذب از ۱۰۲ mg/gr به ۱۰۲ mg/gr

$$\frac{c_e}{q_e} = \frac{1}{q_m K} + \frac{1}{q_m} c_e \quad (1)$$

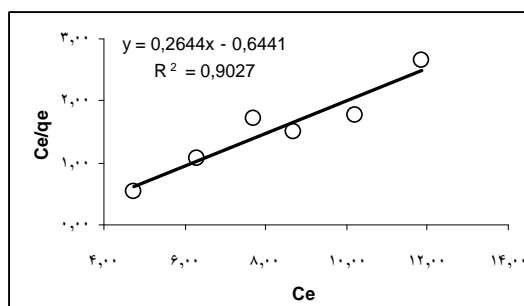
$$\log q_e = \log k + \frac{1}{n} \log c_e \quad (2)$$

۲/۱۱ کاهش یافته است.

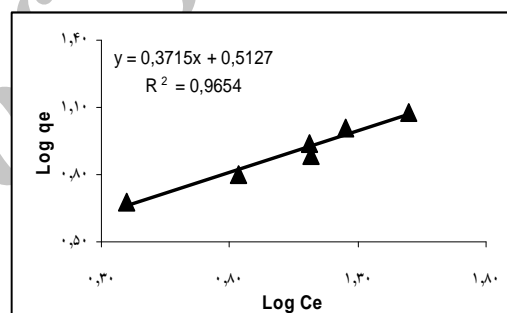
### بررسی ایزوترم‌های جذب:

از جمله مشخصه‌های مهمی که باید در مطالعات مربوط به جذب آلاینده‌ها بر روی جاذب بررسی شود، تعیین ایزوترم

شکل ۷ ب: ایزوترم لانگموئر



شکل ۷ الف: ایزوترم فروندلیچ



جدول شماره ۲- مشخصات مهره‌های مغناطیسی سنتز شده

مشخصات	قطر	رطوبت	شکل	رنگ	آهن	سدیم	کلسیم
واحد	mm	%	-	-	mmol/gr	mmol/gr	mmol/gr
مقدار	۲/۷۵±۰/۰۲۳	۹۶/۶±۰/۵	کروی	قهوه‌ای تیره	۰/۵۳	۰/۰۲۲	۰/۰۶۳

جدول شماره ۴- نتایج تطبیق داده‌ها با مدل‌های ایزوترمی لانگموئر و فروندلیچ

مدل ایزوترمی	ضریب رگرسیون	پارامترهای مدل	معادله خط
لانگموئر	۰/۹۰۲۷	Kads(1/gr) = ۰/۴۱	Y = ۰/۲۶۴۴x + ۰/۶۴۴۱
فروندلیچ	۰/۹۶۵۴	n = ۲/۶۹	Y = ۰/۳۷۱۵x + ۰/۵۱۲۷

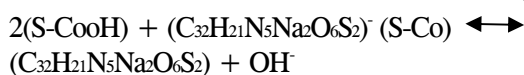
سدیم و آهن) ترکیب غالب مربوط به آهن بوده است. مقایسه نتایج این بخش از مطالعه تقریباً با یافته‌های وینسنت راجر و همکاران مطابقت دارد (۶). وجود نانو ذرات آهن در مهره‌های سنتز شده باعث جذب مهره‌ها توسط آهن‌ربا می‌شود.

### بحث و نتیجه‌گیری:

ترکیبات جاذب فرآوری شده مورد بررسی قرار گرفت و نتایج اجزای موجود در ساختار مهره‌های مغناطیسی آلزینات سدیم نشان داد که از بین سه کاتیون مورد بررسی (کلسیم،

غلبه بر نیروی دفع یونی، مرتبط خواهد بود (۲۲). لذا ممکن است که حالت غالب جذب در این مطالعه از نوع شیمیایی باشد. با توجه به اینکه مهره‌های مغناطیسی در محدوده pH های مورد بررسی تغییر زیادی در کارایی حذف از خود نشان نداده است می‌تواند کاربرد گسترده‌ای برای حذف آلاینده‌ها با pH های متفاوت داشته باشد.

