



بررسی کارایی نانوتیوب‌های کربنی چندجداره در جذب اسید هیومیک در شرایط اسیدی از محلول‌های آبی

نویسندگان: محمد حسن احرامپوش^۱، امیر حسین محوی^۲، حسین فلاح زاده^۳، سیده پروین موسوی^۴

۱. استاد گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد

۲. استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی تهران

۳. دانشیار گروه آمار و اپیدمیولوژی، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد

۴. نویسنده مسئول؛ دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، پردیس بین الملل، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد Email: seyedparvin.mosavi@yahoo.com تلفن: ۰۹۱۲۶۸۱۳۹۱۶

چکیده

سابقه و اهداف: وجود اسید هیومیک به عنوان یکی از پیش‌سازهای تری هالومتان‌ها در منابع آب از مشکلات بهداشتی بسیاری از جوامع است. در همین راستا در سال‌های اخیر، روش‌های مختلفی برای حذف اسید هیومیک، مورد توجه قرار گرفته است. این مطالعه با هدف بررسی امکان‌سنجی استفاده از نانوتیوب‌های کربنی چندجداره به عنوان جاذب در فرآیند جذب اسید هیومیک در شرایط اسیدی از محلول‌های آبی انجام شده است.

روش بررسی: این مطالعه تجربی بصورت ناپیوسته انجام شده که در آن اثر پارامترهای مختلف زمان تماس، غلظت اسید هیومیک و میزان نانوتیوب در حذف اسید هیومیک بررسی شده است. در طی مراحل مختلف تحقیق، غلظت اسید هیومیک با استفاده از اسپکتروفتومتر در طول موج ۲۵۴ نانومتر تعیین شد.

یافته‌ها: نتایج مطالعه نشان داد که حداکثر ظرفیت جذب سطحی اسید هیومیک بر روی نانوتیوب‌های کربنی چندجداره ۳۱/۳۷ میلی‌گرم بر گرم در شرایط pH اسیدی (pH=۴) اتفاق افتاده است. همچنین مشخص گردید که زمان مناسب جهت دستیابی به حداکثر جذب اسید هیومیک و حالت تعادل، ۳ ساعت می‌باشد. با افزایش دوز جاذب از ۰/۰۴ به ۰/۰۸ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر راندمان حذف برای محلول اسید هیومیک با غلظت اولیه ۲۰ میلی‌گرم در لیتر از ۹۳/۵ به ۹۶/۸ درصد افزایش می‌یابد. با کاهش غلظت اولیه اسید هیومیک از ۳۰ به ۵ میلی‌گرم در لیتر در pH=۴ و زمان ۳ ساعت راندمان حذف از ۹۱/۵ به ۹۶/۹ درصد افزایش یافته است.

نتیجه‌گیری: به دلیل اندازه کوچک، سطح مقطع زیاد، شکل کریستالی و نظم شبکه‌ای منحصر به فرد و در نتیجه واکنش‌پذیری بسیار زیاد و عملکرد قابل توجه نانوتیوب‌های کربنی چندجداره به عنوان جاذب در حذف آلاینده‌های آلی از محلول‌های آب، این جاذب می‌تواند جهت حذف اسید هیومیک مؤثر باشد.

واژه‌های کلیدی: نانوتیوب‌های کربنی چندجداره، جذب سطحی، اسید هیومیک، آب

این مقاله حاصل از پایان‌نامه کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط مصوب پردیس بین‌الملل دانشگاه علوم پزشکی شهید صدوقی یزد می‌باشد.

طلوع بهداشت

فصلنامه علمی پژوهشی

دانشکده بهداشت یزد

سال یازدهم

شماره: سوم

پاییز ۱۳۹۱

شماره مسلسل: ۳۶

تاریخ وصول: ۱۳۹۰/۱۲/۱۶

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۱/۴/۲۰

**مقدمه**

وجود مواد آلی طبیعی در منابع آبی در تصفیه آب مشکلات زیادی به ویژه در فرایندهای تصفیه متداول ایجاد کرده است. کلرزنی متداول‌ترین روش گندزدائی در تصفیه‌خانه‌های آب در تمام کشورها می‌باشد. مطالعات انجام یافته بر روی آبهایی که بوسیله ترکیبات کلر گندزدایی می‌شوند، مشخص ساخته که در اثر واکنش کلر با ترکیبات آلی طبیعی موجود در آب، گروهی از ترکیبات آلی کلره به وجود می‌آیند که تحت عنوان محصولات جانبی ناشی از گندزدایی معروف گردیده‌اند (۱،۲). ترکیبات آلی موجود در آب‌های طبیعی از تجزیه مواد گیاهی و حیوانی منشاء می‌گیرند. متداول‌ترین مواد آلی طبیعی در آب‌های سطحی اسیدهای هیومیک و فولویک می‌باشند. غلظت مواد آلی در آب‌های سطحی ۱۰ تا ۳۰ میلی‌گرم در لیتر گزارش شده است. این ترکیبات با فلزات سنگین که اکثراً سرطان‌زا هستند ترکیب شده و باعث انتقال این ترکیبات خطرناک به منابع آبی می‌شوند، و از طرفی این ترکیبات با حشره کش‌ها تشکیل کمپلکس می‌دهند و در واکنش با کلر ایجاد ترکیبات سرطان‌زا می‌کنند (۳،۴،۵). اسید هیومیک ۶۰ تا ۹۰ درصد ترکیبات آلی طبیعی را تشکیل می‌دهد. وجود ترکیبات آلی در آب تصفیه شده باعث رشد مجدد میکروارگانیسم‌های بیماری‌زا در شبکه توزیع آب می‌شود و از طرفی این ترکیبات باعث گرفتگی صافی‌های غشایی، رزین‌های آنیونی و جلوگیری از اکسیداسیون آهن و منگنز می‌شوند (۳،۴،۵). از روش‌های معمول حذف تری هالومتان‌ها و پیش‌سازهای آنها می‌توان به استفاده از کربن فعال، فرایندهای غشایی، انعقاد پیشرفته اشاره کرد (۴،۵،۶،۷،۸).

