



## بررسی کارایی نانولوله‌های کربنی چند دیواره در حذف رنگ اسید بلاک ۱ از محلول‌های آبی

نویسندگان: سودابه پورفداکاری<sup>۱</sup>، امیر حسین محوی<sup>۲</sup>

۱. کارشناس ارشد گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی شیراز ۰۹۱۷۳۱۹۱۲۹۸

۲. نویسنده مسئول: استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی تهران

تلفن تماس: ۸۸۹۵۴۹۱۴ Email:ahmahvi@yahoo.com

### چکیده

**مقدمه:** پساب رنگی برخی صنایع شامل تعدادی ترکیبات سرطان زا، سمی و یا جهش زا می‌باشد. بنابراین آلاینده‌های رنگی فاضلاب این نوع صنایع باید قبل از تخلیه به محیط، با روش مناسب تصفیه گردند. هدف از انجام این پژوهش بررسی کارایی نانو تیوب کربن چند دیواره در حذف رنگ اسید بلاک ۱ از فاضلاب رنگی است.

**روش بررسی:** این پژوهش یک مطالعه آزمایشگاهی می‌باشد که در سیستم ناپیوسته انجام شده و از نانو تیوب کربن چند دیواره به عنوان جاذب برای حذف رنگ استفاده شده است. در این مطالعه عوامل مختلف تأثیر گذار روی میزان حذف رنگ مانند دوز جاذب، غلظت اولیه رنگ، زمان تماس و pH مورد بررسی قرار گرفت.

**یافته‌ها:** نتایج نشان داد که  $pH=3$  مناسبترین pH، برای حذف رنگ است و زمان تعادل برای جذب رنگ اسید بلاک ۱ روی جاذب برابر ۶۰ دقیقه بود. با افزایش غلظت رنگ، سرعت حذف رنگ کاهش یافت. افزایش مقدار جاذب باعث افزایش راندمان حذف رنگ شد در دوز ۶۰۰ میلی گرم بر لیتر راندمان حذف برای رنگ با غلظت ۳۰ و ۵۰ میلی گرم بر لیتر به ترتیب برابر ۹۸/۸۶٪ و ۹۴/۶۲٪ درصد به دست آمد. همچنین حذف رنگ اسید بلاک ۱ از مدل ایزوترمی لانگمویر و سینتیک درجه دوم تبعیت کرد.

**نتیجه گیری:** نتایج مطالعات جذب نشان داد که با افزایش زمان تماس و دوز جاذب و کاهش pH، راندمان حذف رنگ افزایش می‌یابد. بر اساس نتایج این تحقیق، نانو لوله‌های کربنی چند دیواره به عنوان یک جاذب موثر برای حذف رنگ‌های آزو از فاضلاب می‌توانند استفاده شوند.

**واژه‌های کلیدی:** جذب، لانگمویر، ایزوترم، نانو تیوب‌های کربن چند دیواره

## طلوع بهداشت

دو ماهنامه علمی پژوهشی

دانشکده بهداشت یزد

سال چهاردهم

شماره: چهارم

مهر و آبان ۱۳۹۴

شماره مسلسل: ۵۲

تاریخ وصول: ۱۳۹۲/۲/۲۱

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۲/۵/۱۲



## مقدمه

آلاینده‌های محیط به عنوان یک تهدید جدی برای موجودات زنده و محیط زیست محسوب می‌شوند. یکی از مهمترین عوامل آلوده کننده آب‌ها تخلیه پساب‌های رنگی از صنایع نساجی، چرم سازی، کاغذ و چاپ، دارویی و صنایع دیگر می‌باشد (۱). صنایع نساجی یکی از مهم‌ترین صنایع در دهه اخیر محسوب می‌شود. متأسفانه مقدار زیادی از رنگ‌های تولید شده در جهان ناشناخته اند ولی آمارها نشان می‌دهد که سالیانه بالای ۱۰۴ تن رنگ تولید می‌شود و اطلاعات کافی در مورد مقدار رنگهایی که به محیط تخلیه می‌شوند، در دسترس نیست (۲). از خصوصیات مهم صنایع نساجی مصرف بالای آب و در نتیجه تولید زیاد فاضلاب است (۳). دسته بندی رنگها اغلب به صورت رنگ‌های آزو (Azo Dye)، رنگ‌های اسیدی (Acid Dye)، رنگ‌های مستقیم (Direct Dye) و سولفور (sulphur Dye) می‌باشد (۴). بیشتر از دو هزار رنگ آزو در دنیا شناخته شده و بیش از نیمی از رنگهای مورد استفاده آزو می‌باشند (۵). رنگهای راکتیو آزو بزرگترین دسته از رنگهای مصنوعی محلول در آب هستند که به طور وسیع در صنایع نساجی مورد استفاده قرار می‌گیرند (۶). رنگهای آزو به علت ساختار الکترونی پیچیده به روش‌های تجزیه بیولوژیکی هوازی و متداول (مثل لجن فعال) مقاوم اند و به طور موثری از فاضلاب حذف نمی‌شوند و در نتیجه پساب رنگی شامل تعداد زیادی ترکیبات سرطان زا، سمی و یا جهش‌زا است که یک تهدید جدی برای اکوسیستم و سلامت انسان محسوب می‌شود. بنابراین آلاینده‌های رنگی فاضلاب این نوع صنایع باید قبل از تخلیه به محیط زیست، به نحو مطلوبی تصفیه گردند (۷-۵). روش‌های اصلی در جداسازی رنگ از فاضلاب