با توجه به اینکه در مراحل مختلف آزمایش pH نهایی محلول افزایش یافته است، می‌توان گفت به ازای جذب آنیون رنگ اسید سیانین ۵ آر بر روی مهره‌ها یونهای OH<sup>-</sup> از سطح مهره‌های آلژینات به محلول وارد شده است که این حالت نشان می‌دهد یک مکانیسم تعویض یونی در خلال فرآیند جذب روی داده است. مکانیسم تعویض یونی در سایت‌های کربوکسیلی (S-COOH) را می‌توان توسط رابطه زیر بیان کرد (۲۰)، S بیانگر سطح مهره‌های آلژینات است:



با توجه به اینکه ظرفیت جذب با افزایش غلظت OH<sup>-</sup> کاهش یافته است این حالت می‌تواند با عدم تعویض آنیون (C<sub>32</sub>H<sub>21</sub>N<sub>5</sub>Na<sub>2</sub>O<sub>6</sub>S<sub>2</sub>)<sup>-</sup> بر روی مهره‌های آلژینات که با افزایش pH رقابت با OH<sup>-</sup> آنیونهای رنگ برای دستیابی به سایت‌های هیدروکسیلی موجود بر روی سطح مهره‌های آلژینات افزایش می‌یابد و یکی از دلایل کاهش جذب رنگ بر روی مهره‌های آلژینات در pH های قلیایی می‌تواند به این دلیل باشد (۲۰). در بررسی تأثیر غلظت رنگ بر کارایی حذف رنگ، با افزایش غلظت اولیه رنگ، کارایی حذف کاهش یافته است و بیشترین مقدار جذب در غلظت ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر حاصل شده است. در مطالعه راجر و همکاران با افزایش غلظت رنگ تا رسیدن به Q<sub>max</sub> (حداکثر ظرفیت جذب جذب) افزایش جذب مشاهده شده است. از آنجا که فرآیند جذب رنگها بر روی انواع مختلف جاذب تحت تأثیر خواص متفاوت جاذب و جذب شونده قرار دارد، می‌توان گفت که شاید تفاوت در نتایج مطالعات دیگر محققین با متفاوت بودن آلاینده مورد بررسی مرتبط باشد (۲۳). در بررسی اثر مقدار جاذب بر کارایی حذف مشاهده شد که با افزایش مقدار جاذب از ۰/۵ به ۱۸ گرم افزایش کارایی حذف حاصل شده است اما با افزایش جاذب از ۱۸ به ۴۵ گرم عملاً در کارایی حذف تغییری حاصل نشده است. از طرفی با افزایش مقدار جاذب

برای تأثیر زمان تماس بر کارایی حذف رنگ دیگر متغیرها ثابت نگه داشته شدند. مقدار حذف رنگ اسید سیانین ۵ آر با افزایش زمان تماس افزایش داشته است. مقدار جذب در زمان اولیه با سرعت بیشتری صورت گرفته (از ۵ تا ۳۰ دقیقه) ولی از ۶۰ دقیقه تا زمان تعادل (۲۱۰ دقیقه) مقدار جذب / کارایی حذف به آهستگی صورت گرفته است که شاید این حالت به این دلیل باشد که در دقایق اولیه، جذب روی نواحی سطحی جاذب صورت گیرد و سپس جذب رنگ از طریق پخش در خلل و فرج جاذب باشد که به مراتب کندتر است (۱۶). از طرفی با افزایش زمان تماس بسیاری از نواحی جذب اشباع شده و نفوذ آلاینده به درون خلل و فرج جاذب نیازمند زمان بیشتری خواهد بود. نتایج این بخش تا حدودی با نتایج وینسنت راجر و همکاران همخوانی دارد. در مطالعه آنها ۵۰٪ حذف رنگ توسط مهره‌های مغناطیسی در ۱۰ دقیقه اول حاصل شده بود و جذب با سرعت کمتری نسبت به زمان بعد از ۱۰ دقیقه صورت گرفته است و زمان تعادل در مطالعه آنها ۱۸۰ دقیقه بدست آمد (۶). این روند در مطالعه ریکاردو و همکاران در جذب زیستی سرب توسط مهره‌های مغناطیسی آلژینات کلسیم هم ذکر شده است (۱۲). از جمله فاکتورهای اثرگذار بر فرآیندهای جذب، pH محلول می‌باشد که بر روی ساختار آلاینده/رنگ و جاذب اثر می‌گذارد. در این تحقیق با افزایش pH از ۳ به ۷ اندکی کاهش کارایی حذف حاصل شده است در حالی که افزایش pH از ۷ به ۱۱ تأثیری در فرآیند نداشته است. در مطالعه راجر و همکاران هم تغییر pH محلول تأثیری بر کارایی حذف رنگ ایجاد نکرده است. در مطالعه آراوینداهان و همکاران هم تغییر pH تأثیری بر حذف رنگ توسط مهره‌های آلژینات کلسیم نداشته است که ممکن است با ترکیبات ساختاری مهره‌ها مرتبط باشد. با افزایش pH بار سطحی مهره‌های مغناطیسی بیشتر منفی می‌شود و باعث افزایش جذب رنگهای کاتیونی می‌شود (۲۱). با توجه به اینکه رنگ اسید سیانین ۵ آر یک رنگ آنیونی است با افزایش pH از جذب آن بر روی سطح مهره‌های آلژینات کاسته شده است. در بررسی فرآیند جذب آلاینده‌ها توسط جاذبها در صورتی که برای تمامی pHها جذب اتفاق افتد، کاهش یا افزایش جذب ماده جذب شوند بر روی جاذب به دلیل نیروی جاذبه الکترواستاتیکی نخواهد بود بلکه با نیروی جاذبه شیمیایی با انرژی کافی جهت

