

# کاربرد نانولوله‌های کربنی تک‌جداره در جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از محلول‌های آبی

محسن سعدانی<sup>۱</sup>، سیده پروین موسوی<sup>۲</sup>، محمد حسن احرامپوش<sup>۳</sup>،  
طاهره جاسمی‌زاد<sup>۴</sup>، ساره رحیمی<sup>۵</sup>

## مقاله پژوهشی

### چکیده

**مقدمه:** رنگ‌ها باعث مشکلات زیادی و یکی از منابع اصلی آلودگی محیط زیست هستند. بنابراین پساب‌های رنگی باید قبل از تخلیه، تصفیه شوند تا خطرات زیست‌محیطی کاهش یابد. یکی از پرکاربردترین روش‌های حذف رنگ از پساب، فرایند جذب است. نانولوله‌ها، جاذب‌های جدید با کاربردهای گسترده برای جذب انواع آلاینده‌ها می‌باشند. هدف از این مطالعه بررسی امکان‌سنجی استفاده از نانولوله‌های کربنی تک‌جداره به عنوان جاذب در فرآیند جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از محلول‌های آبی می‌باشد.

**روش‌ها:** این مطالعه تجربی به صورت ناپیوسته انجام شد و اثر پارامترهای مختلف زمان تماس، شدت اختلاط، غلظت اولیه رنگ، pH و دوز نانولوله‌های کربنی تک‌جداره در حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ بررسی شده است.

**یافته‌ها:** نتایج نشان داد که زمان مناسب جهت دستیابی به حداکثر جذب رنگ و حالت تعادل، ۳ ساعت می‌باشد. با افزایش دوز جاذب از ۰/۱ به ۰/۹ گرم در لیتر راندمان حذف برای محلول رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ با غلظت اولیه ۲۵ میلی‌گرم در لیتر از ۹۱/۸٪ به ۱۰۰٪ افزایش می‌یابد. هم‌چنین مشخص گردید که حداکثر ظرفیت جذب سطحی رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ بر روی نانولوله‌های کربنی تک‌جداره ۷/۹۸ میلی‌گرم بر گرم در شرایط اسیدی (pH=۴) اتفاق افتاده است. با کاهش غلظت اولیه رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از ۵۰ به ۲۵ میلی‌گرم در لیتر در pH=۴ و زمان ۳ ساعت راندمان حذف از ۹۶/۹٪ به ۱۰۰٪ افزایش یافته است.

**نتیجه‌گیری:** نتایج این مطالعه نشان داد که سینتیک واکنش با معادله درجه اول کاذب قابل توصیف بوده و ایزوترم جذب از هر دو مدل فروندلیچ و لانگمویر تبعیت می‌نماید. 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 نانولوله‌های کربنی تک‌جداره به عنوان جاذب جهت حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ می‌تواند مؤثر باشد.

**واژه‌های کلیدی:** نانولوله‌های کربنی تک‌جداره، جذب سطحی، راکتیو قرمز ۱۹۸، محلول‌های آبی

**ارجاع:** سعدانی محسن، موسوی سیده پروین، احرامپوش محمد حسن، جاسمی‌زاد طاهره، رحیمی ساره. کاربرد نانولوله‌های کربنی

تک‌جداره در جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از محلول‌های آبی. مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۳۹۳؛ ۱۰(۲): ۴۴

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۲/۰۷/۲۱

تاریخ دریافت: ۱۳۹۲/۰۲/۲۸

۱. دانشجوی دکتری، مرکز تحقیقات محیط زیست، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان و مربی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید صدوقی، یزد، ایران
۲. کارشناس ارشد مهندسی بهداشت محیط، پردیس بین‌الملل، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد، یزد، ایران (نویسنده مسئول)
۳. استاد گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد، یزد، ایران
۴. کارشناس ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد، یزد، ایران
۵. دانشگاه آزاد اسلامی، واحد ارسنجان، باشگاه پژوهشگران جوان و نخبگان، ارسنجان، ایران

