

## بررسی کارایی غشاء پوسته تخم مرغ در جذب فنل از محلول‌های مائی

هستی دارائی<sup>۱\*</sup>، محمد نوری سپهر<sup>۱</sup>، حسین کمالی<sup>۲</sup>، فاطمه دارائی<sup>۳</sup>

۱. دانشگاه علوم پزشکی و خدماتی درمانی البرز، دانشکده بهداشت، گروه مهندسی بهداشت محیط، کرج، ایران ۲. مرکز تحقیقات ایمنی فرآورده‌های طبیعی و گیاهان دارویی، دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی، بجنورد، ایران ۳. کارشناس ارشد صنایع غذایی، وزارت کشاورزی، سازمان مرکزی و اداره تعاون روستایی  
\* نویسنده مسئول. تلفن: ۰۲۶ ۳۴۶۴۳۲۵۴، فکس: ۰۲۶ ۳۴۶۴۴۳۲۹، ایمیل: hasti.daraei@yahoo.com

### چکیده

**زمینه و هدف:** فنل از جمله آلاینده‌های سمی در فاضلاب‌های صنعتی می‌باشد که می‌تواند بر روی تصفیه بیولوژیکی فاضلاب تاثیر نامطلوب بگذارد. روش‌های معمول برای حذف این فلز از فاضلاب اغلب گران قیمت هستند، بنابراین نیاز به یک روش ارزان قیمت و در دسترس برای تصفیه پساب وجود دارد. هدف از تحقیق حاضر توسعه یک متد اقتصادی، سریع و در دسترس برای حذف آلاینده‌های آلی سمی از فاضلاب با استفاده از غشاء پوست تخم مرغ است.

**روش کار:** در این مطالعه تاثیر پارامترهای گوناگون همچون pH، زمان تماس، دما، مقدار غشاء و غلظت اولیه فنل بررسی شد. سپس مدل مرکب مرکزی (CCD) جهت ارزیابی تاثیر این متغیرها به کار گرفته شد. همچنین مشخصات شیمیایی و فیزیکی غشاء با استفاده از آنالیز SEM و XRF بررسی گردید.

**یافته ها:** نتایج نشان داد که مقادیر بهینه برای pH، مقدار غشاء، زمان تماس، دما و غلظت اولیه فنل به ترتیب ۳/۶۳، ۳/۷۸ گرم، ۱۱۵/۵ دقیقه، ۲۰ درجه سانتیگراد و ۵ میلی‌گرم در لیتر به دست آمد. همچنین نتایج آنالیز CCD نشان داد که pH و غلظت فنل پارامترهای اساسی موثر در راندمان هستند.

**نتیجه گیری:** نتایج نشان داد که پوست تخم مرغ بعنوان یک ماده زائد به دست آمده از صنایع غذایی، می‌تواند به عنوان یک جاذب موثر برای حذف فنل و دیگر آلاینده‌های آلی استفاده شود.

**واژه‌های کلیدی:** غشاء، فنل، جذب، پوست تخم مرغ

پذیرش: ۹۲/۸/۲۱

دریافت: ۹۲/۴/۸

### مقدمه

حضور ترکیبات فنلی در محیط می‌تواند مشکلات زیست محیطی فراوانی همچون طعم و بوی نامطلوب، سمیت برای ارگان‌های بدن به وجود بیاورد (۳-۶). به همین دلیل، سازمان حفاظت محیط زیست امریکا فنل را به عنوان یکی از آلاینده‌های اولویت‌دار معرفی و غلظت آن را در آب آشامیدنی باید در حد میکروگرم در لیتر باشد (۷). فنل و مشتقات آن معمولاً به راحتی از آب حذف نمی‌شوند. معمولاً تکنیک‌هایی که برای حذف آنها استفاده

امروزه به دلیل افزایش فعالیت‌های صنعتی، مقادیر بسیار زیادی از آلاینده‌های آلی از جمله فنل و مشتقات آن به درون آب‌های سطحی تخلیه می‌شوند (۱). این آلاینده‌های آلی به طور گسترده‌ای در نتیجه فعالیت‌های صنعتی همچون پتروشیمی، ساخت رنگ، پلاستیک، حشره‌کشها و غیره تولید می‌شوند (۲). فنل یکی از انواع آلاینده‌های آروماتیک بوده که دارای سمیت و قابلیت انحلال بالا در آب می‌باشد. بنابراین

تست‌های SEM<sup>۱</sup> و XRF<sup>۲</sup> بر روی این جاذب‌ها انجام شد.

#### آزمایشات شیمیایی

تمامی محلول‌ها و نمونه‌ها به‌صورت سنتتیک و مطابق با متدهای کتاب استاندارد متد ۲۰۰۳ آماده‌سازی گردید. محلول استوک با غلظت ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر از فنل تهیه گردید. غشاهای خشک‌شده در مقادیر گوناگون به بطری‌های ۲۵۰CC با غلظت‌های گوناگون فنل اضافه شدند. آزمایشات در پارامترهای گوناگونی همچون زمان تماس (۱۰، ۴۰، ۷۰، ۱۰۰ و ۱۳۰ دقیقه)، غلظت فنل (۵، ۱۰، ۱۵، ۲۰ و ۲۵ میلی‌گرم در لیتر)، pH (۲، ۴، ۶، ۸ و ۱۰)، دما (۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰ و ۶۰) و مقدار جاذب (۰/۵، ۱/۵، ۲/۵، ۳/۵ و ۴/۵ گرم) انجام شد. در نهایت غلظت فنل باقیمانده با استفاده از دستگاه DR-5000 تعیین شد. تعداد نمونه‌ها و غلظت آنها توسط نرم‌افزار پیشنهاد داده شد. همچنین داده‌ها با استفاده از روش سطح پاسخ<sup>۳</sup> (RSM) آنالیز گردیدند. راندمان حذف فنل و توانایی جذب این آلاینده آلی مطابق معادله (۱) محاسبه گردید:

$$\text{Residual phenol concentration} = C \times D \times (1000/E) \times B \quad (1)$$

که در اینجا C: غلظت استاندارد فنل، D: غلظت فنل جذب شده در نمونه، E: غلظت فنل استاندارد جذب شده و B: ml نمونه اصلی بکار رفته شده.

