DOI: 10.22122/jhsr.v14i4.3594 Published by Vesnu Publications

# جذب بقایای لکه‌های نفتی از محلول آبی با استفاده از گرافیت ورقه ورقه

امید قاسمی[1]، ناصر مهردادی[2]، مجید بغدادی[3]، بهنوش امین‌زاده[4]

مقاله پژوهشی


## چکیده

**مقدمه:** توسعه فعالیت‌های نفتی در دریای خزر طی سال‌های اخیر، سبب آسیب به اکوسیستم این گستره آبی شده است. در پژوهش حاضر، قابلیت جذب نمونه نفتی میدان سردار جنگل دریای خزر با استفاده از گرافیت ورقه ورقه مورد بررسی و تحلیل قرار گرفت.

**روش‌ها:** جاذب نهایی با طیف‌سنج Fourier-transform Infrared spectroscopy (FTIR)، آزمایش Brunauer-Emmett-Teller (BET)، طیف‌سنج Energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS) و میکروسکوپ الکترونی روبشی Scanning electron microscopy (یا SEM) تجزیه و تحلیل گردید. میزان جذب نمونه نفتی با جاذب گرافیت ورقه ورقه به کمک روش وزنی و رویه پاسخ سطح Response surface methodology (یا RSM) در نرم‌افزار تحلیل داده Design-Expert بررسی شد.

**یافته‌ها:** گرافیت ورقه ورقه با افزایش تخلخل و انبساط ورقه‌های گرافیت، می‌تواند با افزایش ظرفیت جذب، مقادیر بسیار زیادی از مواد نفتی را نسبت به گرافیت ساده از سطح آب جذب نماید. آنالیز ساختار جاذب با استفاده از دستگاه‌ها و روش‌های SEM، FTIR، BET و EDS، نشان دهنده ورقه‌ای شدن و افزایش سطح مقطع جاذب و حجم منافذ و حفرات و در نتیجه، افزایش ظرفیت جذب گرافیت ورقه‌ای می‌باشد. اعتبار مدل RSM مورد بررسی و تأیید قرار گرفت و شاخص‌های منتخب (میزان جاذب و میزان نمونه نفتی) با استفاده از این مدل بررسی گردید و نشان داد که ماکزیمم مقدار جذب حدود ۲۷/۶ گرم نمونه نفتی با استفاده از ۱ گرم جاذب گرافیت ورقه‌ای بود.

**نتیجه‌گیری:** استفاده از گرافیت ورقه‌ای به دلیل سنتز آسان، قیمت پایین و ظرفیت جذب بالا نسبت به گرافیت ساده و دیگر جاذب‌های پایه کربنی، می‌تواند به عنوان جاذب مناسبی برای جذب نفت مورد استفاده قرار گیرد.


**واژه‌های کلیدی:** جذب، دریای خزر، گرافیت، لکه‌های نفتی

**ارجاع:** قاسمی امید، مهردادی ناصر، بغدادی مجید، امین‌زاده بهنوش. **جذب بقایای لکه‌های نفتی از محلول آبی با استفاده از گرافیت ورقه ورقه.** مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۳۹۷؛ ۱۴ (۴): ۴۷۲-۴۶۶

دریافت مقاله: ۱۳۹۷/۵/۳ پذیرش مقاله: ۱۳۹۷/۶/۲۳ تاریخ چاپ: ۱۳۹۷/۱۰/۱۵

## مقدمه

آلودگی نفتی، مهم‌ترین آلودگی دریاها و اقیانوس‌ها به شمار می‌رود. دریای خزر با وسعت ۳۷۱ هزار کیلومتر مربع، بزرگ‌ترین دریاچه جهان است که از نظر تنوع زیستی بسیار غنی می‌باشد و حدود ۴۰۰ گونه آبزی، بومی آن هستند. وجود مناطق جمعیتی متعدد در سواحل این دریا و ورود مقادیر چشمگیری از انواع فاضلاب‌های خانگی و صنعتی در کنار رشد و توسعه فعالیت‌های نفتی در کشورهای حاشیه به ویژه در سواحل مرکزی و جنوب غربی دریای خزر، باعث ورود حجم بسیار بالایی از انواع هیدروکربن‌های نفتی به این دریاچه طی سالیان اخیر شده است (۲، ۱). از جمله عمده‌ترین منابع ورود آلاینده‌های نفتی به دریای خزر می‌توان به حفاری‌های نفتی (مانند حفاری از میدان نفتی سردار جنگل که در فاصله حدود ۲۵۰ کیلومتری از ساحل بندر امیرآباد مازندران قرار دارد)، انفجار چاه‌های نفت، تصادم نفتکش‌ها، آب همراه با نفت و آب تعادل کشتی‌ها، پسماندهای تأسیسات ساحلی و فراساحلی استخراج نفت اشاره کرد (۱). این آلاینده‌ها در صورت ورود به محیط آبی برای بسیاری از آبزیان سمی می‌باشد و سلامت بشر و محیط زیست را به شدت تهدید می‌کند (۳). آلاینده‌های نفتی به دلیل چگالی کمتر، در ابتدا لکه‌های نفتی روی سطح آب تشکیل می‌دهد. روش‌های متفاوتی برای مقابله و جمع‌آوری لکه‌های نفتی و جلوگیری از تشکیل رسوبات نفتی مورد استفاده قرار می‌گیرد که از آن جمله می‌توان «بازیافت مواد نفتی به طریقه مکانیکی (بوم و اسکیمر)، رها کردن لکه‌های نفتی در جهت حرکت آب تا رسیدن به ساحل و سپس پاکسازی سواحل از آلودگی، استفاده از مواد شیمیایی (Dispersants) و استفاده از مواد جاذب» را نام برد.