شامل تصفیه بیولوژیکی، تصفیه فیزیکی و تصفیه شیمیایی می‌باشد (۸-۱۰). روش‌های تصفیه بیولوژیکی به دلیل سمیت زیاد رنگها برای میکروارگانیسم‌های موجود در فرایند و مقاوم بودن بسیاری از رنگها در برابر تجزیه بیولوژیکی راندمان پایینی در حذف رنگ دارند و برای رنگ‌زدایی از فاضلاب صنایع نساجی قابل کاربرد نیستند (۱۱، ۱۲). به همین دلیل معمولاً از فرایندها و روش‌های متداول فیزیکی و شیمیایی نظیر انعقاد و لخته سازی، تصفیه با ازن، فیلتراسیون غشایی، اکسیداسیون شیمیایی، تجزیه فتوکاتالستی، تعویض یون جهت حذف رنگ از فاضلاب صنعت نساجی استفاده می‌شود. این روش‌ها دارای معایبی چون نیاز به مصرف انرژی بالا، تولید لجن سمی و یا تولید مواد زائدی که نیاز به دفن دارند می‌باشند (۱۴، ۱۳، ۸). از میان این روش‌ها، جذب سطحی به عنوان یک روش موثر برای حذف رنگ از فاضلاب‌های رنگی محسوب می‌شود و بیشترین کاربرد را در حذف رنگ آلی از فاضلاب دارد و باعث افزایش و بهبود کیفیت آب گردیده و به علت هزینه اولیه پایین، طراحی آسان، به عنوان یک فرآیند اقتصادی مطرح است (۳). از جاذب‌های مختلفی چون کربن فعال، سیلیکات، خاک رس معدنی، بنتونیت و خاکستر لجن برای حذف رنگ استفاده می‌شود (۱۶، ۱۵). کربن فعال به عنوان متداولترین جاذب مورد استفاده برای حذف رنگ از محلول آبی است اما به علت دارا بودن خاصیت هیدروفوبیک ضعیف میل ترکیبی کمتری برای جذب کردن رنگ‌های آنیونی و کاتیونی از محلول آبی دارد (۱۷، ۳). زمانی که نانو تیوب‌های کربن چند دیواره در سال ۱۹۹۱ توسط ایجیما سنتز شد، این مواد به عنوان جاذب‌های جدید توجه بسیاری از محققین را به خود جلب کرد (۱۸). نانوتیوب‌های کربن گروه جدید

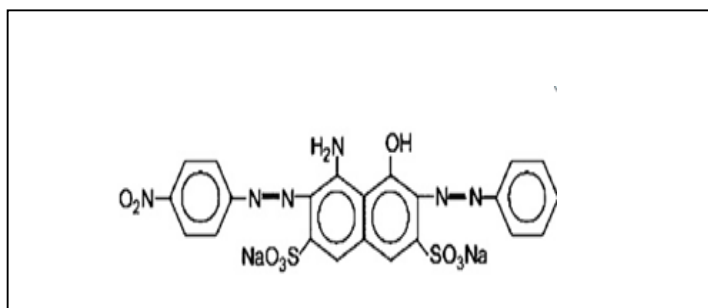


از خانواده کربن محسوب می‌شوند که به علت اندازه کوچک، سطح ویژه بالا، ساختار لوله ای و تو خالی، در سراسر جهان به طور وسیع مورد استفاده قرار می‌گیرند. این نانوتیوب‌ها به عنوان یک جاذب موثر با توانایی جذب بالا نسبت به کربن فعال شناخته می‌شوند که باعث شده تا از این مواد برای حذف بسیاری از آلاینده‌های آلی و معدنی از فاضلاب استفاده شوند (۱۹،۲۰). هدف از انجام این مطالعه، بررسی کارایی نانولوله‌های کربنی چند دیواره به عنوان یک جاذب برای حذف رنگ اسید بلاک ۱ از محیط‌های آبی بوده است.

### روش بررسی

در این پژوهش نانو تیوب چند دیواره خریداری شده از پژوهشگاه صنعت نفت با خلوص بالای ۹۵ درصد با قطر ۱-۳۰ نانومتر، مساحت سطح ویژه و هدایت الکتریکی به ترتیب  $270 \text{ m}^2/\text{g}$  و  $1500 \text{ S/m}$  به عنوان جاذب مورد استفاده قرار گرفت. رنگ مورد استفاده در این تحقیق اسید بلاک ۱ بوده که از شرکت الوان ثابت همدان خریداری شده و بدون تصفیه بعدی مورد استفاده قرار گرفت. فرمول شیمیایی، وزن مولکولی و حداکثر طول موج جذب برای رنگ اسید بلاک ۱ به ترتیب عبارت از