#### طرح آزمایشی و آنالیز آماری

در این تحقیق از روش آماری از روش سطح پاسخ استفاده شد. بنابراین کلیه آزمایشات مربوط به غشاء پوست تخم مرغ در حذف فنل بر اساس طراحی آزمایش RSM با ۵ سطح و ۵ متغیر انجام شد و نوع طراحی به‌صورت مدل مرکب مرکزی<sup>۴</sup> می‌باشد. روش سطح پاسخ مجموعه‌ای از تکنیک‌های آماری

می‌شود، شامل: جذب با کربن فعال، اکسیداسیون شیمیایی، تبادل یونی، تخریب نوری و غیره می‌باشد (۸). اخیراً به‌دلیل هزینه بالای این روش‌ها، اکثر محققین استفاده از مواد طبیعی با پتانسیل جذب و هزینه کم را مورد مطالعه قرار دادند. جاذب‌های ارزان‌قیمت جاذب‌هایی هستند که به فراوانی یافت شده و در دسترس می‌باشند و هزینه آماده‌سازی آنها بسیار پایین می‌باشد. این جاذب‌ها عمدتاً از مواد زائد حاصل از فعالیت‌های صنعتی و بخصوص کشاورزی تهیه می‌شوند (۹). از دهه گذشته استفاده از بیوجاذب‌ها یا جاذب‌های زیستی برای حذف فلزات سنگین و آلاینده‌های آلی به‌دلیل داشتن پتانسیل موثر و اقتصادی برای تصفیه فاضلاب آلوده به فلزات سنگین در سطح وسیعی مورد مطالعه قرار گرفته است (۱۰). در حقیقت فرایند جذب به‌عنوان یکی از تکنیک‌های بسیار موثر، اقتصادی و طبیعی به‌طور

#### روش کار

##### آماده‌سازی جاذب

در ابتدا زائدات پوست تخم مرغ از کارگاه‌های شیرینی‌پزی جمع‌آوری شدند. پوسته‌های تخم مرغ چندین بار با آب مقطر شسته شده و در دمای اتاق خشک شدند. سپس غشاهای جدا گردید و نمونه‌ها مجدداً با آب دیونیزه شسته شدند. در مرحله بعد، غشاهای در دمای ۴۰ °C برای مدت ۳ ساعت خشک شدند. در نهایت جاذب به‌دست‌آمده با استفاده از دستگاه خردکن، آسیاب شده و پودرهای به‌دست‌آمده جهت تعیین اندازه از الک‌های ۱۰، ۲۰ و ۵۰ مش عبور داده شدند. مش‌بندی جاذب نشان داد که غشاء پوست تخم مرغ در حد ۱۰ مش به‌دست آمد. در نهایت غشاء تا زمان انجام آزمایشات در دسیکاتور نگهداری شدند. پس از آماده‌سازی جاذب‌ها به‌منظور تعیین اندازه پوست تخم مرغ و غشاء آن، شناسایی ساختار میزان درجه خلوص و همچنین تعیین گروه‌های عاملی در آنها

<sup>1</sup> Scanning Electron Microscopy

<sup>2</sup> X-ray Fluorescence

<sup>3</sup> Response Surface Method

<sup>4</sup> Central Composite Dising

$$Y = \beta_0 + \sum \beta_j \cdot X_j + \sum \beta_{jj} \cdot X_j^2 + \sum \beta_{jk} \cdot X_j \cdot X_k \quad (2)$$

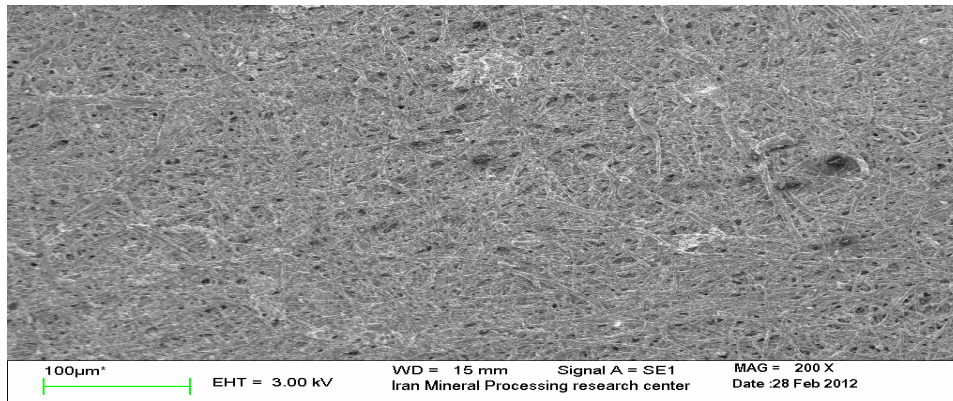
که در آن؛  $Y$ : راندمان پاسخ پیش‌بینی شده،  $\beta_0$ : نقطه تقاطع،  $\beta_j$ : ضریب خطی،  $\beta_{jj}$ : مجذور ضریب،  $\beta_{jk}$ : ضریب برهم کنش،  $X_i, X_j^2, X_j, X_k$ : سطح متغیرهای مستقل؛ می‌باشند.