از مهم‌ترین روش‌های جمع‌آوری بقایای آلودگی‌های نفتی از دریا (پس از انجام روش مکانیکی بوم و اسکیمر)، جذب و جداسازی از سطح آب توسط انواع مختلفی از جاذب‌ها می‌باشد. جاذب‌ها به دو صورت سنتزی و معدنی تولید می‌شود که نوع سنتزی ظرفیت جذب بالاتری دارد. جاذب‌های سنتزی ممکن است تا چند ده برابر وزن خود نفت جذب نماید؛ در حالی که جاذب‌های معدنی توانایی جذب نفت به میزان

۱- دانشجوی دکتری، گروه مهندسی محیط زیست، دانشکده محیط زیست، پردیس دانشکده‌های فنی، دانشگاه تهران، تهران، ایران
۲- استاد، گروه مهندسی محیط زیست، دانشکده محیط زیست، پردیس دانشکده‌های فنی، دانشگاه تهران، تهران، ایران
۳- دانشیار، گروه مهندسی محیط زیست، دانشکده محیط زیست، پردیس دانشکده‌های فنی، دانشگاه تهران، تهران، ایران
۴- استادیار، گروه مهندسی محیط زیست، دانشکده محیط زیست، پردیس دانشکده‌های فنی، دانشگاه تهران، تهران، ایران
**نویسنده مسؤول:** امید قاسمی
Email: omidghasemi506@yahoo.com



[ Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-11-17 ]
[ DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.4.8.4 ]
[ DOI: 10.22122/jhsr.v14i4.3594 ]

تنها دو برابر وزن خود را دارد (۴). یکی از جاذب‌های سنتزی که به‌تازگی بـه آن اشـاره زیادی شده است، گرافیت ورقه ورقه می‌باشد (۵). گرافیت‌ها مـی‌تواننـد بـا روش‌هـای «سبزتر»، با هزینه کمتر و بدون آسیب به محیط زیست فراهم شوند. سـهولت سـاخت، کاهش هزینه‌ها و در دسترس بودن تجاری این مواد و پـیش‌سـازهای آن‌هـا، موضـوع اصلی بررسی‌های اخیر می‌باشد. نتایج تحقیقات بیات و همکاران بر روی گرافیت ورقـه ورقه به عنوان جاذب آب دریاها و اقیانوس‌هـا (۵) و Makotchenko و همکـاران در کشور روسیه بر روی سنتز و مشخصـات جـذب گرافیـت ورقـه‌ای نشـان داد گرافیـت ورقه‌ای که به عنوان گرافیت منبسط شـده (Expanded) هـم نامگـذاری مـی‌گـردد، توانایی بالایی در جذب آلاینده‌های نفتی چند برابـر وزن خـود را دارد. ظرفیـت بـالای جذب گرافیت منبسط شده ناشی از مشخصه‌هـای مولکـولی و چگـالی کـم بـافتی آن است (۶).

گرافیـت ورقـه ورقـه بـرای اولـین بـار در قـرن نـوزدهم مـیلادی توسـط Makotchenko و همکاران تولید گردید (۶). ورقه ورقه شدن گرافیت ناشی از تغییر فاز تبخیر ماده جاشونده (Intercalate) مانند تری‌اکسید کـروم ($CrO_3$) و هیدروژن پراکسید ($H_2O_2$) به عنـوان واکـنش دهنـده در بـین لایـه‌هـای گرافیـت می‌باشد (۷). ضمن فرایند انبساط، گرافیت صدها برابر منبسط می‌شـود کـه نتیجـه آن، ایجاد ماده‌ای با دانسیته کـم و مقاومـت حرارتـی بـالا اسـت (۵). در پـژوهش حاضـر، ساختار و توانایی گرافیت ورقه ورقه در جذب نمونه نفتی میدان نفتـی سـردار جنگـل از آب دریـای خـزر بـا اسـتفاده از دسـتگاه‌هـای آنـالیز و رویـه پاسـخ سـطح (Response surface methodology یا RSM) مورد بررسی قرار گرفت.