$\text{C}_{22}\text{H}_{16}\text{N}_{60}\text{O}_9\text{S}_{22}\text{Na}$ ،  $618/54 \text{ (g/mol)}$  و  $622 \text{ (nm)}$  می‌باشند، همچنین ساختار شیمیایی رنگ در زیر نشان داده شده است. سایر مواد شیمیایی مورد استفاده در این مطالعه دارای خلوص آزمایشگاهی بوده و از شرکت مرک آلمان تهیه شد. این تحقیق یک مطالعه بنیادی-کاربردی است که در مقیاس آزمایشگاهی انجام گرفته است. تمامی آزمایشات دردمای آزمایشگاه، سیستم ناپیوسته و در بشرهایی به حجم ۲۵۰ میلی لیتر انجام گردید. برای تنظیم pH از اسید هیدروکلریک و سودیک نرمال استفاده شد. از طریق وزن کردن و حل نمودن مقادیر مورد نیاز رنگ اسید بلاک ۱ در آب مقطر دیوار تقطیر، محلول ذخیره (۵۰۰ میلی گرم بر لیتر رنگ) تهیه شد. برای ساخت سایر محلول‌های رنگی با غلظت‌های متفاوت از محلول ذخیره استفاده شد. بعد از به دست آوردن حداکثر طول موج جذب در طیف ۶۲۲ نانومتر اقدام به رسم منحنی کالیبراسیون شد. برای این کار غلظت‌های مختلفی از محلول رنگ تهیه و مقدار جذب آنها در طول موج ۶۲۲ نانومتر با استفاده از دستگاه اسپکتروفومتر (UV/Vis) (Hatch-DR<sub>5000</sub>) ثبت گردید و منحنی کالیبراسیون تهیه گردید.



شکل ۱: ساختار شیمیایی رنگ اسید بلاک ۱



گرفته و در زمان ۶۰ دقیقه به تعادل رسید. وقتی زمان تماس از ۵ به ۶۰ دقیقه افزایش یافت، راندمان حذف رنگ نیز از ۷۷/۶۶ درصد به ۹۸/۸۳ درصد افزایش پیدا کرد (نمودار ۱).

جهت تعیین اثر pH روی جذب رنگ توسط نانو لوله‌های کربنی چند دیواره، دو غلظت رنگ ۳۰ و ۵۰ میلی گرم بر لیتر انتخاب و pH آن در محدوده (۱۰ تا ۳) تنظیم و دوز جذب برابر ۶۰۰ میلی گرم در لیتر استفاده شد. پس از طی زمان ۶۰ دقیقه (زمان تعادل) از محلول‌ها نمونه برداری و پس از آنالیز راندمان حاصله به دست آمد. نمودار ۲ میزان حذف رنگ را نسبت به تغییرات pH نشان می‌دهد. بر اساس نتایج حاصله تغییر pH محیط در بازه حذف رنگ اثر قابل ملاحظه‌ای دارد. نتایج نشان داد که با کاهش pH و اسیدی شدن محیط راندمان جذب افزایش یافت. به نحوی که حذف رنگ برای دو غلظت ۳۰ و ۵۰ میلی گرم بر لیتر رنگ در pH = ۳ به ترتیب ۹۸/۹ درصد و ۹۴/۷ درصد بود.

در مرحله بعد تأثیر مقدار مصرفی نانو تیوب کربن چند دیواره روی حذف رنگ از اسید بلاک ۱ و همچنین اثر غلظت اولیه رنگ روی راندمان جذب مورد بررسی قرار گرفت. برای این منظور در مرحله اول جهت بررسی تأثیر میزان دوز جذب روی میزان حذف رنگ، دو غلظت رنگ ۵۰ و ۳۰ میلی گرم بر لیتر، pH بهینه ۳ و زمان تعادل ۶۰ دقیقه و میزان دوز مختلف جاذب (۱۰۰-۶۰۰ میلی گرم بر لیتر) استفاده شد. همچنین در مرحله بعد با استفاده از دوز جاذب ۶۰۰ گرم در لیتر، pH برابر ۳، زمان تعادل ۶۰ دقیقه، غلظت‌های مختلف از رنگ (۲۰ تا ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر) مورد ارزیابی قرار گرفت. در نهایت پس از جداسازی فاز جامد از مایع، میزان رنگ حذف شده تعیین گردید. همان گونه که از نتایج مشخص است افزایش مقدار جاذب از ۱۰۰ تا ۶۰۰ میلی گرم بر لیتر باعث افزایش راندمان حذف

در این مطالعه تأثیر زمان تماس، pH محلول، دوز جاذب، و غلظت اولیه رنگ مورد بررسی قرار گرفت. آزمایشات با استفاده از دستگاه لرزان با دور ۱۵۰ rpm انجام گرفت. قبل از آنالیز، جهت جداسازی محلول رنگ از جاذب از سانتریفیوژ با دور ۴۰۰۰ rpm و مدت زمان ۱۰ دقیقه استفاده شد و در نهایت غلظت باقیمانده رنگ برای هر متغیر توسط دستگاه اسپکترو فتومتر (Hatch-UV/Vis) (DR5000) آنالیز و راندمان فرآیند تعیین گردید. تحلیل داده‌ها با استفاده از نرم افزار Excel انجام گرفت.

در این مطالعه، مقدار رنگ جذب شده در زمان تعادل و کارایی حذف رنگ (E) به ترتیب با استفاده از معادلات (۱) و (۲) تعیین شد (۲۱).

در این روابط،  $C_0$  و  $C_e$  به ترتیب غلظت اولیه و نهایی رنگ در محلول (mg/L)،  $V$  حجم محلول (L)،  $M$  جرم جاذب (g)،  $q_t$  ظرفیت جذب در زمان تعادل (mg/g) و  $E$  راندمان حذف می‌باشد.

