

ارزیابی کارایی حذف آنتراسن از محلول‌های آبی با استفاده از ژئولیت طبیعی در مقایسه با نوع اصلاح شده آن

نرگس رفیعی الحسینی^۱، افشین ابراهیمی^۲، سید مهدی برقی^۳

مقاله پژوهشی

چکیده

مقدمه: آنتراسن یکی از انواع هیدروکربن‌های آروماتیک می‌باشد که به عنوان ترکیبی سرطان‌زا برای انسان شناخته شده است. ترکیباتی موسوم به ژئولیت نیز در حذف آلاینده‌ها و از جمله هیدروکربن‌های آروماتیک مورد استفاده قرار می‌گیرند. بنابراین، هدف از انجام تحقیق حاضر، مقایسه عملکرد ژئولیت‌های طبیعی و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن در حذف آنتراسن از آب بود.

روش‌ها: در این پژوهش، فرایند حذف آنتراسن با کاربرد ژئولیت‌های طبیعی و اصلاح شده مورد بررسی قرار گرفت و مقدار جذب محلول‌های مورد نظر با استفاده از دستگاه طیف‌سنجی مرئی - فرابنفش (UV/Visible) اسپکتروفتومتر قرائت گردید. همچنین، تأثیر pH، غلظت اولیه آنتراسن، دوز جاذب و زمان تماس در فرایند جذب بررسی شد.

یافته‌ها: با توجه به نتایج آزمایش‌ها، بالاترین راندمان برای حذف آنتراسن در pH اسیدی بود. علاوه بر این، بیشترین راندمان حذف با ژئولیت خام در غلظت ۱۰ میلی گرم بر لیتر آنتراسن و با استفاده از ژئولیت اصلاح شده با نانوذرات آهن صفر ظرفیتی و اکسید مس در غلظت ۱ میلی گرم بر لیتر به دست آمد. از طرف دیگر، برای ژئولیت خام بین میزان دوز جاذب و درصد حذف ارتباطی مشاهده نشد؛ در حالی که بیشترین راندمان با کاربرد ۲۰ گرم بر لیتر ژئولیت اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن صفر ظرفیتی به عنوان جاذب حاصل گردید. در نهایت، بیشترین راندمان حذف با کاربرد ژئولیت‌ها در زمان ۱۲۰ دقیقه به دست آمد. مکانیسم ایزوترم جذب نیز از ایزوترم جذب Freundlich تبعیت نمود.

نتیجه‌گیری: راندمان حذف با استفاده از ژئولیت اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن، بیشتر از راندمان حذف با ژئولیت خام می‌باشد، اما بر خلاف کارایی بالا جهت سنجش غلظت باقی‌مانده با استفاده از روش اسپکتروفتومتری، برای بهینه نتایج با کاربرد روش Total organic carbon (TOC)، نتایج نشان می‌دهد که در مجموع کارایی حذف آنتراسن با استفاده از جاذب‌های مورد مطالعه کم است.

واژه‌های کلیدی: آنتراسن، ژئولیت، هیدروکربن‌های آروماتیک، دوز جاذب

ارجاع: رفیعی الحسینی نرگس، ابراهیمی افشین، برقی سید مهدی. ارزیابی کارایی حذف آنتراسن از محلول‌های آبی با استفاده از ژئولیت طبیعی در مقایسه با نوع اصلاح شده آن. مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۳۹۶؛ ۱۳ (۲): ۱۸۶-۱۸۰

پذیرش مقاله: ۱۳۹۶/۲/۱۳

دریافت مقاله: ۱۳۹۵/۶/۱۵

مقدمه

آب از موادی است که به فراوانی در طبیعت یافت می‌شود، اما بر خلاف این فراوانی، عواملی موجب محدود شدن آب قابل دسترس برای مصرف انسان می‌گردد. گسترش آلاینده‌های نفتی در محیط آبی، باعث ایجاد بیماری‌های خطرناکی از جمله سرطان و همچنین، ورود هیدروکربن‌های سبک و سنگین به آب می‌شود که در بین آن‌ها، هیدروکربن‌های آروماتیک حلقوی (Polycyclic aromatic hydrocarbons یا PAHs) به دلیل طولانی بودن تجزیه‌پذیری، از اهمیت خاصی برخوردار هستند (۱). آنتراسن با سه حلقه بنزنی و فرمول مولکولی $(C_{14}H_{10})$ (شکل ۱)، در رده ترکیبات سرطان‌زا برای انسان طبقه‌بندی شده است. این ترکیب سبب سمیت در پوست، سیستم‌های خون‌ساز، سیستم لنفاوی و دستگاه گوارش می‌شود؛ به طوری که راهنمای