## روش‌ها

***سنتز گرافیت ورقه ورقه:*** گرافیت منبسط شده از ورقه‌ای کـردن گرافیـت سـنتز و تولید می‌شود (۹، ۸). جهت سنتز گرافیت، بـه ازای هـر یـک گـرم گرافیـت، ۸/۵گـرم تری‌اکسید کروم و ۷ میلـی‌لیتـر اسـید هیـدروکلریک بـه درون بشـر بـا ظرفیـت ۱۰۰ میلی‌لیتر ریخته شد. محلول درون بشر در دمای محیط و به مدت دو ساعت با اسـتفاده از همزن مغناطیسی (Magnetic Stirrer) مخلوط گردید. پس از گذشت دو سـاعت، ماده تولید شده سه بار به صورت رسوبی با اسـتفاده از آب مقطـر شستشـو داده شـد تـا کروم باقی‌مانده رسوب کند. در نهایت، ۲۰ میلی‌لیتر هیدروژن پراکسید به ماده تولیـدی افزوده شد (ابتدا ۱۰ میلی‌لیتر اضافه گردیـد و پـس از ۱۰ دقیقـه، ۱۰ میلـی‌لیتـر دیگـر افزوده شد). نفوذ کروم به درون ساختار گرافیـت و واکـنش آن بـا هیـدروژن پراکسـید، باعث آزاد شدن گاز و منبسط شدن گرافیت و تولید ساختار ورقه ورقه می‌شود. گرافیـت منبسط شده در معـرض تـوده هـوای سـرد (Freeze-Dry) قـرار گرفـت (۱۱، ۱۰) و خشک گردید. شکل ۱ نمایی از گرافیت ورقه ورقه سنتز شده در آزمایش و مقایسـه آن با گرافیت ساده را نشان می‌دهد.

**شکل ۱. پودر گرافیت ساده (الف) و گرافیت منبسط شده ورقه‌ای (ب)**

***نمونه نفتی:*** نمونه نفتی مـورد اسـتفاده در آزمـایش‌هـای جـذب، از نفـت استخراج شده از میدان نفتی سردار جنگل دریای خزر تهیه گردید که نفـت خـام سبک [با شاخص American Petroleum Institute (API) برابـر بـا ۳۸)] می‌باشد. در جدول ۱، مشخصـات و ترکیبـات سـازنده مـاده جـذب شـونده و در شکل ۲ تغییرات ویسکوزیته و دانسیته با دما ارایه شده است.

***روش کار:*** ابتدا ۱۰۰ میلی‌لیتر از نمونه آب به درون بشر ۲۰۰ میلی‌لیتـری ریخته شد. سپس مقدار معینی (۰/۲ گرم) از ماده نفتی به آب داخل بشـر افـزوده شد و به دنبال آن ۰/۰۱ گرم پودر گرافیت ورقه ورقه وزن شده به طـور مسـتقیم بر روی آب آلوده به نفت در بشر ریخته شد. با جـذب نفـت شـناور بـر روی آب توسط گرافیت ورقه ورقه در زمان ناچیز و قابل صـرف‌نظر، رنـگ نفـت ناپدیـد می‌شود (۱۲، ۵).

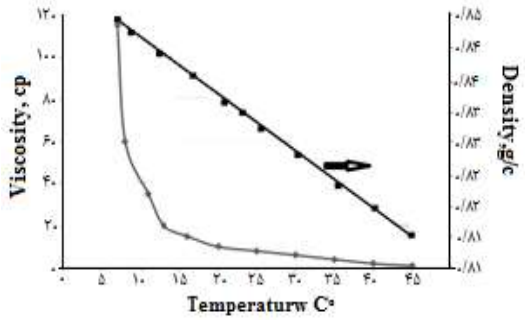
**جدول ۱. مشخصات و ترکیبات سازنده ماده جذب شونده (نمونه نفتی)**

| مشخصات و ترکیبات | واحد | مقدار |
|---|---|---|
| وزن مخصوص در دمای ۱۵/۵۶ درجه سانتی‌گراد | - | ۰/۸۳۴۹ |
| API | - | ۳۸/۰ |
| سولفور | درصد وزنی | ۰/۰۱۶ |
| آب | درصد حجمی | < ۰/۰۲۵ |
| نمک | پوند به ازای هزار بشکه نفت خام (PTB) | ۱۳ |
| آسفالتن | درصد وزنی | < ۰/۵ |
| موم (Wax) | درصد وزنی | ۱۳/۰ |
| اسیدیته | میلی‌گرم هیدروکسید پتاسیم بر گرم | ۰/۰۱ |
| نیکل | یک در میلیون | ۴ |
| وانادیوم | یک در میلیون | < ۳ |
| آهن | یک در میلیون | ۴/۶ |
| سدیم | یک در میلیون | ۹/۶ |

API: American Petroleum Institute; PTB: Pounds per thousand barrels



[ Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-11-17 ]
[ DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.4.8.4 ]
[ DOI: 10.22122/jhsr.v14i4.3594 ]




**شکل ۲. تغییرات ویسکوزیته و دانسیته نمونه نفتی با دما**

سپس مقدار نفت بیشتری به محلول آبی افزوده گردید (تا حدود ۰/۸ گرم) و پس از آن ۰/۲ و ۰/۳ گرم جاذب اضافه شد. سپس جاذب از سیستم جدا گردید تا به مدت یک دقیقه چکه کند و پس از آن به دقت وزن شد. وزن جاذب و وزن لکه نفتی، به عنوان دو پارامتر میزان جذب تعریف می‌گردد. پس از سنتز جاذب، تست‌های جذب نمونه نفتی با استفاده از گرافیت ورقه ورقه و میزان جذب با کمک روش RSM محاسبه گردید. این روش مجموعه‌ای از تکنیک‌های آماری و ریاضی می‌باشد که برای مدل‌بندی و تحلیل مسایلی که پاسخ مورد نظر تحت تأثیر چند متغیر قرار می‌گیرد، مفید است و هدف آن، بهینه‌سازی پاسخ می‌باشد. کاربرد طراحی آزمایش می‌تواند موجب کاهش زمان و هزینه‌های کلی برای رسیدن به نتایج فرایند شود (۱۳). بدین منظور، از نرم‌افزار Design-Expert برای طراحی رویه پاسخ و تحلیل شاخص‌های شناسایی شده (میزان جاذب و نمونه نفتی) و بررسی ظرفیت جذب جاذب استفاده گردید. محدوده و سطوح شاخص‌های انتخاب شده برای جذب نمونه نفتی دریای خزر با استفاده از گرافیت ورقه ورقه که بر اساس روش وزنی مقادیر حدودی مشخص شده بود، در جدول ۲ ارایه شده است.