اما در کاربرد این روش‌ها محدودیت‌های زیادی وجود دارد که مهمترین آن‌ها شامل بالا بودن هزینه بهره‌برداری و سرمایه‌گذاری اولیه، گرفتگی، تولید لجن زیاد، کاهش pH آب، تولید آب بسیار خورنده و نیاز به عملیات احیا است (۴،۵،۹). فرایند جذب سطحی یکی از روش‌های مورد استفاده در حذف پیش‌سازها می‌باشد. به طور کلی جذب سطحی فرایند جمع‌آوری موادی است که به صورت محلول در فصل مشترک مناسبی قرار دارند. در جذب سطحی از مواد مختلفی مثل کربن فعال، گرانوله و پودری، خاکستر، بنتونیت، فسفر هیدرات سلولز، بیومس، زغال فعال پودری، زغال کک، خاک چینی استفاده شده است (۱۰،۱۱،۱۲،۱۳). جاذب‌ها به طور وسیعی جهت حذف آلاینده‌های آلی و معدنی به کار رفته‌اند. در این میان نانوتیوب‌های کربنی به دلیل داشتن سطح بسیار وسیع، اندازه کوچک و ساختمان چند لایه‌شان در حذف آلاینده‌ها بسیار مناسب عمل کرده‌اند (۱۳). کو و همکاران در سال ۲۰۰۸ نانوتیوب‌های کربنی چندجداره‌ای را که با Fe_2O_3 پوشش داده شده بود جهت حذف دو نوع رنگ متیلن بلو و قرمز به کار بردند. نتایج نشان داد که زمان مورد نیاز برای رسیدن به تعادل در جذب حدود ۶۰ دقیقه و نانوتیوب‌های کربنی چندجداره در حذف این رنگ‌ها بسیار کارآمد عمل کرده و ظرفیت جذب متیلن بلو و قرمز به ترتیب $42/3$ و $77/5$ mg/gr بود (۱۴). جیا و همکاران در سال ۲۰۰۹ حذف رنگ اسیدی قرمز B را توسط نانوتیوب‌های کربنی تک‌جداره و چندجداره اندازه‌گیری کردند آن‌ها متوجه شدند که ظرفیت جذب به ترتیب $58/5$ و 85 mg/gr برای نانوتیوب کربنی تک‌جداره و چندجداره بود (۱۵). در این تحقیق هدف حذف اسید هیومیک



که در این راستا از داده‌های ارائه شده توسط پژوهشگاه صنعت نفت بهره‌گیری شده است.

تصویری از SEM و TEM مربوط به نانوتیوب‌های کربنی چندجداره مصرفی در شکل ۱ و ۲ نشان داده شده است. قطر خارجی MWCNTs، ۳۰-۱۰ نانومتر و قطر داخلی آن ۳/۸ نانومتر بود. همچنین طول آن ۱۰ میکرومتر و سطح مخصوص آن ۲۷۰ مترمربع بر گرم بوده و خلوص نانوتیوب‌های مصرفی ۹۵٪ بوده است.

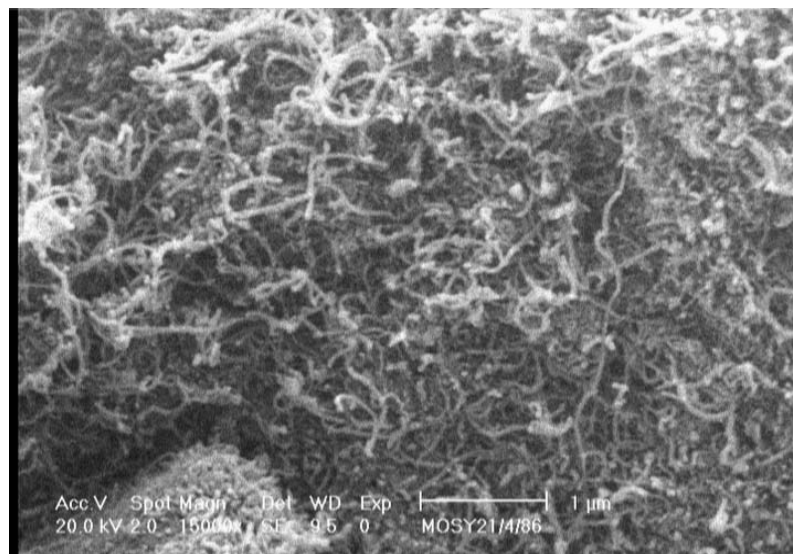
در این مطالعه، از اسید هیومیک محصول شرکت سیگما آلدیچ برای تهیه نمونه‌ها استفاده شده است. بقیه مواد استفاده شده از شرکت مرک آلمان تهیه شده است. به منظور حذف نانوتیوب‌ها از محلول، از فیلترهای ۰/۲ میکرون استات سلولز محصول شرکت سارتریوس آلمان استفاده شد. جهت انجام مطالعه ابتدا محلول ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر اسید هیومیک تهیه گردید و سپس برای تهیه نمونه‌های آب با غلظت مشخص اسید هیومیک مورد استفاده قرار گرفت.