## مقدمه

رنگ‌ها از خطرناک‌ترین ترکیبات شیمیایی هستند که در پساب‌های صنعتی یافت می‌شوند (۱). رنگ‌ها به طور گسترده در صنایع نساجی، چرم‌سازی، کاغذسازی، پلاستیک و صنایع دیگر به کار می‌روند (۲-۴) و بر اساس کاربردشان به انواع وات، راکتیو، دایرکت، اسیدی، دیسپرس و کاتیونی تقسیم می‌گردند. رنگ‌های راکتیو آزو بزرگترین دسته از رنگ‌های مصنوعی محلول در آب هستند که از نظر نوع و ساختار دارای بیشترین تنوع می‌باشند. این رنگ‌ها معمولاً به تجزیه بیولوژیکی هوازای مقاوم بوده و با فرایندهای تصفیه بیولوژیک متداول حذف نمی‌شوند (۵). وجود رنگ در منابع آبی، نفوذ نور خورشید را کاهش داده و در نتیجه از فتوسنتز گیاهان آبی جلوگیری می‌کند (۶-۷). رنگ‌ها باعث آلرژی، درماتیت، تحریک پوست، سرطان‌زایی و جهش‌زایی می‌شوند (۸-۹). بنابراین پساب‌های رنگی باید قبل از تخلیه به محیط زیست، تصفیه شده تا تهدید زیست‌محیطی آن‌ها کاهش یابد (۷).

روش‌های متعددی از قبیل تصفیه بیولوژیک، انعقاد و لخته‌سازی، تصفیه با ازن، اکسیداسیون شیمیایی، فیلتراسیون غشایی، تبادل یون، تجزیه فتوکاتالیتیکی و جذب برای حذف این ترکیبات از پساب‌های رنگی توسعه یافته‌اند (۱۰-۱۱). رنگ‌ها مقاوم و غیرقابل تجزیه بیولوژیکی هستند و سیستم‌های متداول تصفیه بیولوژیکی فاضلاب دارای راندمان قابل قبولی در حذف آن‌ها نمی‌باشند (۱۲). جذب از مهم‌ترین و مناسب‌ترین فرایند کاهش غلظت رنگ‌ها از محلول‌های آبی است (۱۳-۱۴). فرایند جذب، رنگ‌ها را از فاز آبی به فاز جامد منتقل می‌کند و در نتیجه جذب می‌تواند دوباره تولید شده یا در محلی خشک بدون تماس مستقیم با محیط زیست قرار گیرد (۱). مزایای جذب در مقایسه با دیگر فرایندهای جداسازی، سادگی در بهره‌برداری و ارزان بودن است (۱۵).

تاکنون در مطالعات مختلف جاذب‌های معمولی مثل کربن فعال، زئولیت، رس، محصولات جانبی صنعتی، زایدات کشاورزی، بیومس و مواد پلیمری مورد مطالعه قرار گرفته‌اند.

این جاذب‌ها ظرفیت جذب پایینی دارند و جداسازی آن‌ها پردردسر است (۱۰، ۶). نانولوله‌های کربنی جاذبی جدید برای حذف آلاینده‌ها از محلول‌های آبی هستند. با توجه به مطالعات گذشته، نانولوله‌های کربنی، راندمان خوبی در حذف آلاینده‌های آلی و معدنی از خود نشان داده‌اند (۱۶، ۶، ۳). بینا و همکاران در سال ۲۰۱۲ جذب بنزن و تولوئن را با استفاده از نانولوله‌های کربنی انجام دادند، نتایج نشان داد که نانولوله‌های کربنی می‌تواند به عنوان جاذب مناسبی برای حذف بنزن و تولوئن از محلول‌های آبی استفاده گردد. در مطالعه آن‌ها نانولوله‌های کربنی تک‌جداره به ترتیب دارای راندمان حذف ۹۹/۷۴ و ۹۹/۸ درصد برای بنزن و تولوئن می‌باشد (۱۷). پورزمانی و همکارانش در سال ۲۰۱۲ کاربرد نانولوله‌های کربنی را به عنوان جاذب جهت حذف گزین از محلول‌های آبی گزارش کرده‌اند (۱۸). مدرکیان و همکاران برای حذف رنگ‌های کاتیونی از محلول‌های آبی از نانولوله‌های کربنی چندجداره مگنتیک‌شده استفاده کردند، نتایج مطالعه آن‌ها نشان داد که استفاده از این روش برای حذف رنگ‌های کاتیونی مؤثر بوده و راندمان نسبتاً بالایی دارد و می‌تواند به عنوان یک روش مؤثر مورد توجه قرار گیرد (۷).