می‌نماید، بیانگر این است که جذب سوبسترای یونی (کاتیونی یا آنیونی) با رقابت ضعیفی از سوی مولکولهای حلال روبه‌رو است (۲۰). از آنجا که مدل قابل ارائه برای فرآیند جذب آلاینده بر روی جاذبه‌های مختلف تابعی از نوع آلاینده و نوع جاذب مورد استفاده است، پس نمی‌توان برای جذب آلاینده‌ها مدل واحدی ارائه و پیشنهاد کرد.

هرچند این مطالعه نشان داد استفاده از مهره های مغناطیسی در حذف رنگ اسید سیانین ۵ آر می‌تواند روش کاربردی و موفقیت‌آمیزی باشد اما از آنجا که معمولاً در مقیاس های واقعی و کاربردی معمولاً مجموعه‌ای از رنگها به همراه هم و به همراه مواد دیگری وارد محیط می‌شوند، لذا لازم است این مطالعه در مورد مجموعه‌ای از رنگها و همچنین با استفاده از نمونه های طبیعی نیز انجام گیرد تا نقش عوامل رقابت کننده در این فرآیند مشخص شده و کارایی آنها در مقیاس واقعی به اثبات برسد.

از این مطالعه نتیجه گرفته می‌شود که کارایی حذف رنگ اسید سیانین ۵ آر با افزایش زمان تماس افزایش یافته و در ۲۱۰ دقیقه به تعادل می‌رسد. بیشترین کارایی حذف رنگ مذکور در pH اسیدی (pH = ۳) وجود داشته است. افزایش غلظت رنگ باعث کاهش کارایی حذف رنگ توسط مهره‌های مغناطیسی سنتز شده می‌شود و ایزوترم جذب فروندلیچ نسبت به ایزوترم لانگمویر تطابق بهتری با داده‌های حاصل از آزمایش داشته است. در نهایت ویژگی مغناطیسی مهره‌ها این امکان را فراهم می‌سازد که با استفاده از یک آهنربای ساده مهره‌ها را از فاضلاب سنتتیک جدا نمود و از این طریق به یک روش ایمن و پاک در زمینه تصفیه فاضلاب دست یافت، لذا پیشنهاد می‌شود این فرآیند در مطالعات دیگر جهت کارایی در حذف آلاینده‌های مختلف بررسی گردد و تأثیر عوامل تأثیرگذار دیگر بر فرآیند جذب مورد ارزیابی قرار گیرد.

#### سپاسگزاری:

نویسندگان این مقاله بر خود لازم می‌دانند بدینوسیله از حمایت‌های مرکز تحقیقات دانشکده بهداشت قدرانی نمایند.

میزان رنگ جذب شده در واحد جرم مهره‌های مغناطیسی کاهش یافته است. زیرا افزایش میزان جاذب منجر به افزایش در جذب آلاینده/رنگ نمی‌گردد که به عدم بهره‌گیری از کل ظرفیت جاذب مرتبط می‌شود. همچنین شاید به دلیل غیر اشباع ماندن برخی از نقاط فعال موجود در سطح جاذب، میزان جذب در واحد جرم جاذب کاهش یابد (۱۹). با توجه به اینکه تا دوز ۱۸ گرم، در کارایی حذف رنگ افزایش وجود داشته است و علیرغم افزایش مقدار جاذب، افزایشی در کارایی حذف رنگ حاصل نشده است می‌توان استنباط کرد که مقدار رنگ قابل جذب توسط جاذب به همان مقدار جذب شده تا دوز ۱۸ گرم از جاذب بوده است به عبارتی غلظت رنگ در محلول رنگی به حدی کم می‌شود که دیگر قابل جذب نیست.