کیفیت آب محیط زیست کانادا، مقدار استاندارد آنتراسن و بنزآنتراسن را برای PAHs به ترتیب ۰/۰۱۲ و ۰/۰۱۸ میکروگرم بر لیتر تعیین کرده است (۲). تاکنون از روش‌های مختلفی برای حذف این ترکیبات در منابع مختلف محیطی استفاده شده است که از آن جمله می‌توان به جاذب‌هایی مانند ژئولیت اشاره نمود. این ترکیبات بلورهای آلومینوسیلیکات هیدراته می‌باشند که کاتیون‌هایی از خانواده فلزات قلیایی و قلیایی خاکی دارند. از ویژگی‌های این ترکیبات، تبادلات کاتیونی و دارا بودن قابلیت برگشت‌پذیری جذب و دفع آب و ایجاد تغییر عمده در ساختمان مولکولی آن‌ها می‌باشد. در ژئولیت‌های طبیعی، آب در فضای ارتباطی بین حفرات بزرگ و کانال‌های داخلی و همچنین، اطراف کاتیون‌های جایگزین را فرا می‌گیرد که در صورت آگیری در حرارت‌های ۳۰۰ تا ۴۰۰ درجه سانتیگراد طی چند ساعت، مولکول‌های آن فعال می‌شود و از ناحیه

۱- کارشناس ارشد، گروه مهندسی آب و فاضلاب، دانشکده محیط زیست و انرژی، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد علوم و تحقیقات، تهران، ایران

۲- دانشیار، مرکز تحقیقات محیط زیست، پژوهشکده پیشگیری اولیه از بیماری‌های غیر واگیر و گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران

۳- استاد، گروه مهندسی آب و فاضلاب، دانشکده محیط زیست و انرژی، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد علوم و تحقیقات، تهران، ایران

Email: a_ebrahimi@hlth.mui.ac.ir

نویسنده مسؤول: افشین ابراهیمی

جهت اصلاح زئولیت با نانوذرات اکسید مس و آهن صفر ظرفیتی نیز ابتدا از یک ارلن حاوی ۱۰۰ سی سی آب مقطر پوشانده شده با پارافیلیم استفاده گردید و به منظور خارج ساختن گاز اکسیژن از آب، به مدت ۳۰ دقیقه در حمام اولتراسونیک قرار داده شد. سپس به منظور اطمینان بیشتر از خروج گاز اکسیژن، از کپسول گاز نیتروژن استفاده شد و با ورود گاز نیتروژن به داخل ارلن، گاز اکسیژن خارج گردید. در حین انجام این عمل، ابتدا ۰/۲۵۵ گرم اکسید مس و به همین اندازه آهن صفر ظرفیتی به ارلن اضافه شد. بعد از حدود ۳۰ دقیقه، ارلن به مدت ۱۵ دقیقه در حمام اولتراسونیک قرار داده شد و پس از خاموش شدن دستگاه، ۹/۵۵ گرم کلینوپتیلولیت به آن اضافه گردید. سپس محلول مورد نظر به مدت ۲ ساعت و با سرعت ۲۰۰ دور در دقیقه روی Shaker قرار گرفت و پس از آن، محلول در دمای ۱۴۰ درجه سانتی گراد به مدت ۲۱ ساعت قرار داده شد تا خشک گردید؛ به طوری که نانوذرات حدود ۵/۱ درصد وزنی زئولیت بودند. در نهایت، با حرارت دادن زئولیت نانوذره دار در کوره با دمای ۳۰۰ درجه سانتی گراد، عمل فعال سازی زئولیت انجام شد که این عمل باعث گردید آب موجود در زئولیت ها به طور کامل از آن خارج شود (۸). زئولیت های آماده سازی شده به این روش تا زمان آزمایش ها زیر دسیکاتور (Dessiccateur) نگهداری شد. متغیرهای مورد بررسی در این فرایند و در طی انجام آزمایش ها شامل pH، زمان تماس، غلظت های اولیه زئولیت خام و زئولیت اصلاح شده و غلظت های اولیه آنتراسن بود.

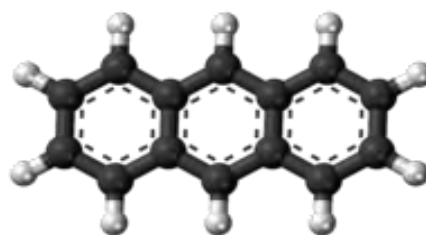
آزمایش های این مطالعه به روش یک متغیر در زمان One at the time با ثابت نگهداشتن سه شاخص و متغیر بودن یک شاخص انجام گرفت. لازم به ذکر است که تمام مراحل آزمایش ها برای دو نوع زئولیت به صورت مشابه تکرار شد. محدوده pH از ۳ تا ۱۱، دوز بهینه جاذب از ۶ تا ۳۰ گرم بر لیتر و زمان تماس از ۲۰ تا ۱۲۰ دقیقه در نظر گرفته شد، اما با توجه به آزمایش های اولیه انجام شده، غلظت محلول های آنتراسن برای زئولیت خام تا ۱۰ میلی گرم بر لیتر و برای زئولیت اصلاح شده تا غلظت ۲۰ میلی گرم بر لیتر آزمایش شد. جهت تعیین منحنی استاندارد، محلول های آنتراسن با غلظت هایی در محدوده ۱ تا ۲۰ میلی گرم بر لیتر تهیه شد و مقدار جذب توسط دستگاه اسپکتروفتومتر (مدل DR5000، آمریکا) در طول موج ۳۸۰ نانومتر قرائت گردید و بر اساس آن مقدار R^2 برابر با ۰/۹۹۳۸ به دست آمد (تکرارپذیری برای هر نمونه آزمایش چهار بار در نظر گرفته شد). درصد حذف آنتراسن از محلول نیز با استفاده از رابطه ۱ مورد محاسبه قرار گرفت که در آن C_0 و C_e به ترتیب غلظت اولیه و غلظت تعادلی آنتراسن در محلول بر حسب میلی گرم بر لیتر بود.