### یافته‌ها

#### مشخصات فیزیکی و شیمیایی جاذب‌ها

برای این منظور تست‌های SEM و XRF بر روی غشاء پوست تخم مرغ انجام شد. عکسبرداری با میکروسکوپ الکترون روبشی (SEM) برای آنالیز سطح و ساختار سطحی غشاء پوست تخم مرغ به کار گرفته شد. در حقیقت SEM وسیله‌ای برای عکس‌برداری از سطح اجسام است. با این وسیله می‌توان اجزای تشکیل‌دهنده سطح جسم را مشاهده کرد. از طرفی جهت تعیین ترکیب و اجزاء شیمیایی تشکیل‌دهنده غشاء و تشخیص عامل مؤثر در حذف از طیف سنج اشعه ایکس استفاده شد. شکل ۱ و جدول ۱ نتایج این آنالیزها را بر جاذب نشان می‌دهد.

است که در بهینه‌سازی فرایندهایی به کار می‌رود که پاسخ مورد نظر توسط تعدادی از متغیرها تحت تاثیر قرار می‌گیرد. شمای گرافیکی مدل ریاضی سبب تعریف واژه روش سطح پاسخ شده است. با کمک این طرح آماری، تعداد آزمایش‌ها کاهش یافته و کلیه ضرایب مدل رگرسیون درجه دوم و اثر متقابل فاکتورها، قابل برآورد هستند. مهمترین مسئله این تحقیق بررسی آثار اصلی و متقابل فاکتورها بود، از این رو طرح آماری سطح پاسخ انتخاب شد (۱۸). کلیه آزمایشات بر اساس طراحی آزمایش از روش سطح پاسخ با ۵ سطح (۲، ۱، ۰، -۱، -۲) و ۵ متغیر انجام شد. در این مطالعه اثر متغیرهای مستقل شامل زمان و دما، pH، غلظت جاذب و غلظت فنل در پنج سطح مورد ارزیابی قرار گرفت؛ در مرحله بعد راندمان برای مقادیر گوناگون متغیرها اندازه‌گیری شد. در نهایت در این روش از نرم افزار Minitab software package برای طراحی و ارزیابی این ۵ متغیر در این ۵ سطح استفاده گردید و جواب نهایی با استفاده از معادله (۲) محاسبه گردید.



شکل ۱. تصویر میکروسکوپ الکترونی از غشاء پوست تخم مرغ

جدول ۱. ترکیب شیمیایی غشاء پوست تخم مرغ با آنالیز XRF

عنصر	پروتئین	CaO	MgO	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> O	SO <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O
میزان (%)	۶۶/۳	۲۴/۲۶	۰/۵۹	۲/۹۴	۰/۱۴	۰/۷۱	۴/۸۵	۰/۱۲

#### نتایج حاصل از روش RSM

فنل و ۱۱۵/۵ دقیقه و مقدار جاذب ۳/۷۸ گرم فنل به دست آمد. یک معادله چند فرمولی درجه دوم (۳) برای پیش‌بینی راندمان به‌عنوان یک عملکردی از

بیشینه راندمان ۶۹/۵۴٪ در دمای ۲۰ درجه سانتی‌گراد، pH=۳/۶۳، غلظت ۵ میلی‌گرم بر لیتر از

$$- 1.91 T \times t + 18.03 T \times \text{pH} + 0.39 T \times C_p - 4.14 D \times t + 0.34 \text{pH} \times C_p \quad (3)$$

که در این معادله T: دما، C<sub>p</sub> غلظت فنل، t زمان و D مقدار جاذب می‌باشد.

متغیرهای گوناگون به‌کار گرفته شد. نتایج مربوط به پیش‌بینی راندمان در جدول ۲ آورده شده است.

$$Y = - 4685.08 - 327.65 T - 2989.40 D - 18.28 t + 21.96 \text{pH} + 4.21 C_p - 15.60 T^2 - 507.23 D^2 - 0.06 t^2 - 11.31 \text{pH}^2 - 70.05 T \times D$$