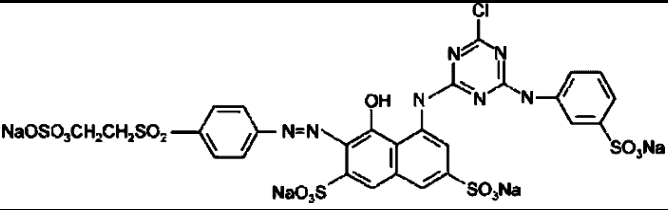
نانولوله‌های کربنی سطح مخصوص زیاد، اندازه کوچک و ساختار لایه‌ای و توخالی دارند (۶). آن‌ها همچنین ساختار مخصوص، خصوصیات مکانیکی و الکتریکی منحصر به فردی دارند (۲۰-۱۹). خصوصیات ساختاری مثل قطر منفذ و تخلخل نانولوله‌های کربنی می‌تواند میزان جذب را تعیین کند. نانولوله‌های کربنی به علت مزایایی که نسبت به مواد دیگر مثل کربن فعال دارند، جاذب‌های نویدبخشی هستند. ظرفیت جذب بالا، زمان تعادل پایین و تولید مجدد مؤثرتر، برخی از این مزایا به شمار می‌رود (۲۱). نانولوله‌های کربنی تک‌جداره دارای سطح مخصوص بسیار بالاتر و در نتیجه راندمان بالاتری نسبت به نانولوله‌های کربنی چندجداره هستند (۲۲-۲۱). لذا در این تحقیق، کارایی نانولوله‌های کربنی تک‌جداره (SWCNTs) در جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از محلول‌های آبی مورد بررسی قرار گرفته است.

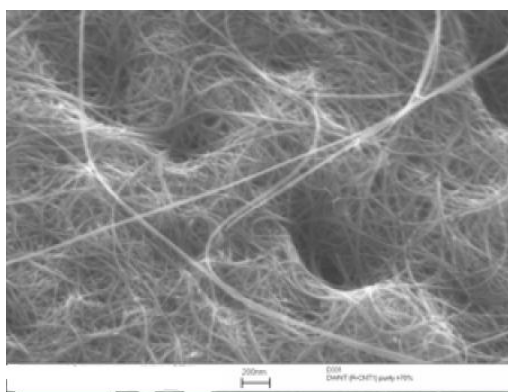
### روش‌ها

رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ مورد استفاده در این مطالعه محصول شرکت دای استار بود. ویژگی‌های این رنگ در جدول ۱ ارایه شده است (۲۳-۲۴). این مطالعه یک مطالعه تجربی می‌باشد که به صورت ناپیوسته و در آزمایشگاه پایلوت دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد انجام گردیده است. نانولوله‌های کربنی تک‌جداره محصول پژوهشگاه صنعت نفت ایران بود. جهت بررسی موقعیت قرارگیری گروه‌های عامل در سطح نانولوله‌ها از تصویر میکروسکوپ الکترونیکی (SEM یا Scanning

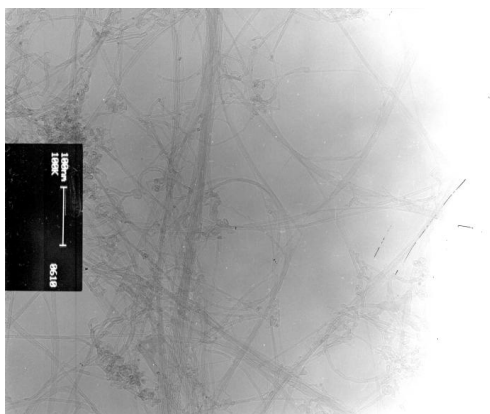
Electron Microscopy) استفاده می‌شود. اندازه و ساختار نانولوله‌های کربنی تک‌جداره توسط میکروسکوپ الکترونی عبوردهنده (TEM یا Transmission Electron Microscopy) و سطح مخصوص نانولوله‌ها توسط ایزوترم بت (BET یا Brunauer, Emmett & Teller) مورد ارزیابی قرار می‌گیرد که در این راستا از داده‌های ارایه شده توسط پژوهشگاه صنعت نفت بهره‌گیری شده است. شکل ۱ تصویر SEM و شکل ۲ تصویر TEM نانولوله‌های کربنی تک‌جداره مصرفی را نشان می‌دهد.