$$\text{رابطه ۱} \quad [(C_0 - C_e)/C_0] \times 100 = \text{درصد حذف آنتراسن.}$$

یافته ها

پراش سنجی اشعه ایکس (X-ray powder diffraction یا XRD): دستگاهی برای اندازه گیری فواصل صفحات اتمی و شناسایی ساختمان مواد است که نتیجه آن، تعیین نوع کانی های تشکیل دهنده نمونه می باشد. جهت تعیین نشاندن شدن نانوذرات بر سطح زئولیت، از نانوذرات اکسید مس و آهن استفاده گردید (شکل ۲). با بررسی شکل، قسمت مربوط به مس و آهن در منحنی بالا که مربوط به زئولیت اصلاح شده است، مشاهده می شود که در منحنی پایین (زئولیت خام) وجود ندارد.

عرضی از یکدیگر جدا می گردد؛ به طوری که ابعاد آن برای عبور از کانال های ورودی که آب خود را از دست داده اند و در سطح داخلی آمادگی جذب را دارند، مناسب می شود. بنابراین، خاصیت بارز اغلب زئولیت های دارای ساختمان بلوری، ممانعت از عبور مولکول های بیش از حد بزرگی است که توانایی عبور از کانال های ورودی را ندارند و در واقع، نوعی غربال مولکولی صورت می گیرد (۳).



شکل ۱. ساختمان حلقه ای آنتراسن

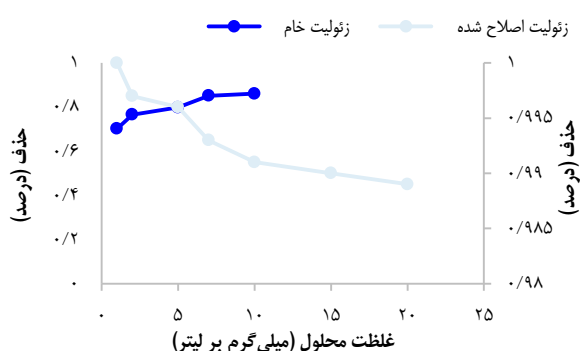
نتایج مطالعات اخیر نشان داده است که استفاده از جاذب ها در حذف هیدروکربن های آروماتیک از محلول های آبی مؤثر می باشد. تحقیق Hernandez و همکاران در مکزیک به بررسی کمی جذب هیدروکربن های آروماتیک روی کلینوپتیلولیت آلومینیوم زدایی شده پرداخت. نتایج نشان دهنده توانایی بیشتر جذب کلینوپتیلولیت دو بار آلومینیوم زدایی شده برای آلاینده های فوق بود (۴). Yang و همکاران نیز در پژوهش خود گزارش کردند که آروماتیک های معطر مداوم آلوده، می توانند به طور مؤثری با گرافن حذف شوند (۵). Lemic و همکاران به این نتیجه رسیدند که نمونه زئولیت با پوشش تک لایه ای سطحی (OZII75)، برای جذب PAHs بسیار مؤثر است (۶). نتایج تحقیق Asenjo و همکاران در کشور اسپانیا مشخص کرد که کربن فعال آماده شده با سطح زیاد و دارای ترکیبی از منافذ ریز و درشت، برای جذب ترکیبات آروماتیک در فاز آبی مناسب است (۷).

در پژوهش حاضر با هدف گسترش یک فن آوری مقرون به صرفه و مؤثر و اهمیت اثرات شناخته شده مواجهه با این ترکیبات از طریق آب شرب، سعی شد با استفاده از زئولیت خام در مقایسه با نوع اصلاح شده آن، میزان آنتراسن در حد استاندارد و مناسبی برای آب آشامیدنی پایین آورده شود و میزان کارایی زئولیت ها بر راندمان عمل و نیز تأثیر شاخص های گوناگون مانند زمان تماس، pH، دوز جاذب و غلظت آنتراسن بر آن مورد بررسی قرار گیرد.