در این تحقیق، داده‌های تجربی تعادل جذب با تطبیق آنها با مدل‌های ایزوترم جذب فروندلیچ و لانگمویر بررسی شدند؛ نتایج نشان داد که جذب رنگ اسید سیانین ۵ آر بر روی مهره‌های آلزینات از ایزوترم جذب فروندلیچ تبعیت می‌کند. پارامترهای مربوط به ایزوترم فروندلیچ (n و k) نشان می‌دهند که آیا جذب مطلوب است یا خیر. در این مدل k یک شاخص ظرفیت جذب است و شیب یک شاخص برای بررسی شدت جذب می‌باشد. وقتی که شیب نسبتاً کم باشد ( $n \ll 1$ ) بیانگر این است که شدت جذب در محدوده غلظتهای مورد بررسی خوب (مطلوب) است در حالی که در شیب‌های بیشتر ( $n > 1$ ) به این معنی است که شدت جذب در غلظتهای بالا، خوب (مطلوب) است اما برای غلظتهای پایین‌تر مقدار جذب بسیار کمتر است (۲۲). در مطالعه ریکاردو جذب سرب بر روی مهره‌های آلزینات کلسیم با ایزوترم مدل لانگمویر تطابق داشته است. با توجه به اینکه از مفروضات مدل ایزوترمی فروندلیچ این است که فرآیند جذب سطحی در سطوح هتروژن انرژی اتفاق می‌افتد (۲۲). لذا این مدل بیانگر یکنواخت نبودن سطح مهره‌های فرآوری شده است. مدل ایزوترمی لانگمویر بیانگر این است که یک لایه (لایه هم سان) از رنگ سطح جاذب را پوشانده و جذب سطحی هر مولکول جزء جذب شونده دارای انرژی فعال سازی (اکتیواسیون) برابر و در نتیجه بیانگر همگن بودن جاذب فرآوری شده است. همچنین زمانی که فرآیند جذب از ایزوترم نوع L یا مدل لانگمویر پیروی



## References

## منابع

1. Annadurai G, Juang RS, Lee DJ. Factorial design analysis for adsorption of dye on activated carbon beads incorporated with calcium alginate. *Advances in Environmental Research*. 2002;6:191-198.
2. Veglio F, Esposito A, Reverberi AP. Copper adsorption on calcium alginate beads: equilibrium pH-related models. *Hydrometallurgy*. 2002;65:43-57.
3. Idris A, Hassan N, Mohd Ismail NS, Misran E, Yusof NM, Ngomsik AF, et al. Photocatalytic magnetic separable beads for chromium (VI) reduction. *Water Research*. 2010;44:1683-1688.
4. Bayramoğlu G, Kiralp S, Yilmaz M, Toppare L, Arica MY. Covalent immobilization of chloroperoxidase onto magnetic beads: Catalytic properties and stability. *Biochemical Engineering Journal*. 2008;38:180-188.
5. Oster J, Parker J, à Brassard L. Polyvinyl-alcohol-based magnetic beads for rapid and efficient separation of specific or unspecific nucleic acid sequences. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. 2001;225:145-150.
6. Rocher V, Siaugue JM, Cabuil V, Bee A. Removal of organic dyes by magnetic alginate beads. *Water Research*. 2008;42:1290-1298.
7. Rocher V, Bee A, Siaugue JM, Cabuil V. Dye removal from aqueous solution by magnetic alginate beads crosslinked with epichlorohydrin. *Journal of Hazardous Materials*. 2010;178:434-439.
8. Lagoa R, Rodrigues JR. Evaluation of dry protonated calcium alginate beads for biosorption applications and studies of lead uptake. *Appl Biochem Biotechnol*. 2007;143:115-128.
9. Lamelas C, Wilkinson KJ, Slaveykova VI. Influence of the composition of natural organic matter on Pb bioavailability to microalgae. *Environ Sci Technol*. 2005;39:6109-6116.
10. Barrias CC, Ribeiro CC, Lamghari M, Miranda CS, Barbosa MA. Proliferation, activity, and osteogenic differentiation of bone marrow stromal cells cultured on calcium titanium phosphate microspheres. *J of Biomed Mater Res A*. 2005;72:57-66.
11. Jang LK, Nguyen D, Geesey GG. Selectivity of alginate gel for Cu over Zn when acidic conditions prevail. *Water Research*. 1999;33:2817-2825.
12. Lagoa R, Rodrigues JR. Evaluation of Dry Protonated Calcium Alginate Beads for Biosorption Applications and Studies of Lead Uptake. *Appl Biochem Biotechnol*. 2007;143:115-128.
13. Aravindhan R, Fathima N, Rao J, Nair B. Equilibrium and thermodynamic studies on the removal of basic black dye using calcium alginate beads. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 2007;299:232-238.
14. Ngomsik A, Bee A, Siaugue J, Talbot D, Cabuil V, Cote G. Co(II) removal by magnetic alginate beads containing Cyanex 272. *J Hazard Mater*. 2009;166:1043-1049.
15. dos Santos AB, Cervantes FJ, Van Lier JB. Review paper on current technologies for decolourisation of textile wastewaters. *Perspectives for Anaerobic Biotechnology*. 2007;98:2369-2385.
16. Arivoli S, Sundaravadivelu M, Elango K. Removal of basic and acidic dyes from aqueous solution by adsorption on a low cost activated carbon: Kinetic and thermodynamic study. *Indian Journal of Chemical Technology*. 2008;15:130-139.
17. Xin-wei Y. The Developments of Acid Dyes. *Dyestuff and Coloration*. 2006;02: 76-82.
18. Volesky B. Detoxification of metal-bearing effluents: Biosorption for the next century. *Hydrometallurgy*. 2001;59:203-216.
19. Hoseinzadeh E, Shokoohi R. Biosorption process for heavy metal removing from aqueous solution. *Omranab*. 2010;35:32-43. [Persian]
20. Al-Dega YS, El Barghouthia MI, Issa AA, Khraisheh MA, Walker GM. Sorption of Zn(II), Pb(II) and Co(II) using natural sorbents: Equilibrium and kinetic studies. *Water Research*. 2006;40:2645-2658.