جدول ۲. راندمان سطوح متفاوت انتخاب شده از متغیرها

راندمان پیش‌بینی شده (%)	راندمان مشاهده شده (%)	مقدار جاذب (g)	زمان (min)	غلظت فنل (mg/L)	pH	دما (°C)	شماره
۱۶/۱۳۹۶	۱۶/۷۲	۳/۵	۴۰	۱۰	۴	۳۰	۱
۵/۶۰۲۹	۶/۲۷	۳/۵	۱۰۰	۱۰	۴	۵۰	۲
۴۴/۸۶۹۶	۴۵/۶۴	۱/۵	۱۰۰	۱۰	۸	۵۰	۳
۴۶/۲۲۰۴	۴۵/۹۹	۲/۵	۷۰	۱۵	۶	۴۰	۴
۲۵/۷۲۴۶	۲۴/۰۴	۴/۵	۷۰	۱۵	۶	۴۰	۵
۲۳/۵۸۵۴	۲۰/۹۰	۳/۵	۴۰	۱۰	۸	۵۰	۶
۶۰/۲۴۲۱	۵۷/۶۶	۲/۵	۷۰	۱۵	۶	۴۰	۷
۱۶/۷۷۵۴	۱۴/۲۸	۲/۵	۷۰	۱۵	۶	۴۰	۸
۲/۷۵۹۶	۵/۴۰	۲/۵	۱۳۰	۱۵	۶	۴۰	۹
۴۵/۵۷۰۴	۴۷/۲۱	۲/۵	۱۰	۱۵	۶	۴۰	۱۰
۵۸/۷۰۷۱	۶۰/۴۵	۳/۵	۴۰	۲۰	۴	۵۰	۱۱
۴۲/۷۷۰۴	۴۴/۱۶۰	۳/۵	۴۰	۲۰	۸	۳۰	۱۲
۳۷/۱۳۲۱	۳۶/۴۱	۲/۵	۷۰	۱۵	۱۰	۴۰	۱۳
۹/۴۹۵۴	۸/۸۷	۲/۵	۷۰	۱۵	۶	۶۰	۱۴
۴۷/۳۸۲۱	۴۶/۸۶	۳/۵	۱۰۰	۱۰	۸	۳۰	۱۵
۶۰/۰۵۲۹	۵۸/۵۳	۳/۵	۱۰۰	۲۰	۸	۵۰	۱۶
۳۷/۲۷۵۴	۳۶/۷۶	۳/۵	۱۰۰	۲۰	۴	۳۰	۱۷
۲۶/۵۵۷۱	۲۷/۸۷	۲/۵	۷۰	۵	۶	۴۰	۱۸
۱/۵۲۸۸	۱/۳۲	۱/۵	۴۰	۱۰	۸	۳۰	۱۹
۵۴/۲۸۳۸	۵۵/۳۹	۱/۵	۴۰	۲۰	۸	۵۰	۲۰
۳۵/۳۵۸۸	۳۰/۱۴	۲/۵	۷۰	۱۵	۶	۴۰	۲۱
۳۹/۷۹۳۸	۴۵/۸۱	۱/۵	۱۰۰	۲۰	۸	۳۰	۲۲
۳۶/۴۵۸۸	۳۹/۸۹	۱/۵	۱۰۰	۱۰	۴	۳۰	۲۳
۵۲/۶۳۳۸	۵۰/۰۰	۱/۵	۴۰	۲۰	۴	۳۰	۲۴
۲۰/۰۲۸۸	۱۹/۳۴	۲/۵	۷۰	۲۵	۶	۴۰	۲۵
۵۸/۰۹۳۸	۵۹/۵۸	۲/۵	۷۰	۱۵	۶	۲۰	۲۶
۴۵/۲۵۱۳	۴۵/۲۹	۰/۵	۷۰	۱۵	۶	۴۰	۲۷
۴۵/۲۵۱۳	۴۴/۹۴	۱/۵	۴۰	۱۰	۴	۵۰	۲۸
۴۵/۲۵۱۳	۴۵/۶۷	۲/۵	۷۰	۱۵	۶	۴۰	۲۹
۴۵/۲۵۱۳	۴۴/۹۳	۱/۵	۱۰۰	۲۰	۴	۵۰	۳۰
۴۵/۲۵۱۳	۴۵/۲۹	۲/۵	۷۰	۱۵	۶	۴۰	۳۱
۴۵/۲۵۱۳	۴۴/۵۹	۲/۵	۷۰	۱۵	۲	۴۰	۳۲

ارزیابی شد. نتایج آنالیزهای آماری شامل ارزیابی عدد رگرسیون، t-test و p-values برای راندمان در

در نهایت RSM که از طراحی یک آزمایش به‌دست آمد با استفاده از آنالیز نتایج و آزمون ANOVA

مدل را بر مبنای مشاهدات و پیش‌بینی نشان می‌دهد. همچنین میزان معنادار بودن هر ضریب با استفاده از  $t$ -test و  $p$ -values در جدول ۳ نشان داده شده است.

جدول ۳ آورده شده‌اند. مطابق نتایج  $R^2$  تنظیم شده برای راندمان حدود ۹۵/۹۱ بوده و این بدان معنی است که مدل توسعه یافته قادر به پیش‌بینی کامل راندمان می‌باشد. ضریب رگرسیون خطی برای راندمان تقریباً ۹۸/۵۵ بوده که این، انجام درست

جدول ۳. ضرایب رگرسیون،  $t$ -test، و  $p$ -value برای مدل برآورد شده با نرم افزار Minitab