روش ها

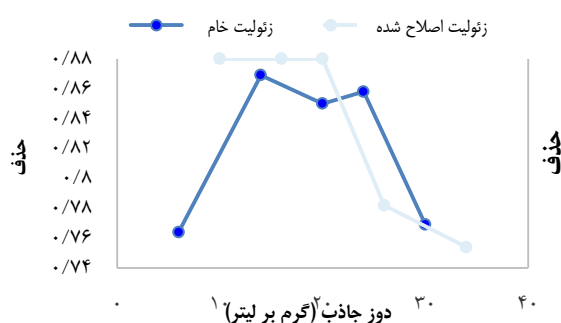
این مطالعه از نوع تجربی در مقیاس آزمایشگاهی بود که در آن از زئولیت طبیعی کلینوپتیلولیت حاصل از منابع معدنی ایران (سمنان) به عنوان جاذبی برای حذف ترکیب آنتراسن از محلول های آبی استفاده شد. جهت دانه بندی زئولیت، از سرندهای ۱/۵ و ۰/۶ میلی متری استفاده گردید. زئولیت های دانه بندی شده چندین بار توسط آب مقطر شسته شد. جهت افزایش کارایی جذب کلینوپتیلولیت و افزایش اندازه منافذ آن، زئولیت مورد نظر با کمک اسید کلریدریک ۱ نرمال در دمای ۵۰ درجه سانتی گراد طی دو مرحله ۶ ساعته اسیدشویی گردید و سپس با استفاده از آب مقطر چندین بار شستشو داده شد و در دمای ۱۸۰ درجه سانتی گراد خشک گردید (۸).

تأثیر غلظت اولیه آنتراسن در حذف آنتراسن از محلول‌های آبی با استفاده از زئولیت خام و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن: بهترین راندمان با استفاده از زئولیت خام به عنوان جاذب، در غلظت ۱۰ میلی گرم بر لیتر به دست آمد. غلظت‌های بالاتر برای زئولیت اصلاح شده در نظر گرفته شد که با توجه به نتایج راندمان‌های به دست آمده، غلظت محلول مورد مطالعه برای مراحل بعدی، ۲۰ میلی گرم بر لیتر برآورد گردید. یافته‌ها نشان داد که تفاوت آماری معنی‌داری بین دو حالت وجود نداشت (شکل ۴).

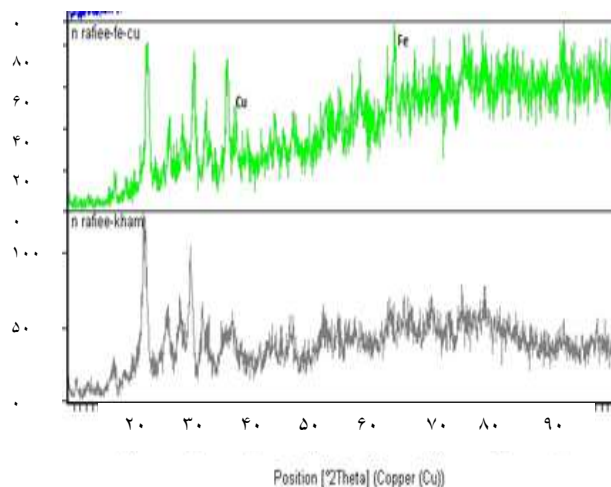


شکل ۴. بررسی تأثیر غلظت اولیه آنتراسن بر کارایی حذف آن از محلول آبی با استفاده از زئولیت خام و زئولیت اصلاح شده با نانوذرات مس و آهن ($pH = 7$ ، دوز جاذب = ۱۴ میلی گرم بر لیتر و زمان تماس = ۶۰ دقیقه)

مقدار دوز بهینه جاذب در حذف آنتراسن از محلول‌های آبی با استفاده از زئولیت خام و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن: با توجه به یافته‌های حاصل شده، بهترین راندمان با به کارگیری ۱۴ گرم بر لیتر زئولیت خام و ۲۰ گرم بر لیتر زئولیت اصلاح شده به عنوان جاذب به دست آمد. با این حال، مشخص گردید که تفاوت‌ها از لحاظ آماری معنی‌دار نبود ($P > 0.05$) (شکل ۵).

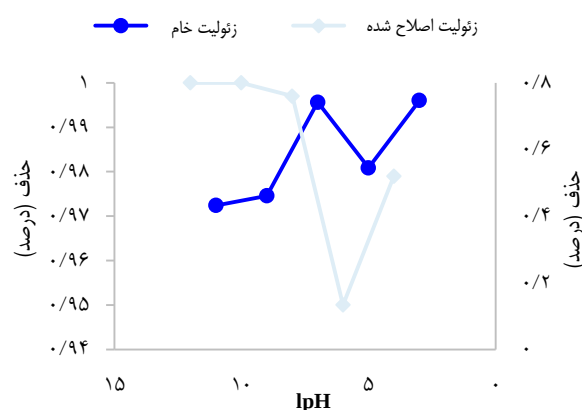


شکل ۵. بررسی تأثیر دوز جاذب بر کارایی حذف آنتراسن از محلول آبی با استفاده از زئولیت خام ($pH = 7$ ، غلظت اولیه آنتراسن = ۱۰ میلی گرم بر لیتر و زمان تماس = ۶۰ دقیقه) و زئولیت اصلاح شده با نانوذرات آهن و اکسید مس ($pH = 7$ ، غلظت اولیه آنتراسن = ۲۰ میلی گرم بر لیتر و زمان تماس = ۶۰ دقیقه)