21. Chen J, Tendeyong F, Yiacoumi S. Equilibrium and kinetic studies of copper ion uptake by calcium alginate. *Environ Sci Technol.* 1997;31:1433-1439.
22. Leyva Romas R, Diaz-Flores PE, Aragon Pina A, Mendoza Barron J, Gurrero Coronado RM. Adsorption of Cadmium(II) from an aqueous solution onto Activated Carbon Cloth. *Separation Science and Technology.* 2005;40:2079-2094.
23. Ong ST, Lee LR, Zainal Z. Removal of basic and reactive dyes using ethylenediamine modified rice hull. *Bioresour Technol.* 2007;98:2792-2799.

Archive of SID

## Sodium Alginate Magnetic Beads for Removal of Acid Cyanine 5R from aqueous solution

R. Shokouhi, PhD<sup>1</sup> E. Hosseinzadeh, MSc Student<sup>2</sup> M. Zare, PhD Student<sup>3</sup> E. Torabi, BSc Student<sup>4</sup>  
Sh. Rahimi, BSc Student<sup>4</sup>

Assistant Professor Department of Environmental Health<sup>1</sup>, MSc Student of Environmental Health<sup>2</sup>, BSc Student of Environmental Health<sup>4</sup>, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. PhD Student of Environmental Health<sup>3</sup>, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran.

(Received 15 Mar, 2011 Accepted 1 Aug, 2011)

### ABSTRACT

**Introduction:** The water pollution remediation is a challenging topic in environmental science. The purpose of this study was to achieve the practical methods for evaluation of the efficiency of latest modern technologies in order to remove dyes from the aqueous solution.

**Methods:** In this experimental study, we used nanotechnology technique for production of the Sodium alginate magnetic beads by the chemical precipitation method. The adsorption experiments data was compiled by the Langmuir and Freundlich isotherm models. We examined the removal of the acid cyanine 5R dye from synthetic wastewater samples by using the synthesized beads in batch reactor. The effect of environmental factor (such as pH, contact time, adsorbate and adsorbent concentration) on the efficiency of removal of acid cyanine 5R has been studied. Composition of Alginate magnetic beads (calcium, sodium and ferrous) determined by atomic absorption instrument. The dye concentration in the samples was measured by spectrometry method using a UV-1700 Pharmaspec Shimadzo spectrophotometer at 574 nm wavelength.

**Results:** The efficiency of sodium alginate magnetic beads to remove the Acid Cyanine 5R had a direct relationship with contact time and inverse relationship with dye concentration. Relationship between contact time and efficiency of dye removal showed the equilibrium acquire after 210 minute. The maximum efficiency of dye removal was in initial concentration of 50 ppm. The results also showed the adsorption of Acid Cyanine 5R complies with Freundlich isotherm model.

**Conclusion:** Generally from environmental view this process is safer and it can compete with other common methods. So, we recommended this method for removal of pollution from aqueous solution.

**Key words:** Alginate - Acid Cyanine 5R - Waste Water Treatment

Correspondence:  
E. Hosseinzadeh, MSc Student.  
School of Health, Hamadan  
University of Medical  
Sciences.  
Hamadan, Iran  
Tel: +98  
Email:  
Edris-2009@live.com