به عنوان یک ماده آلاینده آلی در محیط آبی و شرایط اسیدی توسط نانوتیوب‌های کربنی چندجداره است.

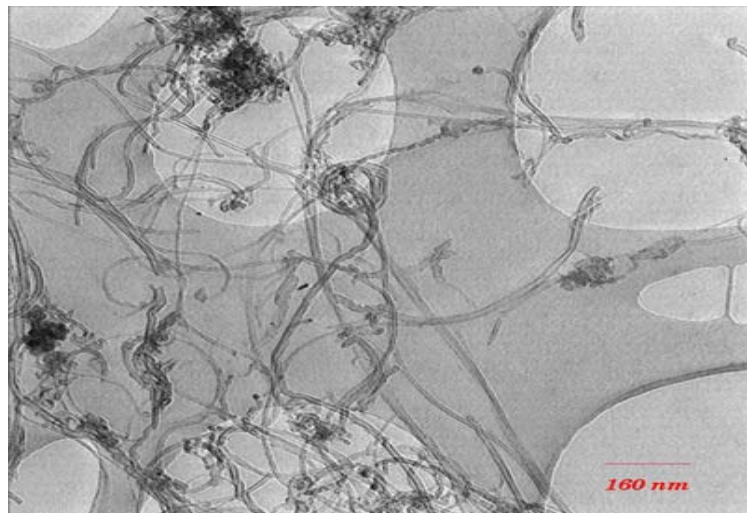
روش بررسی

این مطالعه یک مطالعه تجربی می‌باشد که به صورت ناپیوسته و در آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد انجام گردیده است.

نانوتیوب‌های کربنی چندجداره (MWCNTs) Mullti Walled Carbon Nanotubes محصول پژوهشگاه صنعت نفت ایران بوده است. جهت بررسی موقعیت قرارگیری گروه‌های عامل در سطح نانوتیوب‌ها از تصویر میکروسکوپ الکترونیکی (SEM) Scanning Electron Microscopy، اندازه و ساختار MWCNTs توسط میکروسکوپ الکترونی عبور دهنده (TEM) Transmission Electron Microscopy و سطح مخصوص نانوتیوب‌ها توسط روش بت (BET) Brunauer, Emmett & Teller استفاده می‌شود



شکل ۱: شکل SEM نانوتیوب‌های کربنی چندجداره



شکل ۲: TEM نانوتیوب‌های کربنی چندجداره

آزمایش‌ها با دو بار تکرار انجام شد و نتایج ارائه شده، بیانگر میانگین داده‌های به دست آمده است. میزان جذب اسید هیومیک توسط MWCNTs از معادله زیر محاسبه گردید.

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)}{M} \times V$$

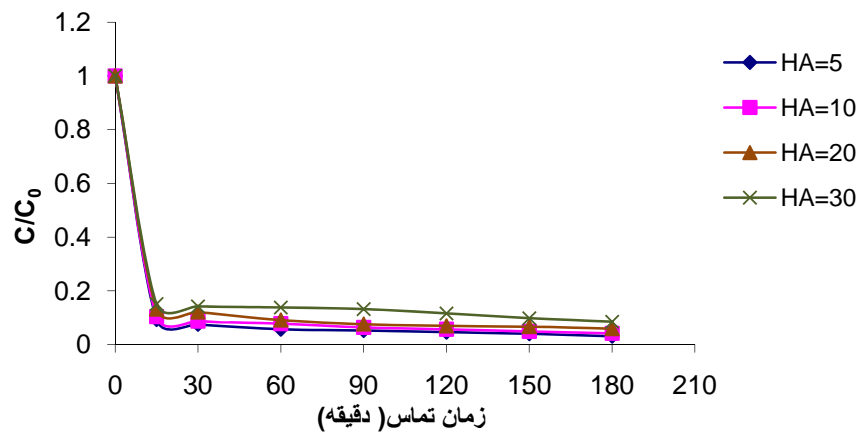
C_0 و C_e به ترتیب غلظت اولیه و پایانی اسید هیومیک (mg/l) و M میزان نانوتیوب کربنی چندجداره مصرفی (g) و V حجم مایع مورد نظر (l) است.

یافته‌ها

به منظور بررسی تاثیر غلظت اسید هیومیک در جذب، محلول‌های اسید هیومیک با غلظت ۵ تا ۳۰ میلی‌گرم در لیتر تهیه و pH محلول در ۴ تنظیم و اثر زمان‌های تماس مختلف در دوز جذب ۰/۰۶ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر بررسی شد که نتایج آن در نمودار ۱ نشان داده شده است. میزان حذف اسید هیومیک نسبت به غلظت اولیه در غلظت ۵ mg/l، ۹۷ درصد و در غلظت ۳۰ mg/l، ۹۲ درصد بوده است به عبارتی با کاهش غلظت اولیه اسید هیومیک، میزان راندمان حذف توسط دوز ثابت جذب بیشتر است.