شکل ۶. XRD (X-ray powder diffraction) زئولیت خام و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن

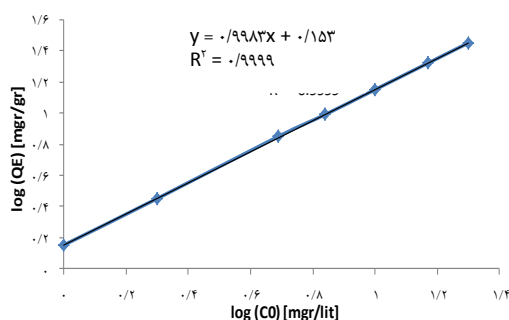
اثر pH بر درصد حذف آنتراسن از محلول‌های آبی با استفاده از زئولیت خام و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن: طبق یافته‌های به دست آمده در آزمایش‌های فوق با استفاده از زئولیت خام، بیشترین راندمان حذف در pHهای ۳ و ۷ و برای زئولیت اصلاح شده در pHهای ۳ و ۵ به دست آمد که به دلیل تفاوت بسیار کم بین راندمان در دو حالت و مناسب بودن $pH = 7$ برای محلول‌های مائی، pH بهینه ۷ انتخاب گردید. با مطالعه و بررسی آماری در نرم‌افزار SPSS نسخه ۲۰ (version 20, IBM Corporation, Armonk, NY)، $P > 0.05$ حاصل گردید و بیان کننده آن بود که بین نتایج حاصل از شاخص مربوط در شرایط مختلف، اختلافی وجود نداشت و تفاوت‌ها از لحاظ آماری معنی‌دار نبود (شکل ۳).



شکل ۳. بررسی اثر pH بر کارایی حذف آنتراسن از محلول آبی با استفاده از زئولیت خام و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن (غلظت اولیه آنتراسن = ۲ میلی گرم بر لیتر، دوز جاذب = ۱۴ میلی گرم بر لیتر و زمان تماس = ۶۰ دقیقه)

ایزوترم جذب: ایزوترم جذب به منظور تعریف جرم جذب شده از ماده جذب شونده به ازای واحد جرم ماده جاذب استفاده می‌شود. در مطالعه حاضر از مدل‌های ایزوترم Freundlich و Langmuir برای رسم داده‌های جذب استفاده گردید.

ایزوترم جذب Freundlich و Langmuir با به کار بردن
زئولیت خام و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن: بررسی ایزوترم‌های جذب برای فرایند جذب آنتراسن با استفاده از زئولیت خام و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن بیانگر آن بود که این فرایندها از ایزوترم جذب Freundlich تبعیت می‌کنند (شکل ۸) (۹).



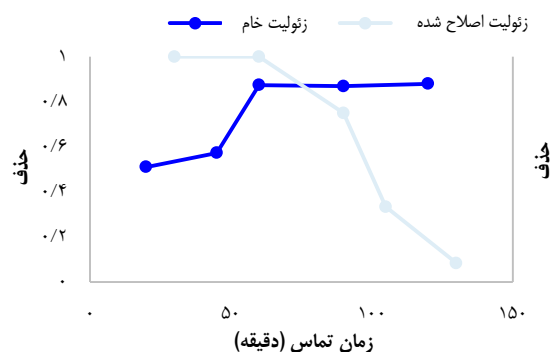
شکل ۸. ایزوترم جذب آنتراسن با استفاده از زئولیت اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن در حذف آنتراسن (دوز جاذب = ۲۰ گرم بر لیتر، زمان تماس = ۱۲۰ دقیقه، غلظت محلول آنتراسن = ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر و pH = ۷)

بحث

در زئولیت‌های اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و نانوذرات آهن صفر ظرفیتی، نانوذرات آهن به عنوان کاهنده و اکسید مس به عنوان اکسند باعث می‌شود که فرایند اکسیداسیون و احیا به طور هم‌زمان و به نسبت شدیدتری نسبت به زئولیت خام جهت حذف آلاینده عمل نماید (۱۰). این عمل می‌تواند با وجود بخار آب و درجه حرارت بالا، موجب ایجاد رادیکال‌های آزاد OH و H گردد که این رادیکال‌ها با واکنش با آلاینده‌ها باعث تجزیه آن‌ها می‌گردد (۱۱). نتایج مطالعه Zhang نشان داد که با کاربرد نانوذرات آهن صفر ظرفیتی جهت تجزیه ترکیبات آلی در آب، این نانوذرات با دادن الکترون، به Fe^{2+} تبدیل می‌شوند (۱۰). این تبدلات در جهت اکسیداسیون کامل آلاینده‌های خانواده بنزن و از جمله آنتراسن، باعث تبدیل این ترکیب به CO_2 و H_2O می‌شود.