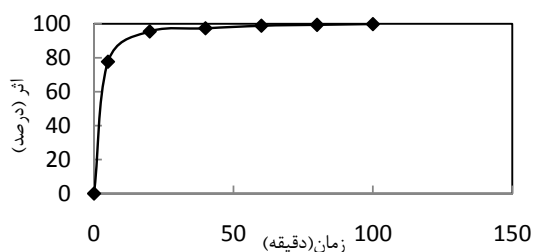
### یافته‌ها

جهت تعیین تأثیر زمان تماس روی راندمان حذف رنگ توسط نانو لوله‌های کربنی چند دیواره در غلظت اولیه رنگ ۳۰ میلی گرم بر لیتر پس از تنظیم pH روی ۳ با استفاده از میزان جاذب ۶۰۰ میلی گرم در لیتر مورد بررسی قرار گرفت. تأثیر زمان تماس در حذف رنگ توسط نانو لوله‌های کربنی چند دیواره در نمودار ۱ نشان داده شده است. نتایج بدست آمده نشان می‌دهد که با افزایش زمان تماس تا رسیدن به زمان تعادل راندمان حذف رنگ افزایش یافته و بیشترین میزان جذب رنگ در زمان تماس ۳۰ دقیقه اول صورت

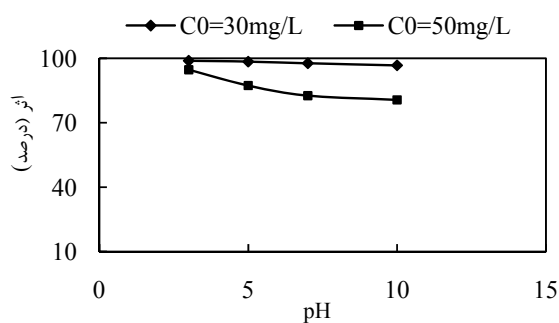


طوری که برای غلظت ۲۰ میلی گرم بر لیتر رنگ راندمان ۹۸/۹۲ درصد و برای غلظت ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر رنگ راندمان ۶۲/۰۳ درصد بدست آمد. نتایج حاصل در نمودار ۳ نشان داده شده است.

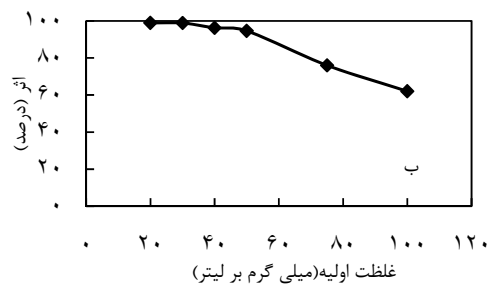
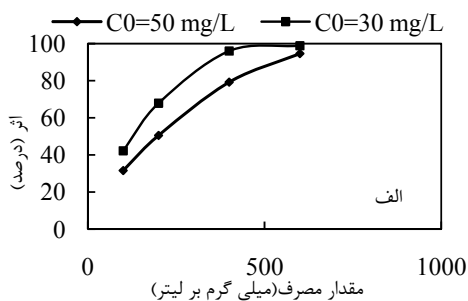
رنگ شده و در دوز ۶۰۰ میلی گرم بر لیتر راندمان حذف برای رنگ با غلظت ۳۰ و ۵۰ به ترتیب ۹۸/۸۶ درصد و ۹۴/۶۲ درصد به دست آمد. با افزایش غلظت اولیه رنگ راندمان حذف کاهش می یابد، به



نمودار ۱: اثر زمان تماس روی جذب رنگ اسید بلاک ۱ توسط نانولوله کربنی



نمودار ۲: اثر pH روی جذب رنگ اسید بلاک ۱ توسط نانولوله کربنی



نمودار ۳: الف) اثر دوز جاذب روی جذب رنگ اسید بلاک ۱ توسط نانولوله کربنی  
ب) اثر غلظت اولیه رنگ روی جذب رنگ اسید بلاک ۱ توسط نانولوله کربنی



لانگمویر ( $R^2=0/999$ ). تبعیت می‌کند. همچنین در این مطالعه از سه نوع معادله سینتیک درجه اول، دوم و نفوذ بین ذره‌ای برای ارزیابی نوع واکنش استفاده شد. فرم کلی معادلات و نتایج در جدول ۲ نشان داده شده است.

با توجه به ضرایب ثابت سینتیکی برای دو غلظت رنگ ۳۰ و ۵۰ میلی گرم بر لیتر با  $R^2=0/999$  و  $R^2=0/995$ . واضح است که داده‌های سینتیکی از سینتیک درجه دوم نسبت به دو نوع سینتیک دیگر تبعیت بیشتری داشته است. در نمودار ۴ ایزوترم جذب لانگمویر و نمودار سینتیک درجه دو در حذف رنگ اسید بلاک ۱ دیده می‌شود.

در این مطالعه از مدل‌های فروندلیچ، لانگمویر و تمکین برای توصیف معادله جذب رنگ روی نانو لوله‌های چند دیواره استفاده گردید. در مدل فروندلیچ میزان جذب سطحی جسم حل شده با افزایش غلظت به طور نامحدود افزایش می‌یابد. در مدل لانگمویر فرض بر این است که فقط یک لایه جذب روی سطحی که دارای تعداد زیادی سایت جذب است اتفاق می‌افتد. معادلات و نتایج این ایزوترم‌ها به ترتیب در جدول نشان داده شده است.