در این مطالعه پارامترهای مختلفی از قبیل غلظت اولیه اسید هیومیک، pH، دوز جذب و زمان تماس مورد بررسی قرار گرفته است. از بطری‌های شیشه‌ای در بسته ۲۵۰ میلی‌لیتری برای انجام آزمایش‌ها استفاده شد و ۰/۱ N HCl جهت تنظیم pH نمونه‌ها (pH=۴) به کار رفت. بطری‌های ۲۵۰ میلی‌لیتری که حاوی دوزهای مختلف ۰/۰۴ و ۰/۰۶ و ۰/۰۸ گرم جذب نانوتیوب‌های کربنی چندجداره و ۱۰۰ میلی‌لیتر از محلول اسید هیومیک با غلظت‌های مختلف ۵ و ۱۰ و ۲۰ و ۳۰ میلی‌گرم در لیتر بودند در ۷ بازه زمانی مختلف از ۱۵ تا ۱۸۰ دقیقه بر روی شیکر قرار داده شد و با شدت ۱۴۰ دور در دقیقه اختلاط صورت گرفت.

در پایان هر یک از مراحل تحقیق برای جداسازی نانوتیوب‌ها از محلول، از فیلتر استات سلولز ۰/۲ میکرون استفاده شد و سنجش غلظت اسید هیومیک در نمونه‌های استاندارد و مجهول با استفاده از اسپکتروفتومتر UV/Visible مدل SP-3000 Puls-Japan و رسم منحنی کالیبراسیون در طول موج ۲۵۴ نانومتر انجام شد (۱۶).



نمودار ۱: تاثیر غلظت اولیه اسید هیومیک بر جذب آن در زمان‌های مختلف

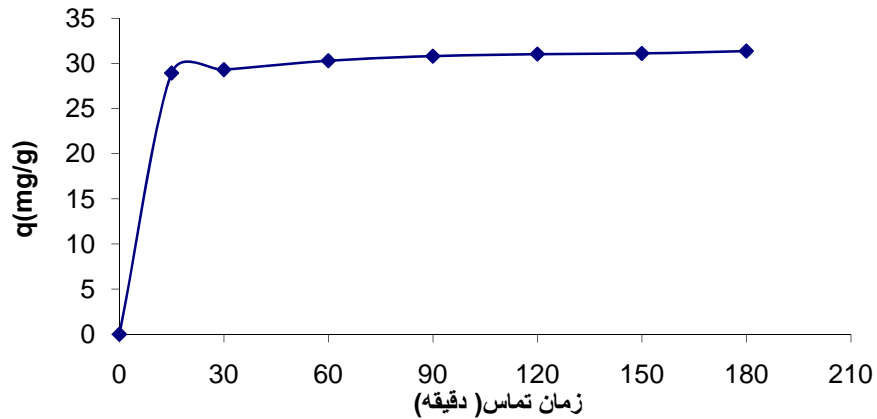
در لیتر تهیه و مقادیر مختلفی از جاذب (۰/۰۲ تا ۰/۱ گرم) به آنها اضافه شد. نمونه‌ها به مدت ۳ ساعت بر روی شیکر مخلوط شده و طبق مراحل قبل غلظت باقی‌مانده اسید هیومیک اندازه‌گیری شد. نتایج این مرحله نشان داد که با افزایش جرم جاذب از ۰/۰۲ به ۰/۱ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر، میزان اسید هیومیک باقی‌مانده در محلول از ۱/۵۶ به ۰/۱۴ میلی‌گرم در لیتر کاهش یافته (نمودار ۳) و راندمان حذف اسید هیومیک از ۹۲ تا ۱۰۰ درصد افزایش می‌یابد.

بر اساس نتایج این مرحله، هر چند با افزایش میزان جاذب استفاده شده راندمان جذب افزایش یافته و اسید هیومیک باقی‌مانده در محیط کمتر می‌باشد، اما با توجه به محاسبات انجام شده با افزایش میزان جاذب از ۰/۰۲ به ۰/۱ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر نمونه، مقدار آلاینده جذب شده در واحد جرم جاذب از ۹۲/۲ به ۱۹/۸۶ میلی‌گرم بر گرم کاهش می‌یابد به طوری که بر اساس این محاسبات دوز مناسب جاذب در این مطالعه در حد ۰/۰۶ گرم تعیین و در سایر بخش‌های مطالعه مورد استفاده قرار گرفته است (نمودار ۴).

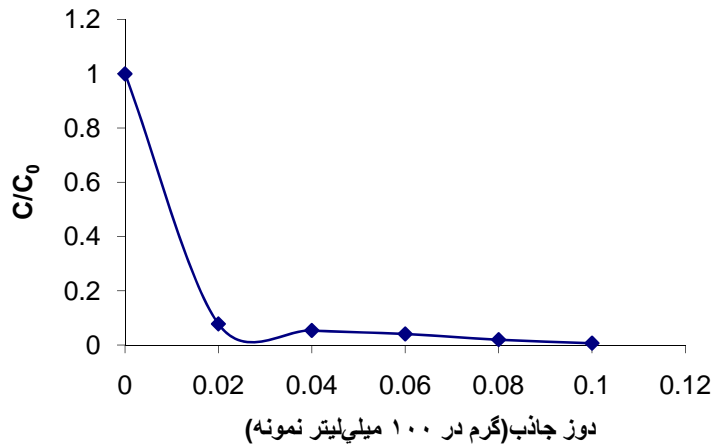
نتایج این مرحله نشان داد که هر چند با افزایش زمان تماس، میزان جذب افزایش می‌یابد اما جذب اسید هیومیک بر روی نانوتیوب کربنی چندجداره بعد از مدت ۳ ساعت به تعادل می‌رسد و بعد از این زمان میزان جذب اسید هیومیک توسط جاذب تقریباً ثابت می‌ماند.