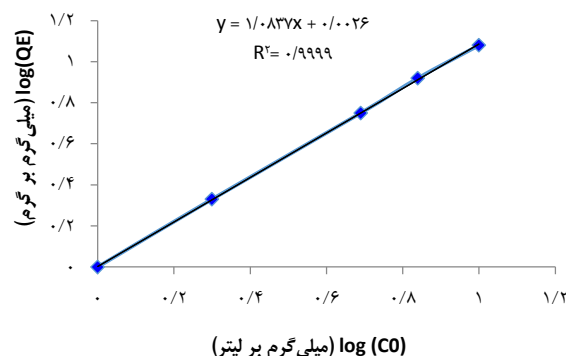
تصاویر گرفته شده از سطح دانه‌های زئولیت نانوذره‌دار و مطالعات نشان دهنده تبدیل شدن نانوذرات به حالات اکسید و احیا شده آن‌ها می‌باشد. این امر حاکی از فعالیت اکسیداسیون و احیای نانوذرات در تماس با آلاینده‌ها می‌باشد. بررسی اثر pH بر روی درصد حذف آنتراسن با استفاده از زئولیت خام می‌تواند بر اساس ساختمان کریستالی آلومینوسیلیکات‌ها و ساختار واحدهای تتراهیدرال SiO_4 و AlO_4 که به وسیله اتم‌های اکسیژن پیوند دارند، قابل توجیه باشد. این مواد یکی از مبادله کننده‌های غیر آلی سنتتیک می‌باشند و بر

تأثیر زمان تماس در حذف آنتراسن از محلول‌های آبی با استفاده از زئولیت خام و اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن: با توجه به نتایج بررسی تأثیر زمان تماس بر حذف آنتراسن از محلول آبی، مقدار بهینه زمان تماس با استفاده از زئولیت خام، ۶۰ دقیقه و با استفاده از زئولیت اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن، ۱۲۰ دقیقه به دست آمد. یافته‌ها نشان داد که تفاوت‌ها از لحاظ آماری معنی‌دار نبود (شکل ۶).



شکل ۶. بررسی تأثیر زمان تماس در حذف آنتراسن از محلول آبی با استفاده از زئولیت خام (pH = ۷، غلظت اولیه آنتراسن = ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر و دوز جاذب = ۱۴ گرم بر لیتر) (قسمت الف) و زئولیت اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن (pH = ۷، غلظت اولیه آنتراسن = ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر و دوز جاذب = ۲۰ گرم بر لیتر) (قسمت ب)

نتایج آنالیز Total organic carbon (TOC): با توجه به نتایج به دست آمده از دستگاه TOC-VCSH، مقدار راندمان حذف با به کار بردن زئولیت خام به عنوان جاذب در شرایط بهینه، ۱۷/۳۳ درصد و با به کار بردن زئولیت اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن به عنوان جاذب، ۳۰/۲۷ درصد بود (شکل ۷).



شکل ۷. ایزوترم جذب Freundlich با استفاده از زئولیت خام در حذف آنتراسن (دوز جاذب = ۱۴ گرم بر لیتر، زمان تماس = ۱۲۰ دقیقه، غلظت محلول آنتراسن = ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر و pH = ۷)

این حال، در مورد آنتراسن و تأثیر دوز جاذب با استفاده از زئولیت اصلاح شده با اکسید مس و آهن، می‌توان گفت که با افزایش دوز جاذب، درصد حذف آنتراسن نیز افزایش می‌یابد؛ چرا که با افزایش مقدار جاذب در محلول، تعداد محل‌های جذب قابل دسترسی که در عملیات جذب شرکت می‌کنند نیز افزایش می‌یابد و امکان جذب آنتراسن موجود در محلول با جاذب بیشتر است. بنابراین، درصد جذب بیشتر می‌شود (۵). نتایج مطالعه بینا و همکاران نشان داد که با افزایش غلظت نانوتیوب کربنی در محلول، بر میزان جذب بنزن و تولوئن افزوده می‌شود (۱۳). نتایج بررسی زمان تماس بر حذف آنتراسن از محلول آبی با استفاده از نوع زئولیت نشان می‌دهد که تفاوت چندانی در راندمان حذف بین زمان‌های تماس مختلف وجود ندارد. با این حال، می‌توان گفت که با افزایش زمان تماس، میزان جذب آنتراسن افزایش، اما سرعت جذب آنتراسن کاهش می‌یابد که دلیل کاهش سرعت جذب با افزایش زمان تماس را می‌توان در اشباع شدن تدریجی نقاط جذب موجود بر سطح جاذب‌ها دانست (۵).

در نهایت، با سنجش غلظت باقی‌مانده به روش اسپکتروفتومتری، کارایی بالایی در حذف آنتراسن مشاهده گردید و نتایج نشان داد که راندمان حذف آنتراسن با استفاده از زئولیت اصلاح شده با نانوذرات بیشتر از راندمان حذف با زئولیت خام می‌باشد. با این حال، نتایج آنالیز TOC برای بهینه نتایج نشان داد که در مجموع کارایی حذف آنتراسن با استفاده از جاذب‌های مورد مطالعه تا حدودی کم است.