جدول ۱. مشخصات رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸

	ساختار شیمیایی
مونو آزو	نوع رنگ
$C_{27}H_{18}ClN_7Na_4O_{15}S_5$	فرمول شیمیایی
۹۶۷/۵	وزن مولکولی (g/mol)



شکل ۱. SEM نانولوله‌های کربنی تک‌جداره



شکل ۲. TEM نانولوله‌های کربنی تک‌جداره

استات سلولز ۰/۲ میکرون محصول شرکت سارتریوس آلمان استفاده شد. سنجش غلظت رنگ در نمونه‌های استاندارد و مجهول با استفاده از اسپکتروفتومتر UV/Visible مدل SP-3000 Puls-Japan و رسم منحنی کالیبراسیون در طول موج ۵۱۸ نانومتر انجام شد (۲۶-۲۵). انجام آزمایش‌ها در این مطالعه با دو بار تکرار بود و نتایج ارایه شده بیانگر میانگین داده‌های به دست آمده است. میزان جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از معادله زیر محاسبه گردید.

$$(۱) \quad q_e = \frac{(C_0 - C_e)}{M} \times V$$

$C_0$  و  $C_e$  به ترتیب غلظت اولیه و پایانی رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ ( $mg/L$ ) و  $M$  دوز نانولوله کربنی تک‌جداره مصرفی ( $g$ ) و  $V$  حجم محلول مورد نظر ( $L$ ) است. جهت تعیین مدل‌های ایزوترمی، دوزهای مختلف جاذب به محلول‌های رنگی با غلظت ۲۵ میلی‌گرم بر لیتر اضافه شد. در این لحظه مقدار pH نمونه‌ها ۴ بود. محلول‌های مورد نظر به مدت ۲۴ ساعت بر روی شیکر با شدت ۱۸۰ دور در دقیقه قرار داده شدند سپس غلظت‌های باقیمانده رنگ به روش اسپکتروفتومتری ارزیابی گردید. ایزوترم‌های جذب معادلاتی بر تشریح حالت تعادل بخش جذب‌شونده بین فاز جامد و سیال است. در این تحقیق داده‌های تجربی تعادل جذب با مدل‌های ایزوترم جذب

قطر خارجی نانولوله‌های کربنی تک‌جداره ۲-۱ نانومتر، قطر داخلی آن ۰/۸-۱/۱ نانومتر، طول ۱۰ میکرومتر و سطح مخصوص ۷۰۰ مترمربع بر گرم با خلوص ۹۵٪ بوده است. جهت انجام مطالعه ابتدا محلول ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ تهیه شد. سپس این محلول استوک برای ساخت نمونه‌های با غلظت مشخص رنگ مورد استفاده قرار گرفت. با توجه به تست‌های اولیه انجام شده مبنی بر تعیین پارامترهای مختلف مؤثر در حذف رنگ و هم‌چنین با توجه به مطالعات مشابه، پارامترهای مختلفی از قبیل غلظت اولیه رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸، pH، دوز جاذب، شدت اختلاط و زمان تماس مورد بررسی قرار گرفت. با ثابت نگاه داشتن چند متغیر، راندمان حذف رنگ به وسیله نانولوله کربنی تک‌جداره بر اساس یک پارامتر متغیر، بررسی شده تا مقدار بهینه متغیرها به دست آید. از بطری‌های شیشه‌ای درسته ۱۵۰ میلی‌لیتری برای انجام آزمایش‌ها و از  $HCl$  و  $NaOH$  ۰/۱ N جهت تنظیم pH نمونه‌ها استفاده شد. بطری‌های ۱۵۰ میلی‌لیتری که حاوی دوزهای مختلف ۰/۱، ۰/۳، ۰/۶ و ۰/۹ گرم جاذب و ۱۰۰ میلی‌لیتر از محلول رنگ با غلظت‌های مختلف ۲۵ و ۵۰ میلی‌گرم در لیتر بودند در ۷ بازه زمانی مختلف از ۱۵ تا ۱۸۰ دقیقه بر روی شیکر قرار داده شدند و در شدت‌های ۱۰۰، ۱۴۰ و ۱۸۰ دور در دقیقه اختلاط صورت گرفت. در پایان هر یک از مراحل تحقیق برای جداسازی نانولوله‌ها از محلول، از فیلتر