**جدول ۲. محدوده و سطوح آزمایشگاهی شاخص‌های آزمایش**

| شاخص | فاکتور | محدوده و سطوح | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | +a | +۱ | ۰ | −۱ | -a |
| میزان جاذب (گرم) | A | ۰/۰۳۴ | ۰/۰۳ | ۰/۰۲ | ۰/۰۱ | ۰/۰۰۵۸ |
| میزان نمونه نفتی (گرم) | B | ۰/۹۲۰ | ۰/۸۰ | ۰/۵۰ | ۰/۲۰ | ۰/۰۷۵۰ |

پس از توسعه مدل برای نتایج آزمایشگاهی، شایستگی و اعتبار مدل از طریق مقدار ضریب همبستگی ($R^2$) و نمودارهای تحلیل خطای مانده مورد بررسی قرار گرفت. در نهایت، مقادیر بهینه شاخص‌ها ارزیابی گردید و ظرفیت جذب نمونه نفتی با استفاده از گرافیت ورقه ورقه به دست آمد.

***دستگاه‌های آنالیز:*** مورفولوژی سطح، شکل و اندازه جاذب گرافیت ورقه ورقه و منافذ (تخلخل) درون ساختار آن با دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی (Scanning electron microscope یا SEM) (مدل MAIA3، شرکت TESCAN، جمهوری چک) و آنالیز درصد وزنی و اتمی نیز با استفاده از طیف‌سنج Energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS) بررسی شد. طیف‌سنجی Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR) از گرافیت ورقه ورقه با کمک دستگاه اسپکتروفتومتر (مدل WQF-510A، Rayleigh، چین) صورت پذیرفت. سطح ویژه جذب و حجم منافذ جاذب با آزمایش Brunauer-Emmett-Teller (BET) بررسی شد (۱۳) و آنالیزور نرم‌افزاری Micro Active for TriStar II Plus نسخه 2.03 مورد استفاده قرار گرفت.

***روش واجذبی نفت و احیای جاذب:*** از هگزان (بدون مشکلات زیست محیطی و سمیت در مقایسه با ترکیبات شوینده دیگر مانند دی‌کلرومتان) به عنوان ماده شوینده (Eluent) در عملیات شستشو (Elution) استفاده شد و تحت واکنش شیمیایی پس از سه بار شستشو، باعث واجذبی نفت (Desorption) به صورت کامل از جاذب گردید و احیای (Regeneration) جاذب نیز صورت گرفت. هگزان به عنوان ترکیب آلی بسیار فراری عمل می‌کند که پس از عملیات شستشو بخار می‌شود.

## یافته‌ها

***آنالیز BET:*** شکل ۳ (قسمت الف) ایزوترم جذب/ واجذب گاز $N_2$ را نشان می‌دهد. بر اساس معادله BET، به ازای هر گرم گرافیت ورقه ورقه، مساحت سطح ($S_{BET}$)، ۹۸/۸ مترمربع می‌باشد. قسمت ب این شکل توزیع اندازه حفرات است که اندازه حفره بر حسب مشتق حجم به اندازه حفره به دست می‌آید. بر اساس معادله Barrett-Joyner-Halenda (BJH)، حجم کل حفرات ($V_T$) به ازای هر گرم جاذب و میانگین اندازه حفرات ($W_{BJH}$) بر اساس فراوانی (۱۴) به ترتیب ۰/۱۱۳ مترمکعب و ۵/۸۳ نانومتر بود.

***آنالیز SEM-EDS و FTIR:*** مطابق با شکل ۴ (قسمت الف)، لایه‌های گرافیت به طور کامل از یکدیگر جدا و منبسط شده‌اند. جدول ۳ نشان می‌دهد که بین ساختار جاذب کربن و اکسیژن با نسبت معقول پیش‌بینی شده (۱۵، ۱۴) مطابقت وجود داشت و ناخالصی‌های دیگری در آن مشاهده نگردید. پیوندها و گروه‌های عاملی طیف IR (شکل ۴، قسمت ب) با دیگر منابع (۱۶) مقایسه شد که منطبق بر آن‌ها بود و ساختار موجود را تأیید نمود.