نتیجه‌گیری

بر اساس نتایج به دست آمده، راندمان حذف با استفاده از زئولیت‌های اصلاح شده با نانوذرات اکسید مس و آهن بیشتر از راندمان حذف با زئولیت خام می‌باشد، اما بر خلاف کارایی بالا برای سنجش غلظت باقی‌مانده با استفاده از روش اسپکتروفتومتری، برای بهینه نتایج با کاربرد روش TOC، نتایج حاکی از آن بود که در مجموع کارایی حذف آنتراسن با استفاده از دو نوع جاذب مورد استفاده در این پژوهش کم می‌باشد.

تشکر و قدردانی

مطالعه حاضر برگرفته از پایان‌نامه کارشناسی ارشد با شماره ۲۹۴۱۱۷، مصوب دانشکده محیط زیست و انرژی گروه مهندسی محیط زیست دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم تحقیقات تهران می‌باشد که با حمایت مرکز تحقیقات محیط زیست دانشگاه علوم پزشکی اصفهان انجام گردید.

References

- Li Q, Kang C, Zhang C. Waste water produced from an oilfield and continuous treatment with an oil-degrading bacterium. *Process Biochem* 2005; 40(2): 873-7.
- Canadian Council of Ministers of the Environment. Canadian water quality guidelines for the protection of aquatic life [Online]. [cited 1999]; Available from: URL: www.ccme.ca/files/ceqg/en/backup/222-080516095450.pdf
- Ebrahimi A, Movahediyar Atar H. Evaluation of natural zeolite and synthetic resins for the removal of nickel, zinc and copper ions from industrial waste. *Pajouhesh Dar Pezeshki* 2003; 8(4): 75-80. [In Persian].
- Hernandez MA, Corona L, Gonzalez AI, Rojas F, Lara VH, Silva F. Quantitative study of the adsorption of aromatic hydrocarbons (benzene, toluene, and p-xylene) on dealuminated clinoptilolites. *Ind Eng Chem Res* 2005; 44(9): 2908-16.
- Yang X, Li J, Wen T, Ren X, Huang Y, Wang X. Adsorption of naphthalene and its derivatives on magnetic graphene composites and the mechanism investigation. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp* 2013; 422: 118-25.

اساس این ساختار سه بعدی، منافذ کوچکی دارند که یون‌های قابل تبادل در آن قرار گرفته است و واکنش‌های تبادل یونی در آن اتفاق می‌افتد. سیلیکو چهار ظرفیتی و آلومینیوم سه ظرفیتی که در زئولیت‌ها Si^{4+} جانشین Al^{3+} می‌شود، باعث به وجود آمدن بار منفی در سطح زئولیت می‌گردد که در شرایط اسیدی محلول‌ها و وجود یون‌های H^+ بر سطح زئولیت می‌تواند موجب جذب این یون بر سطح جاذب شود. در این حالت، وجود خلل و فرج موجود در ساختمان زئولیت نیز منجر به جذب آنتراسن می‌شود. در زئولیت‌های اصلاح شده با اکسید مس و آهن، اکسید مس به عنوان عامل اکسنده و آهن به عنوان الکترون دهنده در سطح زئولیت محسوب می‌شود. عامل H^+ در حالت اسیدی نیز به عنوان عوامل گیرنده الکترون عمل می‌نماید. در این حالت، هر دو نانوذره به عنوان کاتالیزور عمل می‌کنند و وجود عوامل مثبت و منفی کافی به گونه‌ای است که در حالت اسیدی، باعث تجزیه آلاینده و در نتیجه، حذف آن از محلول می‌گردد.

جهت حذف ترکیبات آلی فرار (Volatile organic compounds یا VOCs) در مطالعه Zou و همکاران، از نانوذره اکسید تیتانیوم بر روی اکسید سیلیسیم متخلخل استفاده شد و نتایج نشان داد که تولوئن به عنوان شاخص این ترکیبات، با مکانیسم جذب و کاتالیسم حذف می‌شود؛ به طوری که در هوای خروجی آب و دی‌اکسید کربن که محصول تجزیه ترکیبات آلی می‌باشند، مشاهده شده است (۱۲). با این حال، می‌توان گفت که هر دو مکانیسم جذب و کاتالیز می‌تواند بر راندمان حذف آلاینده در این شرایط مؤثر باشد.

نتایج تأثیر غلظت اولیه آنتراسن بر میزان جذب نیز با استفاده از دو نوع زئولیت مورد بررسی قرار گرفت. در مورد حذف این آلاینده با زئولیت خام می‌توان گفت که با افزایش غلظت اولیه محلول آنتراسن، درصد حذف بیشتر می‌شود. در واقع، با افزایش غلظت اولیه محلول آنتراسن، مقدار آنتراسن جذب شده در واحد وزن زئولیت (مقدار q) به طور مؤثری افزایش می‌یابد. در نتیجه، می‌توان نتیجه گرفت که اگر مقدار جاذب بدون تغییر باقی بماند، مقدار آنتراسن جذب شده روی جاذب با افزایش غلظت اولیه آنتراسن موجود در محلول نیز افزایش پیدا می‌کند که این امر به دلیل افزایش نیروی محرکه گرادین غلظت یا غلظت اولیه بالاتری از آنتراسن می‌باشد. در غلظت‌های پایین‌تر، نسبت تعداد اولیه مول‌های آنتراسن به مکان‌های جذب در دسترس کمتر است و مقداری از جذب، مستقل از غلظت اولیه خواهد بود. در مورد حذف این آلاینده با استفاده از زئولیت اصلاح شده با اکسید مس و آهن صفر ظرفیتی نیز می‌توان گفت که با افزایش غلظت اولیه محلول آنتراسن، درصد حذف کمتر می‌شود که این امر می‌تواند به دلیل اشباع شدن تدریجی مکان‌های جذب با استفاده از آنتراسن باشد و بدین ترتیب سرعت جذب کمتر و در نتیجه، راندمان حذف کمتر می‌گردد. با