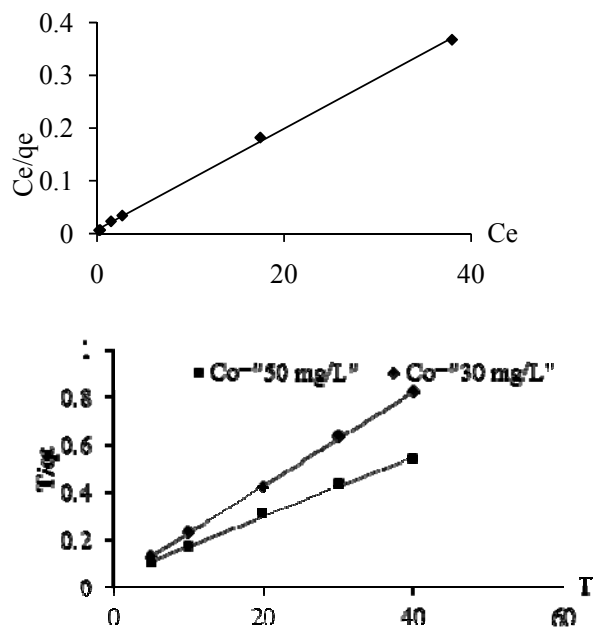
نتایج حاصل از مطالعات ایزوترمی و ضرایب همبستگی نشان می‌دهد که جذب رنگ اسید بلاک ۱ از ایزوترم

جدول ۱: معادلات و نتایج حاصل از محاسبات ایزوترم‌های مورد بررسی (۲۱)

نوع ایزوترم	معادله اصلی	فرم خطی	پارامتر ایزوترم	دما (کلوین)
فروندلیچ	$q_e = K_f C_e \frac{1}{n}$	$\log q_e = \log K_f + \left(\frac{1}{n}\right) \log C_e$	n	۵/۰۵۰
لانگمویر	$q_e = \frac{Q_m K_L C_e}{1 + K_L C_e}$	$\frac{C_e}{q_e} = \left(\frac{1}{K_L Q_m}\right) + \left(\frac{1}{Q_m}\right) C_e$	$Q_m$ $K_L$ $R^2$	۵۵/۲۰۷ ۰/۸۹۹ ۱۱۱/۱۱۱ ۱/۲۸۵ ۰/۹۹۹
تمکین	$q_e = B \ln(k_T C_e)$	$q_e = B_1 \ln k_T + B_1 \ln C_e$	$B_T$ $R^2$ n	۹۹/۶۲۱ ۱۲/۹۱۲ ۰/۹۶۹

جدول ۲: معادلات فرم خطی و نتایج حاصل از محاسبات سینتیک‌های مورد بررسی (۲۲)

نوع سینتیک	فرم خطی معادله	پارامتر سینتیک	مقدار در غلظت $C_0=50 \text{ mg/L}$	مقدار در غلظت $30 \text{ mg/L}$
درجه اول	$\log(q_e - q_t) = \log(q_e) - \frac{k_1}{2.303} t$	$k_1$ $q_e(\text{calc}_0)$ $R^2$	۰/۴۸۳ ۳۷/۵۸۱ ۰/۹۷۵	۰/۰۶۹ ۱۲/۳۸۷ ۰/۸۸۵
درجه دوم	$\frac{t}{q_t} = \left(\frac{1}{k_2 q_e^2}\right) + \left(\frac{1}{q_e}\right) t$	$k_2$ $q_e(\text{calc}_0)$ h $R^2$	۰/۰۰۳ ۸۳/۳۳۳ ۲۱/۲۷۶ ۰/۹۹۵	۰/۰۱۲ ۵۲/۶۳۱ ۳۳/۳۳۳ ۰/۹۹۹
پخش بین ذره‌ای	$q_t = K_{dif} t^{0.5} + C$	$K_{dif}$ C $R^2$	۵/۶۵۳ ۳۸/۴۴۳ ۰/۹۹۲	۲/۳۳ ۳۴/۹۷ ۰/۸۷۱



نمودار ۴: مدل سازی ایزوترم جذب لانگمویر و سیپتییک درجه دو جذب رنگ اسید بلاک ۱ با استفاده از: دماهای مختلف و غلظت رنگ اولیه ۳۰ و ۵۰ mg/L

### بحث و نتیجه گیری

PEF/oxalate به حداکثر مقدار خود رسید و راندمان حذف رنگ ۹۳/۸ درصد به دست آمد (۲۴). همچنین این تحقیق نشان داد که در pH اسیدی، حداکثر حذف رنگ صورت می گیرد و علت جذب شدن رنگ در pH پایین این است که جاذبه الکترواستاتیک بین مولکول رنگ (بار منفی) و سطح جاذب (بار مثبت) افزایش یافته و میزان جذب رنگ روی سطوح جاذب افزایش می یابد، به عبارتی درجه یونیزاسیون آلاینده ها به گروه های عامل روی سایت های فعال جاذب و همچنین ساختار مولکول های رنگ بستگی دارد (۲۵، ۲۶). در مطالعه انجام شده توسط محوی و همکاران نتایج به دست آمده نشان داد که در (pH > 6/8) سطح ذرات TiO<sub>2</sub> دارای بار روی مثبت شده طوری که یک جذب الکترواستاتیک بین بار منفی سطح جاذب