برای بررسی اثر زمان تماس در فرآیند جذب، محلول اسید هیومیک با غلظت ۲۰ میلی‌گرم در لیتر تهیه و در تماس با دوز جاذب ۰/۰۶ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر نانوتیوب‌های کربنی چندجداره قرار داده شد و در طی زمان‌های مختلف نمونه برداری انجام شد تا زمان تعادل مشخص گردد. نمودار ۲ میزان ظرفیت جذب اسید هیومیک بر نانوتیوب‌های کربنی چندجداره را در مدت زمان‌های مختلف نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌گردد میزان حذف اسید هیومیک در ابتدا بسیار زیاد است و بعد شیب نمودار کاهش یافته و در زمان حدود ۳ ساعت به تعادل می‌رسد.

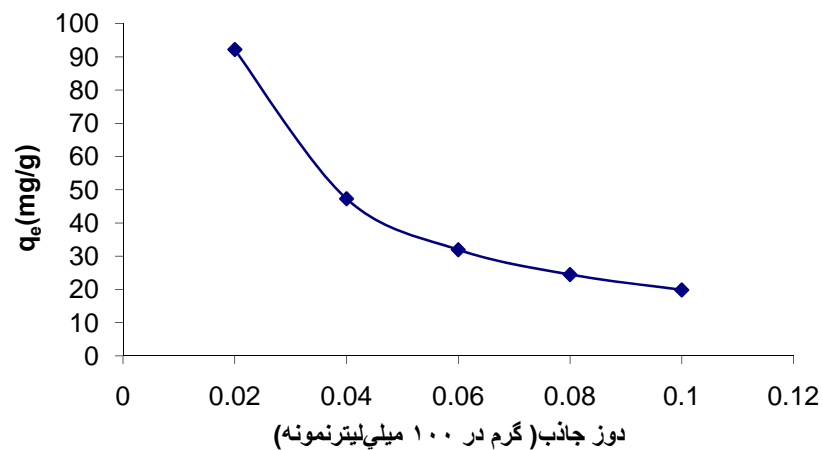
به منظور بررسی تاثیر دوز جاذب در فرآیند جذب نمونه‌هایی با حجم ۱۰۰ میلی‌لیتر با غلظت اولیه اسید هیومیک ۲۰ میلی‌گرم



نمودار ۲: تغییرات ظرفیت جذب اسید هیومیک روی نانوتیوب‌های کربنی چندجداره در زمان‌های مختلف (غلظت اولیه اسید هیومیک ۲۰ میلی‌گرم در لیتر، دوز جاذب ۰/۰۶ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر)



نمودار ۳: تاثیر دوزهای مختلف جاذب بر حذف اسید هیومیک

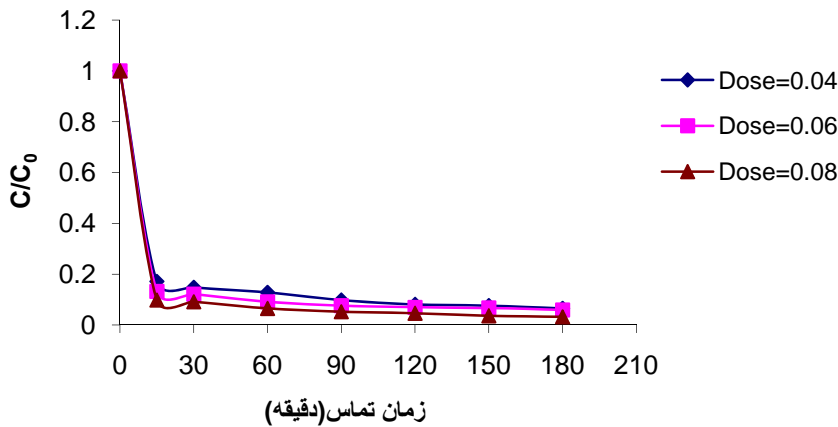


نمودار ۴: تاثیر دوزهای مختلف جاذب بر ظرفیت جذب اسید هیومیک

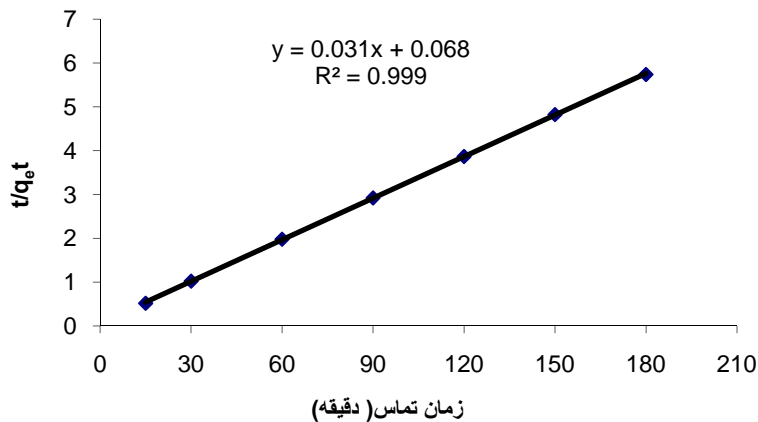


است (نمودار ۵). به منظور بررسی سینتیک جذب اسید هیومیک بر نانوتیوب‌های چندجداره، داده‌های حاصل از مطالعه در شرایط اسیدی، غلظت اسید هیومیک ۲۰ میلی‌گرم در لیتر و دوز جاذب ۰/۰۶ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر بررسی و میزان مطابقت نتایج با مدل‌های درجه صفر، اول و دوم کاذب بررسی شد. نتایج نشان داد که سینتیک جذب اسید هیومیک بر نانوتیوب‌های کربنی چندجداره از مدل سینتیک درجه دو کاذب پیروی می‌کند ($R^2=0.99$) (نمودار ۶).