6. Lemic J, Tomasevic-Canovic M, Adamovic M, Kovacevic D, Milicevic S. Competitive adsorption of polycyclic aromatic hydrocarbons on organo-zeolites. *Microporous Mesoporous Mater* 2007; 105(3): 317-23.
7. Asenjo NG, Alvarez P, Granda M, Blanco C, Santamaria R, Menendez R. High performance activated carbon for benzene/toluene adsorption from industrial wastewater. *J Hazard Mater* 2011; 192(3): 1525-32.
8. Rostami R, Jonidi Jafari A, Rezaei Kalantari R, Gholami M, Esrafil A. Benzene-Toluene-Xylene (BTX) removal from polluted airflow by combined filter of zero valence iron and copper oxide nanoparticles on Iranian amended clinoptilolite bed. *J Babol Univ Med Sci* 2017; 14(1): 23-9. [In Persian].
9. Owabor CN, Ogbeide SE, Susu AA. Adsorption and desorption kinetics of naphthalene, anthracene and pyrene in soil matrix. *Pet Sci Technol* 2010; 28(5): 504-14.
10. Zhang W. Nanoscale Iron Particles for Environmental Remediation: An Overview. *J Nanopart Res* 2003; 5(3): 323-32.
11. Goel RK, Flora JRV, Ferry J. Mechanisms for naphthalene removal during electrolytic aeration. *Water Res* 2003; 37(4): 891-901.
12. Zou L, Luo Y, Hooper M, Hu E. Removal of VOCs by photocatalysis process using adsorption enhanced TiO₂-SiO₂ catalyst. *Chem Eng Process* 2006; 45(11): 959-64.
13. Bina B, Amin MM, Rashidi A, Pourzamani H. Benzene and toluene removal by carbon nanotubes from aqueous solution. *Archives of Environmental Protection* 2012; 38(1): 3-25.

Evaluation of the Removal Efficiency of Anthracene from Aqueous Solution Using Natural Zeolite Compared to Modified Zeolite

Narges Rafieal-Hosseini¹, Afshin Ebrahimi², Seyed Mehdi Borghei³

Original Article

Abstract

Background: Anthracene is an aromatic hydrocarbon recognized as a component that is carcinogenic to humans. Components known as zeolite have been used to remove contaminants, including aromatic hydrocarbons. The aim of this study was to compare the performance of natural zeolites and zeolites modified by copper and iron oxide nanoparticles in the removal of anthracene from water.

Methods: In this study, with the use of natural and modified zeolites, anthracene removal process was evaluated and uptake of the desired solution was read using ultraviolet-visible (UV/Vis) spectrometry. The effect of pH, initial concentration of anthracene, adsorbent dose, and contact time in the adsorption process was also studied.

Findings: According to the results, the highest efficiency in the removal of anthracene was obtained in acidic pH. In addition, the maximum removal was achieved by raw zeolite at a concentration of 10 mg of anthracene and by zeolite modified with zerovalent iron and copper oxide nanoparticles at a concentration of 1 ppm. Finally, the maximum removal using zeolite was achieved at 120 minutes. Moreover, the mechanism of adsorption isotherm obeyed the Freundlich adsorption isotherm.

Conclusion: According to the results obtained, the removal efficiency of zeolites modified with copper oxide and iron nanoparticles was higher than that of raw zeolite. In spite of the high performance in measuring the residue concentration using spectrophotometry to optimize the results through the application of total organic carbon (TOC), the results showed that the total removal of anthracene using the studied adsorbents was low.

Keywords: Anthracenes, Zeolite, Aromatic hydrocarbon, Adsorption

Citation: Rafieal-Hosseini N, Ebrahimi A, Borghei SM. Evaluation of the Removal Efficiency of Anthracene from Aqueous Solution Using Natural Zeolite Compared to Modified Zeolite. J Health Syst Res 2017; 13(2): 180-6.

1- Department of Water and Wastewater Engineering, School of Environmental and Energy, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

2- Associate Professor, Environment Research Center, Research Institute for Primordial Prevention of Non-communicable Diseases AND Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

3- Professor, Department of Water and Wastewater Engineering, School of Environmental and Energy, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

Corresponding Author: Afshin Ebrahimi, Email: a_ebrahimi@hlth.mui.ac.ir