دوز نانولوله‌های کربنی تک‌جداره متغیر مهمی است زیرا مقدار حذف رنگ را تعیین می‌کند. نمودار ۱ تغییرات راندمان حذف رنگ توسط دوزهای مختلف جاذب را نشان می‌دهد. نمودار تغییرات غلظت رنگ در مقابل زمان در دوزهای مختلف جاذب در نمودار ۲ نشان داده شده است. این نمودار بیانگر این است که مقدار قابل توجهی از رنگ توسط دوز ۰/۶ گرم بر لیتر نانولوله‌های کربنی تک‌جداره حذف گردیده است و از آن جایی که دوز ۰/۶ در مقایسه با دوز ۰/۹ گرم در لیتر، اقتصادی‌تر و به‌صرفه‌تر است در نتیجه دوز ۰/۶ گرم در لیتر به عنوان دوز بهینه مورد استفاده واقع شد.

### تأثیر غلظت اولیه رنگ

نتایج این مرحله نشان داد که راندمان حذف رنگ با افزایش غلظت اولیه رنگ، کاهش می‌یابد و  $q_e$  با افزایش غلظت اولیه رنگ، افزایش می‌یابد (نمودارهای ۳ و ۴).

### تأثیر زمان تماس بر فرایند جذب سطحی

تأثیر زمان تماس بر حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ در غلظت‌های ۲۵ و ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر از رنگ به عنوان آلاینده و ۰/۶ گرم بر لیتر از نانولوله‌های کربنی تک‌جداره، pH اسیدی ۴ و دمای ۲۰ درجه سانتیگراد در مدت زمان‌های مختلف در نمودارهای ۳، ۴، ۵ و ۶ نشان داده شده است.

### بررسی اثر pH در میزان جذب

نمودار ۵ نشان‌دهنده اثر pH در میزان حذف رنگ است. همان‌طور که در نمودار نشان داده شده است pH ۴ در تمامی دوزهای نانولوله‌های کربنی تک‌جداره در حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ نسبت به pH ۷ و ۱۰ مؤثرتر عمل کرده است. با افزایش pH از ۴ به ۱۰ راندمان حذف بین ۹۹/۳٪ تا ۲۲/۵٪ کاهش نشان می‌دهد. بررسی اثر شدت اختلاط نتایج نشان داد که با افزایش شدت اختلاط از ۱۰۰ به ۱۸۰ دور در دقیقه، راندمان جذب از ۹۱/۲٪ به ۹۹/۳٪ افزایش می‌یابد (نمودار ۶).

فروندلیچ و لانگمویر مورد بررسی قرار گرفت. رابطه غیرخطی معادله لانگمویر به صورت زیر است:

$$q_e = \frac{q_m b C_e}{1 + b C_e} \quad (2)$$

با انتگرال‌گیری از رابطه بالا، شکل غیرخطی معادله لانگمویر به صورت زیر در می‌آید:

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{q_m b} + \frac{1}{q_m} C_e \quad (3)$$

در این رابطه  $q_e$  مقدار جزء جذب‌شده در واحد جرم جسم جاذب بر حسب میلی‌گرم بر گرم،  $C_e$  غلظت تعادلی ماده جذب‌شدنی در محلول بعد از جذب سطحی بر حسب میلی‌گرم بر لیتر،  $q_m$  نشان‌دهنده ظرفیت جذب و  $b$  ثابت لانگمویر است که از رسم نمودار  $C_e/q_e$  در مقابل  $C_e$  به دست می‌آید. معادله غیرخطی ایزوترم جذب فروندلیچ به صورت معادله ۴ است:

(۴)

$$q_e = K_f C_e^{1/n}$$

با انتگرال‌گیری از رابطه بالا شکل خطی معادله ۴ به صورت زیر خواهد بود:

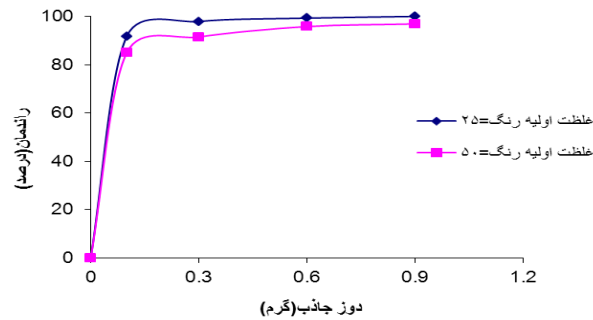
(۵)

$$\ln q_e = \ln K_f + \frac{1}{n} (\ln C_e)$$

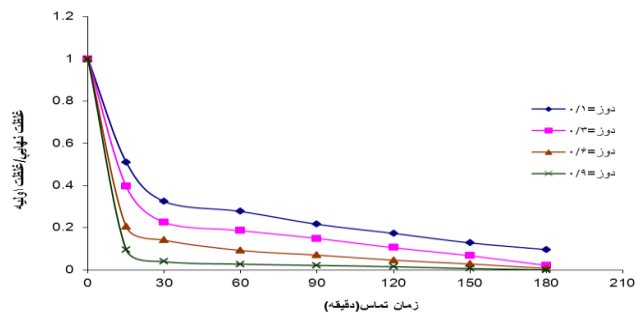
در این رابطه  $C_e$  غلظت تعادل ماده جذب‌شدنی در محلول بعد از جذب سطحی بر حسب میلی‌گرم بر لیتر،  $q_e$  ظرفیت جذب در زمان تعادل بر حسب میلی‌گرم بر گرم و  $K_f$  و  $n$  ثابت‌های فروندلیچ است (۲۷). جهت آنالیز داده‌ها از میانگین داده‌ها و آزمون همبستگی استفاده گردید.

### یافته‌ها

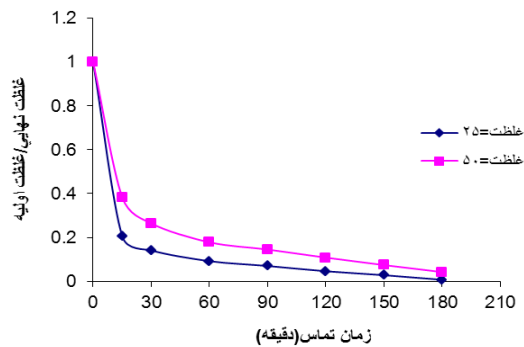
نتایج این مطالعه نشان داد که راندمان حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ از محلول‌های آبی به متغیرهای دوز جاذب، زمان تماس، غلظت اولیه رنگ، pH و شدت اختلاط بستگی دارد.



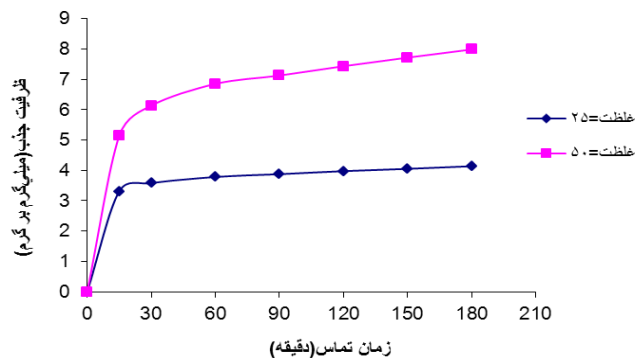
نمودار ۱. تغییرات راندمان حذف رنگ نسبت به دوزهای مختلف نانولوله کربنی تک‌جداره ۰/۱، ۰/۳، ۰/۶، ۰/۹ گرم در لیتر (pH=۴) و غلظت‌های اولیه رنگ ۲۵ و ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر و زمان تماس ۱۸۰ دقیقه