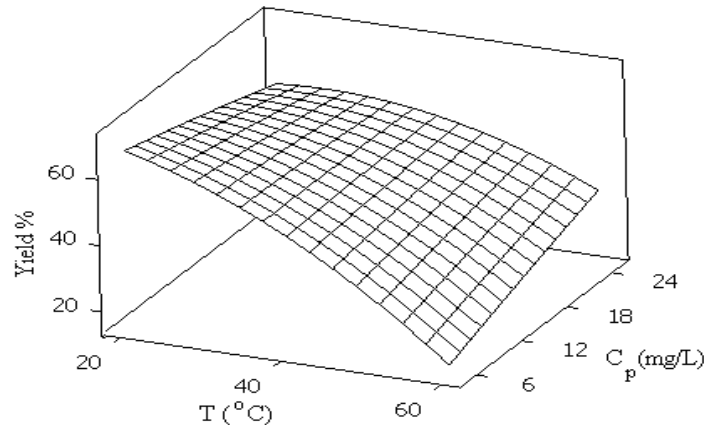
$p$ -value	$t$ -value	راندمان	
		ضریب رگرسیون	متغیرها
./۰۰۰	-۷/۰۲۶	-۴۰۰۵/۱۳	ثابت
./۰۰۰	-۵/۰۷۷	-۲۸۰/۰۵	T (°C)*
./۰۰۰	-۶/۹۶۲	-۲۵۵۵۵/۵۵	D (g)**
./۰۰۰۴	-۳/۶۰۷	-۱۵/۶۳	t (min)***
./۷۸۰	۰/۲۸۶	۱۸/۷۱	pH
./۰۰۵	۳/۴۴۸	۳/۵۹	C <sub>p</sub> (mg/L)****
./۰۰۰	-۵/۱۹۳	-۱۳/۳۳	T <sup>۲</sup> (°C) <sup>۲</sup>
./۰۰۰	-۶/۷۵۴	-۴۳۳/۶۲	D <sup>۲</sup> (g) <sup>۲</sup>
./۰۱۲	-۲/۹۸۹	-۰/۰۵	t <sup>۲</sup> (min) <sup>۲</sup>
./۰۳۵	-۲/۴۱۰	-۹/۶۷	pH <sup>۲</sup>
./۷۸۹	-۰/۲۷۴	-۰/۰۰	C <sub>p</sub> <sup>۲</sup> (mg/L) <sup>۲</sup>
./۰۰۵	-۳/۴۴۴	-۵۹/۸۶	T (°C) × D (g)
./۰۰۰	-۵/۶۲۸	-۱/۶۳	T (°C) × t (min)
./۰۰۵	۳/۵۴۶	۱۵/۴۱	T (°C) × pH
./۰۰۱	۴/۷۹۷	-۰/۳۳	T (°C) × C <sub>p</sub> (mg/L)
./۰۳۳	-۲/۴۴۳	-۳/۵۴	D (g) × t (min)
./۷۰۵	-۰/۳۸۸	-۸/۴۵	pH × D (g)
./۲۵۰	۱/۲۱۶	-۰/۴۲	C <sub>p</sub> (mg/L) × D (g)
./۴۴۷	۰/۷۸۹	-۰/۲۹	t (min) × pH
./۵۲۰	۰/۶۶۵	-۰/۰۰	C <sub>p</sub> (mg/L) × t (min)
./۰۰۷	۳/۲۹۷	-۰/۲۹	pH × C <sub>p</sub> (mg/L)

\*T: دما \*\* مقدار جاذب \*\*\* زمان تماس \*\*\*\* غلظت فنل

پیداست افزایش دما باعث کاهش راندمان حذف می‌شود. در دمای ۲۰°C ماکزیمم راندمان برای فنل ۶۹/۵۴٪ می‌باشد.

#### تاثیر دما

در شکل ۲ نتایج مربوط به تاثیر دما در میزان حذف فنل با استفاده از روش RSM توسط غشاء نشان داده شده است. همانطور که از شکل‌های مربوطه

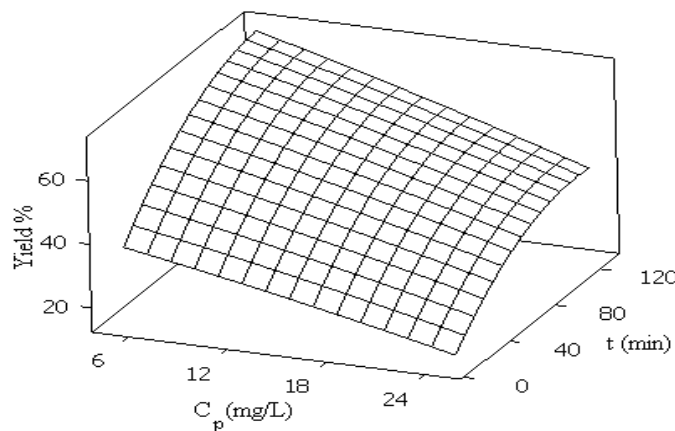


شکل ۲. پاسخ سطحی درصد راندمان در مقابل دما و غلظت فنل (مقدار جاذب: ۳/۷۸ گرم، زمان: ۱۱۵/۵ دقیقه، pH=۳/۶۳)

### تأثیر غلظت فنل و زمان تماس

شکل ۳ نتایج مربوط به اثر غلظت اولیه فنل را در میزان حذف آن توسط جاذب ذکر شده در مقابل زمان نشان می‌دهد. نتایج حاکی از آن بود که هرچه غلظت اولیه فنل بیشتر می‌شد، میزان حذف آن کاهش یافته و حداکثر راندمان برای غلظت ۵

میلی‌گرم در لیتر مشاهده گردید. همچنین در شکل ۳ نتایج مربوط به اثر زمان تماس در کارایی حذف نشان داده شده است. همانگونه که از نتایج مربوطه پیداست با افزایش زمان تماس تا ۱۱۵/۵ دقیقه میزان جذب آلاینده افزایش می‌یافت.

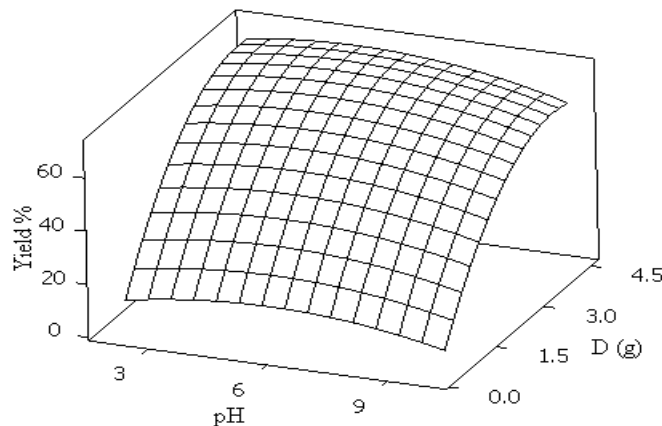


شکل ۳. پاسخ سطحی % راندمان در برابر در مقابل غلظت فنل و زمان (مقدار جاذب: ۳/۷۸ گرم، دما: ۲۰ °C، pH=۳/۶۳)