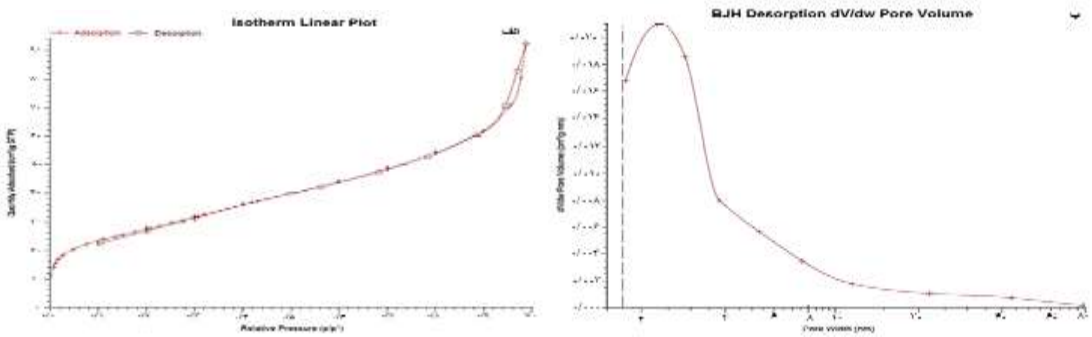
***بررسی اعتبار مدل و نمودارهای RSM:*** شکل ۵ (قسمت الف)، مقادیر پیش‌بینی شده به ازای نتایج به دست آمده آزمایشگاهی برای جذب نفت را نشان می‌دهد. نمودار مانده در مقابل مقادیر برازش شده نیز در قسمت ب شکل ۵ آمده است. قسمت ج شکل ۵، برهم‌کنش و اختلال (Perturbation) جاذب (A) و لکه نفتی (B) را نشان می‌دهد. قسمت‌های د و ه این شکل نیز نماهای دو بعدی (Contour) و سه بعدی پاسخ سطح به صورت تابعی از وزن جاذب (A) و وزن لکه نفتی (B) می‌باشد.

## بحث

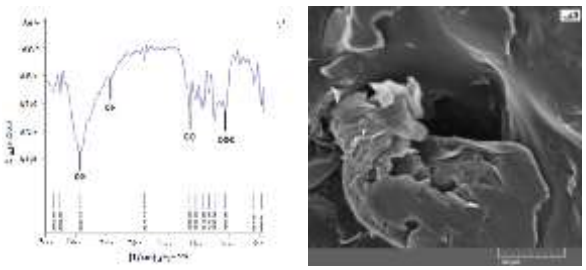
حضور ماده جاشونده تری‌اکسید کروم در بین لایه‌های گرافیت، باعث منبسط شدن مولکول‌ها و در نتیجه، ورقه‌ای شدن آن می‌شود و ساختار ورقه ورقه نیز منجر به افزایش مساحت سطح و منافذ گرافیت و افزایش جذب نفت می‌گردد. وضعیت تخلخل و حفرات جاذب (Porosimetry) با استفاده از آنالیز BET و جذب و واجذب گاز نیتروژن به سطح جاذب (Desorption-Adsorption) مورد بررسی قرار گرفت.



[ Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-11-17 ]
[ DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.4.8.4 ]
[ DOI: 10.22122/jhsr.v14i4.3594 ]




**شکل ۳. ایزوترم جذب و واجذب (الف) و منحنی توزیع اندازه حفرات (ب)**

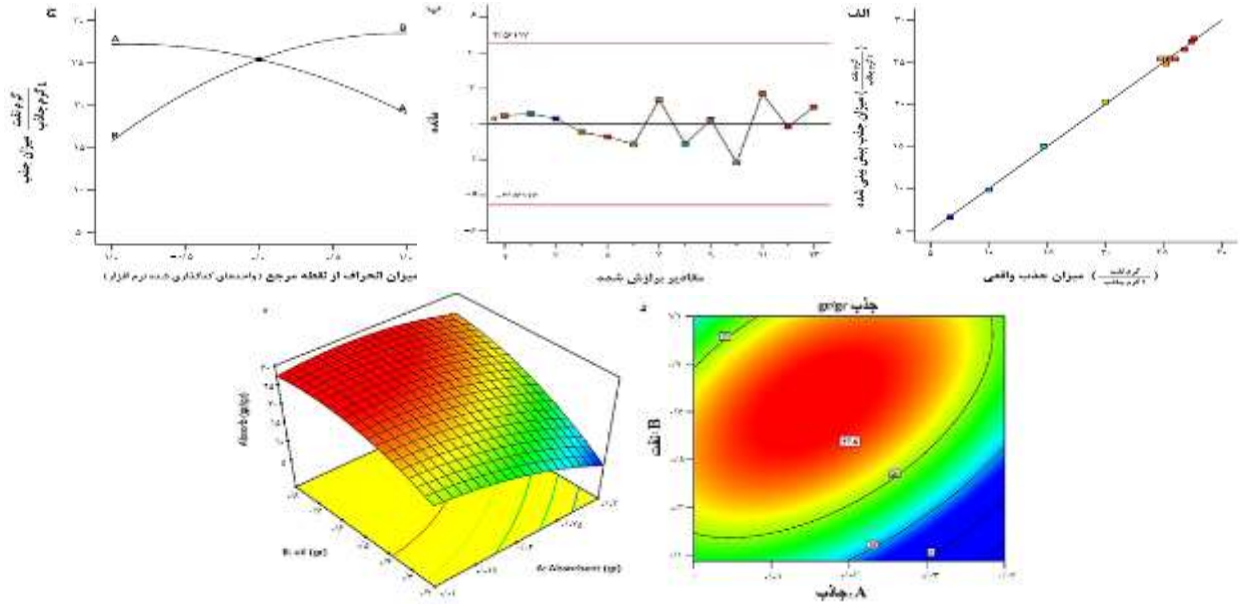


**شکل ۴. نمای دستگاه Scanning electron microscope (SEM) (الف) و آنالیز طیف‌سنجی Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR) (ب) از گرافیت ورقه ورقه**