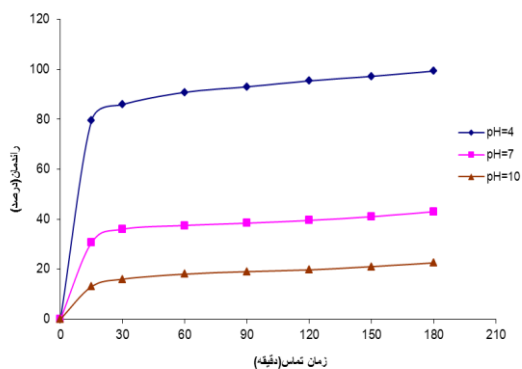
نمودار ۲. تغییرات غلظت رنگ نسبت به زمان در غلظت ۲۵ میلی‌گرم بر لیتر رنگ (pH=۴) و دوزهای ۰/۱، ۰/۳، ۰/۶، ۰/۹ گرم در لیتر نانولوله کربنی تک‌جداره



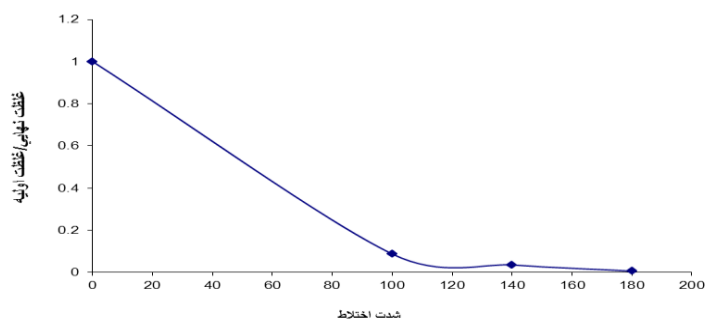
نمودار ۳. تغییرات غلظت رنگ نسبت به زمان با دوز ۰/۶ گرم در لیتر نانولوله کربنی تک‌جداره (pH=۴) و غلظت‌های اولیه رنگ ۲۵ و ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر



نمودار ۴. ظرفیت جذب رنگ نسبت به زمان با دوز ۰/۶ گرم در لیتر نانولوله کربنی تک‌جداره (pH=۴) و غلظت‌های اولیه رنگ ۲.۵ و ۵.۰ میلی‌گرم بر لیتر)



نمودار ۵. راندمان حذف رنگ نسبت به زمان با دوز ۰/۶ گرم در لیتر نانولوله کربنی تک‌جداره (pH=۴، ۷، ۱۰) و غلظت اولیه رنگ ۲.۵ میلی‌گرم بر لیتر)



نمودار ۶. تغییرات غلظت رنگ نسبت به شدت اختلاط با دوز ۰/۶ گرم در لیتر نانولوله کربنی تک‌جداره (pH=۴)، غلظت اولیه رنگ ۲.۵ میلی‌گرم بر لیتر و زمان ۱۸۰ دقیقه)