### تأثیر pH و مقدار ماده جاذب

شکل ۴ نتایج مربوط به اثر pH در محدوده‌های اسیدی، خنثی و قلیایی در میزان حذف فنل را نشان می‌دهد. همان‌طور که از شکل‌های مربوطه پیداست با افزایش pH از ۲ به ۴ راندمان حذف افزایش یافته و با افزایش بیشتر pH به سمت شرایط قلیایی و ۱۱ pH راندمان جذب کاهش می‌یابد. همان‌گونه که از نتایج پیداست بالاترین راندمان برای حذف pH=۳/۶۳

بدست آمد. از طرفی در شکل ۴ نتایج مربوط به تأثیر مقدار ماده جاذب در میزان حذف فنل نشان داده شده است. همانگونه که از شکل مربوطه پیداست با افزایش مقدار جاذب از ۳/۷۸ گرم میزان جذب فنل افزایش می‌یابد، اما با افزایش بیشتر مقدار ماده جاذب تا ۴/۵ گرم کارایی فرایند ثابت می‌ماند.



شکل ۴. پاسخ سطحی درصد حذف فنل در مقابل pH و مقدار جاذب (زمان: ۱۱۵/۵ دقیقه، دما: ۲۰°C، غلظت فنل: ۵ mg/L)

## بحث

### آنالیز SEM و XRF

به منظور ارزیابی مشخصات مرفولوژی و سطحی غشاء پوسته تخم مرغ از آنالیز SEM استفاده شد. نتایج حاصل از این آنالیز در شکل ۱ نشان داده شده است. شکل ۱، یک ساختار نامنظم با سطح متخلخل از غشاء را نشان می‌دهد. مطالعات مشابه ثابت کردند که این ساختار متخلخل باعث افزایش سطح تماس و افزایش میزان جذب یون فلزی به درون این غشاء می‌شود. مطالعات گوناگونی نشان می‌دهد که این ساختار متخلخل نقش ویژه‌ای در توانایی جذب دارد (۱۹-۲۰). از طرفی ترکیب شیمیایی غشاء پوست تخم مرغ با استفاده از طیف سنج<sup>۱</sup> XRF مورد سنجش قرار گرفت و نتایج در جدول ۲ نشان داده شده است. نتایج نشان داد که ترکیب اصلی تشکیل‌دهنده غشاء پروتئین و کلیسم می‌باشد. علاوه بر این ترکیب آلی، ترکیبات معدنی دیگری همچون گوگرد، سیلیس، روی و غیره در غشاء وجود دارند. این عناصر می‌توانند با یون‌های آلاینده در طی واکنش تبادل یونی تعویض شوند.

### تأثیر دما

تأثیر دما در محدوده ۲۰ تا ۶۰°C بررسی گردید. مشاهده گردید که با افزایش دما، کارایی فرایند برای حذف آلاینده کاهش می‌یابد. نتایج نشان داد که حداکثر راندمان حذف فنل (۶۹/۵۴٪) در دمای ۲۰°C به دست آمد. این کاهش در راندمان ممکن است در نتیجه افزایش در حرکت و جنبش یون‌های فنل و در نتیجه سست شدن نیروی بین یون‌های آلاینده و سطوح فعال سطحی باشد. این بدین معنی است که با افزایش دما احتمال شکسته شدن برخی باندهای فعال و موثر که در سطح یا درون جاذب هستند بالا می‌رود. بنابراین این موضوع می‌تواند گواه بر این باشد که فرایند جذب با غشاء پوست تخم مرغ گرمازا می‌باشد (۲۱-۲۲). دارائی و همکاران نیز در تحقیقی که در زمینه حذف فنل با پوست تخم مرغ انجام دادند به نتایج مشابهی دست یافتند (۱۵).

### تأثیر غلظت فنل و زمان تماس

نتایج نشان داد که با افزایش غلظت فنل راندمان جذب کاهش یافت. بالاترین میزان حذف برای فنل در غلظت ۵ میلی گرم در لیتر و در حدود ۶۹/۵۴٪ به دست آمد. این کاهش در راندمان با افزایش غلظت ممکن است در نتیجه کاهش یافتن سطوح فعال در سطح جاذب باشد، زیرا در غلظت‌های بالا باندهای فعال به مقدار کمتری در دسترس آلاینده‌ها

<sup>۱</sup> X-Ray Fluorescence

از ترکیبات غشاء همچون چربی در آب باشد، که این نکته نیز ممکن است یکی از دلایل کاهش راندمان سیستم با افزایش pH باشد. دارایی و همکاران نیز در تحقیقی که در زمینه حذف فنل با استفاده از پوست تخم مرغ و حذف کروم با غشاء پوست تخم مرغ انجام دادند به نتایج مشابهی رسیدند (۲۸،۲۷،۱۶،۱۵).

### نتیجه گیری

غشاء پوست تخم مرغ یک ماده زائد می باشد که به مقدار زیاد از صنایع غذایی به دست می آید. نتایج به دست آمده، نقش غشاء را به عنوان یک جاذب موثر برای حذف آلاینده فنل از محلول های آبی نشان داد. نتایج نشان داد که راندمان حذف فنل با پودر به دست آمده از غشاء پوست تخم مرغ، به pH و دما وابسته تر بوده و بیشینه راندمان حذف در دمای محیط و pH اسیدی به دست آمد. فرایند حذف آگزوترمیک بود. همچنین اثر همزمان متغیرها در راندمان با روش پاسخ سطح حذف بررسی گردید. در نهایت می توان نتیجه گیری نمود که غشاء پوست تخم مرغ می تواند به عنوان یک جاذب کم هزینه و موثر برای حذف آلاینده های آلی استفاده شود.