با افزایش فشار نسبی (P) گاز نیتروژن به سطح جاذب، حجم گاز جذب شده افزایش می‌یابد (جذب) و با کاهش حجم فشار (شکل ۳، قسمت الف) سیر نزولی داشت و از حجم گاز جذب شده کاسته شد (واجذب). بر اساس شکل ۳ قسمت ب، حفرات با اندازه کمتر فراوانی بیشتری داشت. هرچه اندازه حفره‌ها بیشتر شود، تعداد آن‌ها کاهش خواهد یافت و پیک نمودار بیشترین تعداد حفره‌ها با اندازه حدود ۳ نانومتر را نشان می‌دهد. دستگاه SEM برای بررسی مورفولوژی سطح استفاده گردید و نشان داد که لایه‌های گرافیت به وضوح جدا شده‌اند. مساحت سطح بین لایه‌ها افزایش یافته است و با افزایش سطح مقطع، میزان جذب نیز افزایش می‌یابد.

**جدول ۳. درصد وزنی و اتمی عناصر موجود در جاذب (Quantitative results)**

| نوع عنصر | درصد وزنی | درصد اتمی |
|---|---|---|
| کربن | ۵۹/۸۸ | ۶۶/۵۴ |
| اکسیژن | ۴۰/۱۲ | ۳۳/۴۶ |
| درصد کل | ۱۰۰ | ۱۰۰ |



**شکل ۵. مقادیر پیش‌بینی شده به ازای نتایج واقعی (الف)، مقادیر مانده در مقابل مقادیر برازش شده (ب)، مقادیر برهم‌کنش جاذب و ماده جذب شونده (ج)، نمودارهای دو بعدی (د) و سه بعدی (ه) پاسخ سطح به صورت تابعی از وزن جاذب و لکه نفتی**



[ Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-11-17 ]
[ DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.4.8.4 ]
[ DOI: 10.22122/jhsr.v14i4.3594 ]

درصد وزنی و درصد اتمی ساختار جاذب با استفاده از طیف‌سنج EDS مورد بررسی قرار گرفت. طیف‌سنج EDS حاکی از وجود عناصر کربن و اکسیژن با نسبت مناسبی در ساختار جاذب بود. طیف‌سنج FTIR وجود گروه‌های عاملی و پیوندهای OH، CO، COC و CH درون ساختار گرافیت ورقه‌ای را نشان داد که طبق پیش‌بینی و منطبق با مراجع می‌باشد و ساختار نهایی جاذب را مورد تأیید قرار می‌دهد. در عدد موج حدود ۳۴۰۰، پیک پهنی مشاهده می‌شود که هیدروکسیل‌های سطح است. در محدوده ۲۹۰۰–۲۸۰۰ پیوند CH وجود داشت. عدد موج ۱۰۵۰ اکسیژن اتری (یعنی اکسیژنی که از دو طرف به گروه آلکیل پیوند دارد C-O-C) و عدد موجو ۱۶۴۰ اکسیژن کربونیل (C-O) می‌باشد. به منظور بررسی صحت و اعتبار مدل پیش‌بینی شده در نرم‌افزار Design-Expert، مقادیر ضریب همبستگی ($R^2$) و نمودار تحلیل خطای مانده (Residual) بررسی گردید (۱۷). میزان $R^2$ برابر با ۹۹/۲۱ درصد برای ظرفیت جذب بود که از نتایج آنالیز تناسب (Fit statistics) به دست آمد و اعتبار مدل را تأیید نمود. مقادیر پیش‌بینی شده آزمایش نزدیک به مقادیر واقعی بود که تطبیق مدل RSM بر نتایج آزمایشگاهی را نشان می‌دهد. تفاوت چشمگیری در تعداد مانده‌های مثبت و منفی مشاهده نگردید و اضافه و کم شدن داده‌ها طبیعی بود و خطای سیستماتیک وجود نداشت و در نتیجه، مطلوب بودن مدل را تأیید کرد. بر اساس نمودار اختلال (شکل ۵، قسمت ج)، با افزایش تدریجی جاذب به میزان ۰/۰۲ گرم، ماکزیمم جذب لکه نفتی به میزان ۰/۵۵۲ گرم اتفاق افتاد که نقطه اشباع جاذب بود و حداکثر ظرفیت جذب ۲۷/۶ گرم نفت به ازای هر گرم جاذب به دست آمد که در قسمت د شکل ۵ به صورت دو بعدی تفسیر ظرفیت جذب نشان داده شده است. با افزایش وزن جاذب، میزان جذب نفت از سطح آب افزایش یافت و پس از اشباع جاذب و پر شدن تمامی حفرات گرافیت ورقه ورقه از نفت، میزان جذب به طور طبیعی روند نزولی پیدا کرد.