در این مرحله به منظور بررسی تاثیر دوزهای مختلف جاذب (۰/۰۴، ۰/۰۶ و ۰/۰۸ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر نمونه) بر تغییرات غلظت اسید هیومیک (غلظت اولیه ۲۰ میلی‌گرم در لیتر) در زمان‌های مختلف مطالعه جذب انجام و از ۱۵ تا ۱۸۰ دقیقه نمونه برداری انجام شد که نتایج آن در نمودار ۵ نشان داده شده است. میزان راندمان حذف اسید هیومیک پس از ۳ ساعت با دوز جاذب ۰/۰۴، ۰/۰۶ و ۰/۰۸ گرم در ۱۰۰ میلی‌لیتر به ترتیب ۹۳/۵، ۹۴/۱ و ۹۶/۸ درصد بوده است به عبارتی با افزایش دوز جاذب، میزان راندمان حذف اسید هیومیک افزایش یافته



نمودار ۵: تاثیر دوز جاذب بر حذف اسید هیومیک در زمان‌های مختلف (غلظت اسید هیومیک ۲۰ mg/l)



نمودار ۶: سینتیک درجه دوم مرتبط با جذب اسید هیومیک بر نانوتیوب‌های کربنی چندجداره



بحث و نتیجه‌گیری

بر اساس نتایج، راندمان حذف اسید هیومیک به وسیله نانو تیوب‌های کربنی چندجداره از محلول با افزایش زمان و دوز جذب و کاهش غلظت اولیه اسید هیومیک، افزایش می‌یابد و در زمان ۳ ساعت، غلظت به حالت تعادل رسیده است. نتایج نشان می‌دهد که مقدار جذب اسید هیومیک تابعی از غلظت اولیه آن می‌باشد. میزان ظرفیت جذب با افزایش در غلظت‌های اولیه اسید هیومیک، افزایش می‌یابد. نتایج بدست آمده در این مرحله با تحقیقات Wang و همکاران در سال ۲۰۰۶ در زمینه حذف اسید فولویک از محلول‌های آبی با ژئولیت اصلاح شده با سورفکتانت مطابقت داشت. یافته‌های Wang و همکاران نشان داد که حذف اسید فولویک به وسیله ژئولیت اصلاح شده از محلول با افزایش غلظت افزایش یافته است تا در زمان ۱۲۰ دقیقه غلظت به حالت تعادل برسد. نتایج نشان می‌دهد که مقدار جذب اسید فولویک تابعی از غلظت اولیه آن می‌باشد. همچنین افزایش غلظت اولیه باعث افزایش اثر متقابل بین جذب و اسید فولویک می‌شود (۱۷).

افزایش جذب اسید هیومیک با افزایش مقدار جذب در نتیجه افزایش میزان سطح فعال و موثر در جذب می‌باشد. هرچند افزایش دوز جذب باعث افزایش راندمان حذف اسید هیومیک می‌گردد اما به دلیل غیر اشباع ماندن برخی از نقاط فعال موجود در سطح جذب و عدم استفاده کامل از ظرفیت آن، میزان جذب در واحد جرم جذب کاهش می‌یابد (۱۸). نتایج این مطالعه و سایر مطالعات نشان می‌دهد که افزایش میزان جذب منجر به افزایش نسبی کمتری در جذب اسید هیومیک می‌گردد و کاهش میزان آلاینده جذب شده در واحد جرم

جذب را به همراه دارد. این پدیده به عدم استفاده کامل از ظرفیت جذب ارتباط دارد (۱۹).

مقایسه نتایج این مطالعه با یافته‌های سایر محققین در خصوص تاثیر غلظت اولیه آلاینده و زمان تماس جذب نتایج مشابهی را نشان می‌دهد. به عنوان مثال Yeddou Mezenner و Bensmaili در سال ۲۰۰۹ جذب فسفر را بر روی پوسته تخم مرغ آغشته به آهن بررسی و گزارش کردند که با افزایش غلظت اولیه آلاینده و افزایش زمان تماس میزان جذب و سرعت جذب کاهش می‌یابد. در این مطالعه بیشترین میزان جذب در زمان ۶۰ دقیقه اول اتفاق افتاد و در زمان‌های تماس بیشتر، این میزان جذب کمتر بود. این تغییرات در میزان جذب در زمان‌های مختلف احتمالاً به این دلیل است که در زمان‌های تماس اولیه اغلب نقاط موجود در سطح جذب خالی است و تغییرات غلظت آلاینده در فاز مایع بیشتر بوده با گذشت زمان تعداد نقاط خالی موجود در سطح جذب کمتر شده منجر به کاهش سرعت تغییر غلظت آلاینده در فاز مایع و کاهش سرعت جذب می‌گردد. از طرفی با گذشت زمان به دلیل افزایش نیروی دافعه موجود بین ملکول‌های آلاینده جذب شده در سطح جذب، جذب آلاینده در نقاط خالی موجود در سطح جذب با سرعت کمتری انجام می‌گیرد که این امر منجر به طولانی شدن زمان جذب یا کاهش میزان جذب در واحد زمان می‌شود (۲۰).