### تشکر و قدردانی

این مقاله از طرح تحقیقاتی با شماره ثبت ۲۰۰۷۵۷۲ استخراج شده است. نویسندگان این مقاله از مسئولین محترم دانشگاه علوم پزشکی البرز که در طول این تحقیق کمال همکاری را داشتند سپاسگزاری می نمایند.

قرار می گیرند و میزان سرعت انتقال جرم در این غلظت ها کاهش می یابد. همچنین در غلظت های بالا محل های فعال جذب با یون های آلاینده اشباع می شوند. از طرفی نتایج نشان می دهد که با افزایش زمان تماس تا محدوده خاصی یعنی ۱۱۵/۵ دقیقه راندمان حذف نیز افزایش می یابد و سپس با افزایش زمان تماس تا ۱۳۰ دقیقه راندمان حذف تقریباً ثابت می ماند. جذب فنل در زمان های بالا می تواند به اتصال سطحی بین گروه های فعال در سطح جاذب و یون آلاینده ها نسبت داده شود. تحقیقاتی که در زمینه حذف فنل و دیگر آلاینده های آلی همچون رنگ با استفاده از پوست تخم مرغ انجام شده است صحت نتایج این تحقیق را تایید می کند (۱۵-۲۳،۲۶).

### تأثیر pH و مقدار جاذب

pH یک فاکتور اصلی در حذف آلاینده با روش جذب می باشد. pH می تواند در یونیزاسیون آلاینده ها و همچنین سطح جاذب تأثیر بگذارد. وقتی که pH تا حدود ۳/۵۴ برای فنل بالا می رود، راندمان حذف بالا می رود. اما بعد از آن و با افزایش تدریجی pH تا ۱۰ راندمان شروع به کاهش می کند. از این نتایج به نظر می رسد که pH می تواند هم بر بار سطحی جاذب و هم بر میزان یونیزاسیون فنل در آب تأثیر بگذارد. در pH های کمتر از ۴ سطح جاذب توسط بار مثبت احاطه شده و یک کشش اساسی با یون های آلاینده اتفاق می افتد. بنابراین مکانیسم واکنش سطحی کمپلکسی بین بارهای مثبت در غشاء و یون های منفی OH<sup>-</sup> فنل می باشد. در حقیقت این امر توانایی رقابت بین یون های OH<sup>-</sup> در فنل را با محل های در دسترس و فعال در سطح جاذب نشان می دهد. همچنین با بالا رفتن pH میزان کدورت نمونه ها افزایش می یابد. این افزایش در کدورت می تواند به دلیل انحلال برخی

### References

- 1- Edwin Vasu A. Removal of phenol and o-Cresol by adsorption onto activated carbon, E-Journal. Chem. 2008; 5: 224-232.



- 2- Srihari V, Ashutosh D, Adsorption of phenol of from aqueous media by an agro-waste (HEMIDESMUS INDICUS) based activated carbon, *Appl. Ecol. Environ. Res.* 2009; 7: 13-23.
- 3- Xu H, Prasad M, Wang P. Enhanced removal of phenol from aquatic solution in a schorl-catalyzed fenton-like system by acid-modified schorl, *Bull. Korean Chem. Soc.* 2010; 31.
- 4- Jadhav DN, Vanjara AK. Removal of phenol from wastewater using sawdust, polymerized sawdust and sawdust carbon. *Indian J. Chem. Technol.* 2004; 11: 35-41.
- 5- Azni I, Saed K. Degradation of phenol in wastewater using anolyte produced from electrochemical generation of brine solution. *Global Nest: the Int. J.* 2002; 4: 139-144.
- 6- Mustafa AI, Alam S, Amin N, Bahadur NM, Habib A. Phenol removal from aqueous system by jute stick, *Pak. J. Anal. Environ. Chem.* 2008; 9: 92- 95
- 7- Silva MR, Coelho MA, Araújo OQ. Minimization of phenol and ammonical nitrogen in refinery wastewater employing biological treatment. *Engenharia Térmica, Edição Especial.* 2002; 1: 33-37.
- 8- Moraitopoulos I, Ioannou Z, Simitzis J. Adsorption of phenol, 3-nitrophenol and dyes from aqueous solutions onto an activated carbon column under semi-batch and continuous operation, *World Academy of Science, World Acad. Sci. Eng. Tech.* 2009; 58: 218-222.
- 9- Kaleta J. Removal of phenol from aqueous solution by adsorption, *Can. J. Civ. Eng.* 2006; 33: 546-551.
- 10- Sampedro I, Nromero C, Ocampo JA, Brenes M, Garcia I. Removal of monomeric phenols in dry mill olive residue by saprobic fungi, *J. Agric. Food. Chem.* 2004; 52: 4487-4492.
- 11- Kermani M., Pourmoghaddas H, Bina B, Khazaei Z. Removal of phenol from aqueous solutions by rice husk ash and active carbon. *Pak. J. Biol. Sci.* 2006; 9: 1905-1910.
- 12- Manshouri M, Daraei H, Yazdanbakhsh AR. A feasible study on the application of raw ostrich feather, feather treated with H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and feather ash for removal of phenol from aqueous solution. *Desalin. Water Treat.* 2012; 41: 179-185.
- 13- Uddin MT, Islam MS, Abedin MZ. Adsorption of phenol from aqueous solution by water hyacinth ash. *ARPJ. Eng. Appl. Sci.* 2007; 2: 11-17.
- 14- Vimal C, Srivastava M, Swamy ID, Basheswar P, Mishra M. Adsorptive removal of phenol by bagasse fly ash and activated carbon: Equilibrium, kinetics and thermodynamics, *Physicochemical and engineering Aspect.* 2006; 272: 89-104.
- 15- Daraei H, Mittal A, Noorisepehr M, Daraei F. Kinetic and equilibrium studies of adsorptive removal of phenol onto eggshell waste. *Environ Sci Pollut Res.* 2013; 20:4603-4611
- 16- Daraei H, Mittal A, Mittal J, Kamali H. Optimization of Cr(VI) removal onto biosorbent eggshell membrane: experimental & theoretical approaches. *deswater.* 2013; 1-9
- 17- Kumari AR, Babu UK, Sobha K. Optimization of lead adsorption using animal biopolymers by factorial design. *Inter. J. Sci. Innov. Discover.* 2011, 1 (3), 303-319
18. Kamali H, Ghaziaskar HS. Pressurized hot water extraction of benzoic acid and phthalic anhydride from petrochemical wastes using a modified supercritical fluid extractor and a central composite design for optimization. *J. Supercrit. Fluids.* 2010; 54: 16-21.
- 19- Arunlertaree C, Kaewsomboon W, Kumsopa A, Pokethitiyook P and Panyawathanakit P. Removal of lead from battery manufacturing wastewater by eggshell. *J. science and Technology.* 2007; 29(3): 851-868
- 20- Nitayapat N, Pramanpol N. Adsorption of Reactive Dye by Eggshell and Its Membrane. *Kasetsart J. Nat. Sci.* 2006; 40 (1): 192 - 197
21. Surasen C. Removal of Cadmium in Synthetic Wastewater by Egg Shell Filter [M.Eng. Thesis in Environmental Engineering]. Bangkok: Faculty of Graduate Studies, Kasetsart University (in Thai). 2002; 50-56
- 22- Franca AS, Mendonça JCF, Oliveira S D. Composition of green and roasted coffees of different cup qualities, *Lebensmittel-Wissenschaft Technol.* 2005; 38 (7): 709-715.
- 23- Sayed SA, Saleh B, Hasan E. Removal of some polluting metals from industrial water using chicken feathers, *J. Chem. Tech. Biotech.* 2005; 243-255
- 24- Mishra S, Bhattacharya J. Batch studies on phenol removal using leaf activated carbon. *Malaysian J. Chem.* 2008, 51-59