همانطور که در نمودار ۱ نشان داده شده با افزایش زمان تماس میزان حذف رنگ افزایش قابل ملاحظه ای یافت و حداکثر میزان رنگ حذف شده در ۳۰ دقیقه اول اتفاق افتاد. دلیل آن افزایش احتمال برخورد مولکول های رنگ با سطح جاذب در مراحل اولیه از زمان واکنش به علت وجود سایت های فعال اشباع نشده می باشد. در مطالعه انجام شده توسط ناطقی و همکاران بر حذف رنگ توسط نانو ذرات اکسید نیکل نیز نتایج نشان دادند که با افزایش زمان میزان حذف رنگ افزایش یافته و بعد از ۳۰ دقیقه زمان راندمان حذف رنگ به ۸۱ درصد رسید (۲۳). در تحقیقی که خاطعی و همکارانش انجام شد نتایج نشان داد که میزان حذف رنگ در ۶۰ دقیقه از زمان واکنش در فرایند



میلی گرم بر لیتر رنگ به ۳۲/۹۷ میلی گرم بر گرم و برای غلظت رنگ ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر به ۱۰۳/۳۸ میلی گرم بر گرم رسید. علت این امر افزایش در نیروی ناشی از گرادیان غلظت می‌باشد (۳۱، ۱۴). در مطالعه انجام شده توسط ناتارجان و همکارانش بر حذف رنگ رودامین بلو، نتایج به دست آمده نشان داد که با افزایش غلظت رنگ درصد حذف رنگ از ۹۶ درصد به ۵۱ درصد رسید (۳۲). نتایج حاصل از مطالعات ایزوترمی مطابق جدول ۱ نشان می‌دهد که جذب رنگ اسید بلاک ۱ از ایزوترم لانگمویر تبعیت می‌کند و ضریب همبستگی آن  $R^2 = 0.999$  می‌باشد، همچنین در مطالعه انجام شده توسط سمرقندی و همکارانش با جذب پامیس نتایج حاصل از مطالعات ثابت تعادل نشان داد که حذف رنگ اسید بلاک ۱ از معادله ایزوترمی لانگمویر ( $R^2 > 0.98$ ) تبعیت می‌کند (۳۳). در پژوهش انجام شده توسط چاترچیو و همکارانش نیز معادله ایزوترمی از ایزوترم لانگمویر پیروی کرد و ضریب همبستگی آن برابر  $R^2 = 0.998$  به دست آمد (۳۴). نتایج و محاسبات حاصل از معادلات سینتیکی مشخص می‌کند که سینتیک حذف رنگ توسط نانولوله کربنی چند دیواره از معادله سینتیک درجه دوم پیروی می‌کند ( $R^2 = 0.99$ ). در تحقیقی که توسط کیو و همکاران روی حذف رنگ‌های کاتیونی انجام گرفت، نشان داد جذب رنگ روی نانو تیوب‌های دیواره مغناطیسی شده از مدل سینتیک درجه دو پیروی می‌کند (۳۵).

در نهایت، نتایج مطالعه حاضر نشان داد که یک رابطه خطی بین pH و مقدار نانو تیوب کربن مصرفی وجود دارد، به نحوی که در pH بالاتر، به نانو تیوب کربن بیشتری نیاز است. همچنین بهترین شرایط به دست آمده در حذف رنگ مورد مطالعه شامل

و آنیون‌های رنگ به وجود آمد (۲۷). در مطالعه انجام شده توسط چانگ و همکاران در حذف رنگ اسید بلاک ۱ نتایج نشان داد که در  $pH = 3$  بالاترین راندمان حذف رنگ رخ می‌دهد و با افزایش pH به ۴ یون‌های اکسید روی سطح آهن صفر تجمع کرده و از حذف رنگ توسط جاذب جلوگیری می‌کنند (۲۸). با توجه به نتایج به دست آمده در نمودار ۳ (الف) نشان می‌دهد که با افزایش دوز جاذب، میزان حذف رنگ نیز افزایش یافت. بهترین حالت برای حذف رنگ در دوز بالای نانو تیوب کربن چند دیواره و غلظت پایین رنگ می‌باشد. افزایش درصد حذف رنگ با افزایش دوز جاذب به دلیل افزایش سایت‌های فعال جذب اشباع نشده است که توسط مولکول‌های رنگ اشغال می‌شوند (۲۹). در پژوهش انجام شده توسط لیو و همکارانش بر حذف رنگ Neutral Red با نانو تیوب کربن هالوسیت نتایج به دست آمده نشان داد که با افزایش دوز جاذب از ۰/۰۵ به ۰/۴ گرم برای غلظت رنگ ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر راندمان حذف رنگ از ۵۳/۷ به ۹۹/۷ درصد افزایش یافت (۳۰). تغییرات غلظت اولیه آلاینده جذب شونده از عوامل دیگری است که میزان جذب را تحت تأثیر قرار می‌دهد. همچنین بررسی‌ها نشان داد که با افزایش غلظت اولیه رنگ راندمان حذف رنگ کاهش یافت. کاهش حذف رنگ با افزایش غلظت اولیه رنگ به این دلیل می‌باشد که در غلظت‌های پایین رنگ بیشتر مولکول‌های رنگ روی سطح جاذب، جذب شده و در مقدار ثابت از جاذب، بیشتر سایت‌های فعال اشباع شده و ظرفیت آنها سریعتر اشباع شده است. همچنین مقدار رنگ جذب شده بر روی جاذب نانو تیوب کربن چند دیواره با افزایش در میزان غلظت اولیه رنگ روند افزایشی داشت به طوری که ظرفیت جذب رنگ برای غلظت ۲۰