عسگری و همکارانش در سال ۱۳۸۸ در مطالعه‌ای عملکرد ژئولیت اصلاح شده با هگزا دسیل تری متیل آمونیوم بروماید در حذف اسید هیومیک از محلول‌های آبی مورد بررسی قرار دادند. تاثیر غلظت اولیه اسید هیومیک، دوز جذب، زمان



نانوتیوب‌های کربنی چندجداره از سینتیک درجه دوم تبعیت می‌کند.

Lu و Su در سال ۲۰۰۷ جذب مواد آلی طبیعی (NOM) را بر روی نانوتیوب‌های کربنی مورد بررسی قرار دادند. در این مطالعه مقدار مواد آلی طبیعی جذب شده بر روی نانوتیوب‌های کربنی با افزایش غلظت اولیه NOM و قدرت یونی محلول افزایش یافت اما با افزایش pH محلول، کاهش یافت (۲۲).

تحقیق حاضر نشان می‌دهد که نانوتیوب‌های کربنی چندجداره (MWCNTs) در شرایط اسیدی در حذف اسید هیومیک بسیار مؤثر عمل کرده و ظرفیت جذب معادل ۳۱/۳۷ mg/gr در حضور ۰/۰۶ گرم نانوتیوب در ۱۰۰ میلی‌لیتر از محلول ۲۰ mg/l اسید هیومیک داشته است.

نانوتیوب‌های کربنی چندجداره (MWCNTs) به دلیل اندازه کوچک، سطح مقطع زیاد، شکل کریستالی و نظم شبکه‌ای منحصر به فرد و در نتیجه واکنش‌پذیری بسیار زیاد و عملکرد قابل توجه نانوتیوب‌های کربنی چندجداره به عنوان جاذب در حذف آلاینده‌های آلی به خصوص جهت حذف اسید هیومیک از محلول‌های آب می‌تواند کاربرد زیادی داشته باشد.

تقدیر و تشکر

نویسندگان لازم می‌دانند از کسانی که ما را در انجام این پژوهش یاری نموده‌اند تشکر و قدردانی نمایند، لازم به ذکر است که این مقاله حاصل پایان نامه دانشجویی می‌باشد.

References

- 1- Ke-xin Z, Hong w, Shu-guang X. Performance of combined pre-ozonation and biofiltration for the purification of water from chin yellow river. J Environ Sci. 2007; 1: 52-61.

تماس و pH در حذف اسید هیومیک با زئولیت اصلاح شده مورد تحقیق قرار گرفت. نتایج نشان داد که حذف اسید هیومیک با افزایش غلظت اولیه آن افزایش و با افزایش pH (۲ تا ۱۲) میزان جذب اسید هیومیک کاهش می‌یابد. با توجه به نتایج pH بهینه در جذب اسید هیومیک با زئولیت ۳ می‌باشد و در این pH حداکثر جذب ۹۷ درصد بدست آمد. نتایج این مطالعه نشان داد با افزایش دوز جاذب راندمان حذف افزایش می‌یابد و با افزایش زمان تماس میزان جذب اسید هیومیک در جاذب از ۳۱ به ۴۸ میلی‌گرم بر گرم افزایش یافته و بعد از مدت ۲ ساعت به تعادل می‌رسد. جذب اسید هیومیک با زئولیت اصلاح شده از سینتیک درجه یک تبعیت می‌کند (۲۱). ما نیز در این تحقیق تاثیر غلظت اولیه اسید هیومیک، دوز جاذب، زمان تماس در حذف اسید هیومیک با نانوتیوب‌های کربنی چندجداره را مورد بررسی قرار دادیم. نتایج نشان داد که میزان ظرفیت جذب اسید هیومیک با افزایش غلظت اولیه آن افزایش یافت. pH در این مطالعه در جذب اسید هیومیک با کربن نانوتیوب چندجداره ۴ بود و حداکثر جذب ۹۶/۸ درصد بدست آمد. نتایج این مطالعه نشان داد با افزایش دوز جاذب راندمان حذف افزایش می‌یابد و با افزایش زمان تماس میزان جذب اسید هیومیک در جاذب افزایش یافته و بعد از مدت ۳ ساعت به تعادل می‌رسد و حداکثر ظرفیت جذب سطحی اسید هیومیک بر روی نانوتیوب‌های کربنی چندجداره ۳۱/۳۷ میلی‌گرم بر گرم بود. جذب اسید هیومیک با