- 25- Pramanpol N, Nitayapat N. Adsorption of Reactive Dye by Eggshell and Its Membrane. *Kasetsart J. Nat. Sci.* 2006; 40: 192 - 197
- 26- Bhaumik NK, Mondal BD, Roy P, Das C, Banerjee C, Datta K. Eggshell Powder as an Adsorbent for Removal of Fluoride from Aqueous Solution: Equilibrium, Kinetic and Thermodynamic Studies. *E-Journal of Chem.* 2012; 9(3):1457-1480
- 27- Ghoreishi SM, Mardani E, Ghaziaskar HS. Separation of  $\gamma$ -linolenic and other polyunsaturated fatty acids from Boraginaceae via supercritical CO<sub>2</sub>. *J. Separate. Sci.* 2011; 34: 233–240
- 28- Mustafa AI, Alam S, Amin N, Bahadur NM, Habib A. Phenol Removal from Aqueous System by Jute Stick. *Pak J Anal Environ Chem.* 2008; 9:92–95.

## Efficiency of Eggshell Membrane in Removal of Phenol from Aqueous Solution

Daraei H\*<sup>1</sup>, Noorisepehr M<sup>1</sup>, Kamali H<sup>2</sup>, Daraei F<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Department of Environmental Health Engineering, Alborz University of Medical Sciences, Karaj, Iran

<sup>2</sup> Research Center of Natural Product Safety and Medicinal Plants, North Khorasan University of Medical Sciences, Bojnurd, Iran

<sup>3</sup> MSc of Food Science and Technology, Central Organization for Rural Co-operative, Ministry of Agriculture, Tehran, Iran

\*Corresponding author. Tel: +982634643254 Fax: +982634644329 E-mail: [hasti.daraei@yahoo.com](mailto:hasti.daraei@yahoo.com)

Received: 28 Jun 2013 Accepted: 11 Nov 2013

### ABSTRACT

**Background & Objectives:** Phenol is a major toxicant present in industrial effluent that can adversely affect the biological treatment of wastewater. Conventional methods for removal of this chemical compound from wastewater are often expensive, hence; cheap and available methods for wastewater treatment are required. The aim of present research is to develop economic, fast, and versatile method for the removal of toxic organic pollutants from wastewater using membrane eggshell.

**Methods:** In this research the effect of various parameters such as pH, contact time, temperature, dosage of shell membrane, and initial concentration of phenol were investigated. Central composite design (CCD) was applied to evaluate the effect of these variables. The chemical and physical characteristics of eggshell membranes were studied through SEM and XRF analysis.

**Results:** The results indicated that the optimum values for pH, dosage of shell membrane, contact time, temperature, and initial concentration for phenol sorption were 3.63, 3.78 g, 115.50 min, 20 °C and 5 mg/L, respectively. The results of the CCD analysis showed that pH and phenol concentrations are fundamental parameters affecting the efficiency.

**Conclusion:** Results showed that eggshell, as a solid waste of the food industries, can be used as an effective sorbent for removal of phenol and other organic pollutants from aqueous solutions.

**Keywords:** Membrane; Phenol; Sorption; Eggshell