زمان واکنش ۶۰ دقیقه و  $\text{pH}=3$  و دوز نانوتیوب کربن چند دیواره ۶۰۰ میلی گرم بر لیتر می باشد. اگرچه همه پارامترهای مطالعه شده مهم و تأثیرگذار هستند اما می توان گفت از بین این پارامترها  $\text{pH}$  محلول نقش مهم تری در این مطالعه دارد و با افزایش دوز جاذب و کاهش غلظت ماده جذب شونده راندمان حذف رنگ افزایش می یابد.

## References

- 1- Natarajan TS, Thomas M, Natarajan K, et al. Study on UV-LED/TiO<sub>2</sub> process for degradation of Rhodamine B dye. J Chem. Eng 2011 ;169(1-3):126–34.
- 2- Forgacs E, Cserháti T, Oros G. Removal of synthetic dyes from wastewaters: a review Environ 2004 ;30(7):953–71.
- 3- Mishra A K, Arockiadoss T, Ramaprabhu S. Study of removal of azo dye by functionalized multi walled carbon nanotubes. J Chem Eng 2010; 162(1-3):1026-34.
- 4- Matyjas E, Rybicki E. Novel reactive red dyes autex. J Res 2003; 3(2):93-5.
- 5- Barbusinski K Majewski J. Discoloration of azo dye acid red 18 by fenton reagent in the presence of iron powder. J Environ Studies 2003 ; 12(2):151-5.
- 6- Ghaneian MT, Ghanizadeh GH, Gholami M, et al. Application eggshells as a natural sorbent in removal Reactive Red 123 dyes from synthetic textile waste water. J of Res in Medi Science 2010;4(1): 25-34.
- 7- Hui Sun J, Sun SH , Yu Sun J, et al. Degradation of azodte acid black 1 using low concentration iron of fenton process facilitated by ultrasonic irradiation. UltrasonChem 2007;14(6): 761-6.
- 8- Madrakian T ,Afkhani A, Bagheri MAH. Removal of some cationic dyes from aqueous solutions using magnetic –modified multi-walled carbon nanotubes. J Hazard. Mater 2011; 196(30): 109-14.
- 9- Stolz A. Basic applied aspect in the microbial degradation of azo dye :a review. A ppl. M icrobiol B iotechno 2001; 56(1-2):69-80.
- 10- Andrade L S, Ruotolo LA, RomeuC, et al. On the performance of fe and fe ,f doped ti-pt/pbo2 electrodes in the electrooxidation of the blue reactive 19 dye in simulated textile waste water. Chemosp 2007; 66(11): 2035-43.
- 11- Kobya M, Bayramoglu M, EyvazM. Techno-economical evaluation of electrocoagulation for the textile wastewater using different electrode connections. J. Hazard. Mater 2007;148(1-2): 311–18.



- 12- Daneshvar N, Oladegaragoze A, D jafarzadeh N. Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: An investigation of the effect of operational parameters. *J.Hazard. Mater.* B2006;129(1-3):116–22.
- 13- Gong JL, Wang B, Zeng GM, et al. Removal of cationic dyes from aqueous solution using magnetic multi- wall carbon nanotube nanocomposite as adsorbent. *J Hazard Mater* 2009;164(2-3): 1517-22.
- 14- NezamzadehEjchieh A R, Khorsandia M. Photodecolorization of Eriochrome Black T using NiS–P zeolite as aheterogeneouscatalyst. *J Hazard Mater* 2010; 176(1-3): 629–37.
- 15- Belessi VG, Romanos N, Boukos D, etal. Removal of Reactive Red 195 from aqueous solutions by adsorptionon the surface of TiO2 nanoparticles. *J Hazard Mater* 2009;170(2-3):836–44.
- 16- Hameed BH, El-Khaiary MI. Batch removal of malachite green from aqueous solutions by adsorption on oil palm trunk fibre: Equilibrium isotherms and kinetic studies. *J Hazard Mater* 2008;154(1-3): 237–44.
- 17- OzcanA, Ozcan AS. Adsorption of acid red 57 from aqueous solutions onto surfactant-modified sepiolite. *J hazard mater*2005;125(1-3):252-9.
- 18- Iigima S. Helical microtubules of graphitic carbon; letters to Nature 1991;354(07):56-8.
- 19- Yao Y, XuF, Chen M, etal. Adsorption behavior of methylen blue on carbon nanotubes. *J Bioresour Techno*2010;101(9):3040-46.
- 20- mYan XM ,Shi BY, Feng J J, etal. Adsorption and desorption of atrazin on carbon nanotubes. *J Colloid and Interface Science* 2008; 321(1): 30-8.
- 21- Thinakaran N,Baskaralingam P,Pulikesi M, etal. Removal of Acid Violet 17 from aqueous solutions by adsorption onto activated carbon prepared from sunflower seed hull. *J Hazard Mater* 2008; 151(2-3): 316–22.
- 22- Suted D, Zaharia C, Malutan T. Removal of Orange 16 reactive dye from aqueous solutions by waste sunflower seed shells. *J Serb Chem. Soc*2011; 76 (4) :607–24.
- 23- Nateghi R, Bonyadi GH,Amin MM., et al. Nickel oxide nanoparticles application as an efficient adsorbent for dye removal from synthetic wastewater treatment. *J Health Systems Research* 2011;6: 1015-21.[Persian]
- 24- Khataee AL, ZareiM, Moradkhannejhad L. Application of response surface methodology for optimization of azo dye removal by oxalate catalyzed photoelectro-Fenton process using carbon nanotube-PTFE cathode.*Desalination* 2010;258(1-3): 112–19.
- 25- Afkhami A, Tehrani M S, Bagheri H. Modified maghemite nanoparticles as an efficient adsorbent for removing somecationic dyes from aqueous solution, *Desalin* 2010 ; 263(1-3): 240–48.