طی سالیان اخیر، تحقیقات و استفاده تجاری از جاذب‌های پایه کربنی همچون گرافیت برای جذب مواد نفتی و به ویژه باقی‌مانده لکه‌های نفتی دریاها که پس از انجام روش‌های جمع‌آوری مکانیکی (بوم و اسکیمر) در سطح آب باقی می‌مانند، به طور وسیعی افزایش پیدا کرده است. در پژوهش حاضر، گرافیت از نوع منبسط شده و ورقه ورقه با مساحت سطح حدود ۱۰ برابر گرافیت ساده به عنوان جاذب با ظرفیت جذب بالاتر معرفی گردید. استفاده از گرافیت ورقه ورقه برای جذب نمونه نفتی میدان سردار جنگل دریای خزر (با مشخصات ویسکوزیته، دانسیته و عناصر موجود و API منحصر به فرد آن که تاکنون در مطالعات گذشته به عنوان نمونه نفتی استفاده نشده بود) به کار گرفته شد. لازم به توضیح است که بررسی و تحلیل RSM که روش نوینی جهت بررسی‌های مهندسی می‌باشد، برای اولین بار و در تحقیق حاضر با هدف بررسی میزان جذب با دو شاخ وزن نفت خاص و وزن گرافیت ورقه ورقه استفاده گردید. نتایج آنالیزها و تحلیل‌ها نشان داد که گرافیت ورقه ورقه با وجود وزن کم و دانسیته ظاهری پایین، توانایی جذب بالایی دارد و می‌تواند در مقادیر زیاد جهت جمع‌آوری بقایای لکه‌های نفتی در سطح دریای خزر تجاری‌سازی شود و مورد استفاده قرار گیرد. با افزایش وزن جاذب، ظرفیت جذب افزایش خواهد یافت. میزان ماکزیمم نفت جذب شده در نقطه اشباع جاذب می‌باشد که حدود ۳۰ برابر وزن اولیه خود می‌باشد.

## نتیجه‌گیری

در پژوهش حاضر، سنتز گرافیت ورقه ورقه با استفاده از ماده جاشونده، ساختار جاذب با کمک دستگاه‌های آنالیز و میزان جذب نمونه نفتی دریای خزر با مدل پیشرفته RSM مورد بررسی و تحلیل قرار گرفت. ظرفیت جذب نهایی به ازای هر گرم جاذب حدود ۲۷/۶ گرم نفت می‌باشد که با توجه به تولید ارزان و کیفیت بالای آن، صرفه اقتصادی و قابلیت تجاری‌سازی خواهد داشت.

## تشکر و قدردانی

مطالعه حاضر برگرفته از پایان‌نامه مقطع دکتری مهندسی محیط زیست با شماره ۱۱۷۷۸۳/۸۴، مصوب معاونت آموزشی و تحصیلات تکمیلی دانشکده محیط زیست دانشگاه تهران می‌باشد. بدین وسیله نویسندگان از مسؤولان آزمایشگاه دانشکده محیط زیست دانشگاه تهران که در انجام این تحقیق همکاری نمودند و همچنین، شرکت نفت خزر به جهت در اختیار قرار دادن نمونه نفتی میدان سردار جنگل دریای خزر، تشکر و قدردانی به عمل می‌آورند.

## References

1. Abesi A, Saidi M. The origin of oil hydrocarbons in southern coastal sediments of the Caspian Sea in vicinity of Gholestan and Mazandran province. Journal of Environmental Studies 2010; 36(55): 43-58. [In Persian].
2. Lutfullin MA, Shornikova ON, Vasiliev AV, Pokholok KV, Osadchaya VA, Saidaminov MI, et al. Petroleum products and water sorption by expanded graphite enhanced with magnetic iron phases. Carbon 2014; 66: 417-25.
3. Ding X, Wang R, Zhang X, Zhang Y, Deng S, Shen F, et al. A new magnetic expanded graphite for removal of oil leakage. Mar Pollut Bull 2014; 81(1): 185-90.
4. Zaredoost M, Rasooli M. Comparison of three synthetized absorbent performance for oil spill removal in the sea. Proceedings of the 4th National Conference on Safety Engineering, Loss Prevention, and HSE Management; 2011 Feb. 22; Tehran, Iran. [In Persian].
5. Bayat A, Aghamiri F, Moheb A, Vakilinejad G. Spilled oil Sorption from Oceans and Seas by Exfoliated Graphite. Proceedings of the 8th National Iranian Chemical Engineering Congress; 2003 Sep. 24; Mashhad, Iran. [In Persian].
6. Makotchenko VG, Grayfer ED, Nazarov AS, Kim SJ, Fedorov VE. The synthesis and properties of highly exfoliated graphites from fluorinated graphite intercalation compounds. Carbon 2011; 49(10): 3233-41.
7. Skowronski JM. Exfoliation of graphite-CrO3 intercalation compounds in hydrogen peroxide solution. J Mater Sci 1988; 23(6): 2243-6.
8. Yao T, Zhang Y, Xiao Y, Zhao P, Guo L, Yang H, et al. The effect of environmental factors on the adsorption of lubricating oil onto expanded graphite. J Mol Liq 2016; 218: 611-4.
9. Li S, Tian S, Du C, He C, Cen C, Xiong Y. Vaseline-loaded expanded graphite as a new adsorbent for toluene. Chem Eng J 2010; 162(2): 546-51.



[ Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-11-17 ]
[ DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.4.8.4 ]
[ DOI: 10.22122/jhsr.v14i4.3594 ]

**10.** Soubh AM, Baghdadi M, Abdoli MA, Aminzadeh B. Zero-valent iron nanofibers (ZVINFs) immobilized on the surface of reduced ultra-large graphene oxide (rULGO) as a persulfate activator for treatment of landfill leachate. J Environ Chem Eng 2018; 6(5): 6568-79.
**11.** Hassan M, Reddy KR, Haque E, Minett AI, Gomes VG. High-yield aqueous phase exfoliation of graphene for facile nanocomposite synthesis via emulsion polymerization. J Colloid Interface Sci 2013; 410: 43-51.
**12.** Takeuchi K, Fujishige M, Kitazawa H, Akuzawa N, Medina JO, Morelos-Gomez A, et al. Oil sorption by exfoliated graphite from dilute oilwater emulsion for practical applications in produced water treatments. Journal of Water Process Engineering 2015; 8: 91-8.
**13.** Azizi A, Moniri E, Hassani AH, Ahmad Panahi H, Kahi F. Application of polymerized graphene oxide for optimization of o-xylene removal from aqueous solutions through response surface methodology. Journal of Environmental Studies 2018; 44(1): 1-15. [In Persian].
**14.** Vojoudi H, Badiei A, Bahar S, Mohammadi Ziarani G, Faridbod F, Ganjali MR. Post-modification of nanoporous silica type SBA-15 by BIS (3-triethoxysilylpropyl)tetrasulfide as an efficient adsorbent for arsenic removal. Powder Technol 2017; 319: 271-8.
**15.** Wang G, Sun Q, Zhang Y, Fan J, Ma L. Sorption and regeneration of magnetic exfoliated graphite as a new sorbent for oil pollution. Desalination 2010; 263(1): 183-8.
**16.** Takeuchi K, Kitazawa H, Fujishige M, Akuzawa N, Ortiz-Medina J, Morelos-Gomez A, et al. Oil removing properties of exfoliated graphite in actual produced water treatment. Journal of Water Process Engineering 2017; 20: 226-31.
**17.** Taghizadeh-Firozjaee T, Mehrdadi N, Baghdadi M, Nabi-Bidhendi G. An investigation on performance of chitosan/carbon nanotube composite for adsorption of diazinon from agricultural wastewater. J Health Syst Res 2018; 13(4): 457-63. [In Persian].

[ Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-11-17 ]
[ DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.4.8.4 ]
[ DOI: 10.22122/jhsr.v14i4.3594 ]

**DOI:** *10.22122/jhsr.v14i4.3594* *Published by Vesnu Publications*

**Journal of Health System Research** **Vol. 14, No. 4, Winter**

Received: 25.07.2018 Accepted: 14.09.2018 Published: 05.01.2019

# Sorption of Oil Spills from Aqueous Solution by Exfoliated Graphite

**Omid Ghasemi[1], Naser Mehrdadi[2], Majid Baghdadi[3], Behnoush Aminzadeh[4]**

**Original Article**

## Abstract

**Background:** In recent years, oil production activities in Caspian Sea have caused serious damages to this ecosystem. In this study, sorption capability of oil sample, which was explored from Sardar-e-Jangal oilfield in Caspian Sea, Iran, was investigated by exfoliated graphite.

**Methods:** The final absorbent was investigated by Fourier-Transform Infrared Spectroscopy (FTIR), Brunauer–Emmett–Teller (BET) analysis, Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (EDS), and Scanning Electron Microscopy (SEM). The amount of oil sample sorption by exfoliated graphite absorbent was investigated using gravimetric and Response Surface Methodology (RSM) via design expert software.

**Findings:** Exfoliated graphite due to increase in porosity and expansion of graphite sheets could absorb a great deal of oil material with increase in absorbing capacity in comparison to simple graphite. Absorbent structure analysis by SEM, FTIR, BET, and EDS methods or devices revealed the exfoliating and increasing of absorbent cross-section and pores' volume and consequently increasing the absorbing capacity of exfoliated graphite. The validity of RSM method was investigated and confirmed, and identified parameters (volume of absorbent and oil) were assessed by this method which showed that the maximum absorption was 27.6 gr of oil sample using 1 gr of exfoliated graphite absorbent.

**Conclusion:** Exfoliated graphite, due to easier synthesis, low cost, and high performance in absorption in comparison to simple graphite and other carbon-based absorbents could be used as an appropriate absorbent for oil sorption.

**Keywords:** Absorption, Caspian Sea, Graphite, Oil spills

**Citation:** Ghasemi O, Mehrdadi N, Baghdadi M, Aminzadeh B. **Sorption of Oil Spills from Aqueous Solution by Exfoliated Graphite.** J Health Syst Res 2019; 14(4): 466-72.

1- PhD Candidate, Department of Environmental Engineering, School of Environment, College of Engineering, University of Tehran, Tehran, Iran
2- Professor, Department of Environmental Engineering, School of Environment, College of Engineering, University of Tehran, Tehran, Iran
3- Associate Professor, Department of Environmental Engineering, School of Environment, College of Engineering, University of Tehran, Tehran, Iran
4- Assistant Professor, Department of Environmental Engineering, School of Environment, College of Engineering, University of Tehran, Tehran, Iran
**Corresponding Author:** Omid Ghasemi, Email: omidghasemi506@yahoo.com



[ Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-11-17 ]
[ DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.4.8.4 ]
[ DOI: 10.22122/jhsr.v14i4.3594 ]