- 2- Kenneth P. Associations of cancer mortality with THMs in drinking water. *J Natl Cancer* 1978; 61: 124-129.
- 3- Kawamura S. Integrated design and operation of water treatment facilities. New York: Joh Wiley, 2000; 260-282.
- 4-Crittenden J, Rhodes R, Hand D, et al. Water treatment: Principales and design. 2 nd ed. John Wily. 2005.
- 5- Rubia A, Rodriguez M, Parts D. pH ,Ionic strength and flow velocity effects on the NOM filtration with Tio₂/Zro₂ membranes. *Separation and Purification Technology* 2006; 52: 325-331.
- 6- Salvato J A. Environmental engineering and sanitation. John Wily. 2003; 756-918.
- 7- Escobar I, Randall A. Assimilable organic carbon and biodegradable dissolved organic carbon complementary measurements. *Water Res.* 2001; 18: 4444-4454.
- 8- USEPA. Stage 1 disinfectant and disinfection by-products rule. USA .office of water. 1998; 666-684.
- 9- Odom R, Benefit – cost analysis of the stage 1 D/DBP rule. *J. AWWA* 1999; 91:137-147.
- 10- Coutinho B, Oliveira j. Removal of humic acid from water by precipitate flotation using cationic surfactants. *Min Eng* 2007; 20: 945-949.
- 11- Mohan D, Pitman Jr C U. Activated carbons and low cost adsorbents for remediation of tri-and hexavalent chromium from water. *J.Hazazard.Mater* 2006; 137:762-811.
- 12- Gianneto G, Montes A, Rodr´ıguez G. Zeolitas Caracter´ısticas,Propiedades y Aplicaciones Industriales. *Innovaci´on Tecnol´ogica*. Caracas, Facultadde Ingenier´ıa UCV, 2000; 305.
- 13- Lu C, Chiu H. Adsorption of zinc from water with purified carbon nanotubes. *Chemical Engineering Science* 2006; 61:1138-1145.
- 14- Qu S, Huang F, Yu S, et al. magnetic removal of dyes from aqueous solution using multi-wall carbon nanotubes filled with Fe₂O₃ particles. *Journal of Hazardous Materials*. 2008; 57:595-600.
- 15- Jia J, Peng X, Luan Z, et al. Removal of dyes from water by carbon nanotubes. *Fresenius Environmental Bulletin* 2009; 18:615-618.
- 16- APHA, AWWA, WPCF. Standard methods for examination of water and wastewater. 19th ed. Washington. D.C: APHA, 1998 1247–1251.
- 17-Wang S, Gong W, Liu X, et al. Removal of fulvic acids from aqueous solutions via surfactant modified zeolite. *J. Chem.Res.* 2006; 22(5): 1095-1100.
- 18- Sulak MT, Demirbas E, Kobya M. Removal of Astrazon Yellow 7GL from aqueous solutions by adsorption onto wheat bran. *Bioresour Technol* 2007; 13: 2590-2598.



-
- 19- Hameed BH, Ahmed AA, Aziz N. Isotherms, kinetics and thermodynamics of acid dye adsorption on activated palm ash. Chem.Eng. J 2007; 133:195-203.
- 20- Yeddou Mezenner N, Bensmaili A. Kinetics and thermodynamic study of phosphate adsorption on iron hydroxide-eggshell waste. Chem Eng J 2009; 2-3: 87-96.
- 21- Asgari G, Rasoli L, Mohammadi A S, et al. Survey of performance of modified zeolite with hexadecyltrimethylammonium bromide for removal of humic acids from aqueous solutions. 12 th national conference of environmental health, Shahid Beheshti University of Medical Sciences. Tehran. 2009. [Persian]
- 22- Lu C, Su F. Adsorption of natural organic matter by carbon nanotubes. Separation and Purification Technology 2007; 58: 113–121.



The Evaluation of Efficiency of Multi-Walled Carbon Nanotubes in Humic Acid Adsorption in Acidic Conditions From Aqueous Solution

Ehrampoush M.H(Ph.D)¹ Mahvi A.H (Ph.D)² Fallahzadeh H(Ph.D)³ Moussavi S.P(Ms.c)^{*4}

1.Professor ,Department of Environmental Health Engineering, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran

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

3.Associate Professor, Department of Biostatistics and Epidemiology, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran

4.Corresponding Author: MSc student in Environmental Health Engineering, International Campus of Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran

Abstract

Background : The presence of humic acid in water resources is the most health problems of many communities. In recent years, various methods have been focused on for decreasing or removing humic acid that is in water resources and is one of the Trihalomethanes (THMs) precursors. The aim of this study is investigation the use of Multi-Walled Carbon Nanotubes (MWCNTs) as adsorbent at humic acid adsorption process in acidic conditions from aqueous solution.

Methods : This experimental study was done in batch system to investigate the effects of Variations such as contact time, humic acid concentration and dose of nanotubes in removal of humic acid. In this study, humic acid concentration was determined during various steps of research using UV-vis spectrophotometer at 254 nm.

Results: The Results of this study showed that maximum surface adsorption of humic acid onto multi-walled carbon nanotubes was 31.37 mg/gr and maximum adsorption had occurred at acidic pH (pH = 4). This study also had determined that appropriate time for receiving maximum adsorption of humic acid and equalization state is 3 hours. By increasing the adsorbent dose from 0.04 to 0.08 gr per 100 ml, removal efficiency of humic acid solution with 20 mg/l initial concentration increased from 93.5 to 96.8 %. By decreasing humic acid initial concentration from 30 to 5 mg/l, removal efficiency increased from 91.5 to 96.9 % at pH=4 after 3 hours.

Conclusion : This adsorbent could be effective for removal of humic acid due to small size, large surface area, crystal shape and exclusive network arrangement and consequently very high reactivity and noticeable performance of multi-walled carbon nanotubes as adsorbent in removal of organic pollutants from aqueous solution.

Keywords: Multi-walled carbon nanotubes, Surface adsorption, Humic acid, Water