- 26- Lunhong A, Zhang CH, Liaoa F, et al. Removal of methylene blue from aqueous solution with magnetite loaded multi-wall carbon nanotube: Kinetic, isotherm and mechanism analysis. *J Hazard Mater* 2011;198(30): 282–90.
- 27- Mahvi AH, Ghanbarian M, Nasseri S, et al. Mineralization and discoloration of textile wastewater by TiO<sub>2</sub> nanoparticles. *Desalin* 2009; 239(1-3): 309–16.
- 28- Chang SH, Chuang SH, Li H CH, et al. Comparative study on the degradation of I.C. Remazol Brilliant Blue R and I.C. Acid Black 1 by Fenton oxidation and Fe<sup>0</sup>/air process and toxicity evaluation, *J Hazard Mater* 2009;166(2-3): 1279–88.
- 29- Mosayebzadeh Z, Ansari R. Application of polyaniline as an efficient and novel adsorbent for azo dyes removal from textile wastewaters, *Chem Papers* 2011; 65 (1): 1–8.
- 30- Luo P, Zhao Y, Zhang B, Liu J, Yang Y. Study on the adsorption of Neutral Red from aqueous solution onto halloysite nanotubes. *Water Res* 2010; 44(5): 1489-97.
- 31- Duan J, Liu R, Chen T, et al. Halloysite nanotube-Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> composite for removal of methyl violet from aqueous solutions. *Desalina* 2012;293(1):46–2.
- 32- Natarajan T S, Thomas M, Natarajan KH, Et al. Study on UV-LED/TiO<sub>2</sub> process for degradation of Rhodamine B dye, *J ChemEngin* 2011; 169(1-3): 126–34.
- 33- Samarghandi M.R, NooriSepehr M, ZarrabiM. Et al. Mechanism and Removal Efficiency of C.I. Acid Blake 1 by Pumice Stone Adsorbent, Iran. *J Health & Environmental* 2011; 3(4):399-10.[Persian]
- 34- Chatterjee S, MW L, Woo SH. Adsorption of congo red by chitosan hydrogel beads impregnated with carbon nanotubes. *Bioreso Techno* 2010; 101(6): 1800–06.
- 35- QuS, Huang F, YuSH, et al. Magnetic removal of dyes from aqueous solution using multi-walled carbon nanotubes filled with Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> particles. *J hazard mater* 2008; 160(2-3): 643-7.



## Investigating Effectiveness of Multi-walled Carbon Nano Tubes in Acid Black1 Dye Removal from Aqueous Solution

Pourfadakari S (MSc)<sup>1</sup>, Mahvi AH (PhD)<sup>2</sup>

1. MS.c, Department of Environmental Health Engineering, Shiraz University of Medical Sciences, Shiraz, Iran

2. Corresponding Author: Assistant Professor Department of Environmental Health Engineering, Tehran University of Medical Sciences Tehran, Iran

### Abstract

**Introduction:** Dye effluents of some industries contain many toxic, carcinogenic, and mutagenic compounds; therefore, wastewater colored contaminants of such industries should be meticulously refined using an appropriate method before discharging waste-water to the environment. Therefore, this study aimed to evaluate the effectiveness of Multi-Walled Carbon Nanotubes (MWCNT<sub>S</sub>) in dye removal of Acid Black 1 (AB1) from colored wastewater.

**Methods:** This laboratory study was conducted in the batch system and MWCNT<sub>S</sub> were used as absorbents to remove AB1 dye. In fact, this study investigated the effect of various factors influencing dye removal, such as adsorbent dose, initial dye concentration, contact time, and pH.

**Results:** The study results showed that pH=3 is regarded the best pH for the dye removal. The equilibrium time for AB1 dye absorption on MWCNT<sub>S</sub> was 60 minutes. As dye concentration increased, dye removal rate decreased. Besides, increasing the amount of adsorbent increased the dye removal efficiency and at the adsorbent dose of 600 mg/L, dye removal efficiency was reported 98.86% and 94.62% for 30 and 50 mg/L dye concentrations respectively. AB1 dye removal followed Langmuir isotherm and Pseudo-second-order kinetic models.

**Conclusion:** The results of absorption studies revealed that increasing the contact time and the adsorbent dose as well as reducing the pH lead to an increase in dye removal efficiency. Overall, the study findings demonstrated that MWCNT<sub>S</sub> could be used as an efficient adsorbent in regard with decolorization of azo dyes from wastewater.

**Keywords:** Adsorption; Isotherm; Langmuir; MWCNT<sub>S</sub>