## بحث

نتایج این مطالعه نشان داد که با افزایش دوز جاذب، راندمان افزایش و  $Q_e$  کاهش می‌یابد. همچنین راندمان حذف رنگ با افزایش غلظت اولیه رنگ، کاهش و  $Q_e$  با افزایش غلظت اولیه رنگ، افزایش می‌یابد. با افزایش زمان تماس از ۱۵ به ۱۸۰ دقیقه، راندمان افزایش می‌یابد ولی چون حداکثر جذب در ۳۰ دقیقه اول بوده بنابراین زمان ۳۰ دقیقه به عنوان زمان بهینه جذب در نظر گرفته شد. واکنش جذب در ۱۸۰ دقیقه به تعادل می‌رسد و پس از این زمان، میزان جذب بسیار کم بود. نتایج همچنین مشخص کرد که با کاهش pH از ۱۰ به ۴ راندمان افزایش می‌یابد و pH ۴ به عنوان pH بهینه در نظر گرفته شد، چون بیشترین راندمان حذف در pH اسیدی (۴) بود. همچنین با افزایش شدت اختلاط راندمان افزایش می‌یابد و بیشترین میزان حذف در ۱۸۰ دور در دقیقه بوده است. سینتیک واکنش با معادله درجه اول کاذب توصیف شد و ایزوترم جذب از هر دو مدل فروندلیچ و لانگمویر تبعیت می‌کند. این مطالعه نشان می‌دهد که 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 نانولوله‌های کربنی تک‌جداره به عنوان جاذب در حذف آلاینده‌های آلی از محلول‌های آب، این جاذب می‌تواند جهت حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ مؤثر باشد. راندمان حذف رنگ با افزایش غلظت اولیه رنگ کاهش می‌یابد و  $Q_e$  با افزایش غلظت اولیه رنگ، افزایش می‌یابد (نمودارهای ۵ و ۴). احرامپوش و همکاران در سال ۲۰۱۲ در زمینه جذب اسید هیومیک از محلول‌های آبی توسط نانولوله‌های کربنی چندجداره مطالعه‌ای انجام دادند و به نتایج مشابهی دست یافتند. در مطالعه آن‌ها نیز با افزایش دوز جاذب، ظرفیت جذب کاهش یافته است و با افزایش غلظت اولیه رنگ،  $Q_e$  افزایش یافته است (۲۹).

Lu و Su در سال ۲۰۰۷ جذب مواد آلی طبیعی (NOM) را بر روی نانولوله‌های کربنی مورد بررسی قرار دادند. در این مطالعه مقدار مواد آلی طبیعی جذب شده بر روی نانولوله‌های

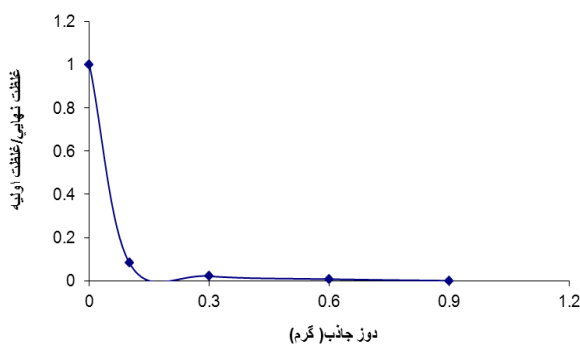
کربنی با افزایش غلظت اولیه NOM و قدرت یونی محلول افزایش یافت اما با افزایش pH محلول، کاهش یافت (۲۲). همان‌طور که نتایج نشان دادند با افزایش مقدار pH کارایی فرایند کاهش قابل ملاحظه‌ای می‌یابد. علت کاهش کارایی با افزایش pH را می‌توان یونیزاسیون جاذب و جذب‌شونده دانست که باعث ایجاد نیروی دافعه و کاهش کارایی جذب شده است. این‌گونه به نظر می‌رسد که گروه‌های عاملی اکسیژنی بر روی سطوح نانولوله‌ها نقش مهمی ایفا می‌کنند به طوری که در pH بیشتر از ۴ باعث افزایش پیوند میان گروه‌های  $OH^-$  روی سطوح نانولوله شده و به آن بار منفی می‌دهند و این پدیده باعث کاهش کارایی حذف رنگ در pH بالاتر از ۴ می‌گردد. نتایج مطالعه حاضر، با تحقیق Lu و Su در سال ۲۰۰۷ که جذب مواد آلی طبیعی (NOM) توسط نانولوله‌های کربنی را مورد بررسی قرار دادند مطابقت دارد (۲۲).

به منظور تعیین سرعت و درجه واکنش حذف رنگ، نمودارهای سینتیک درجه اول کاذب و درجه دوم کاذب رسم گردید. نتایج نشان داد که سینتیک حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ با فرایند جذب توسط نانولوله‌های کربنی تک‌جداره، یک واکنش درجه اول کاذب است که شیب خط مربوط (نمودار ۸) نشان‌دهنده ثابت سرعت واکنش حذف رنگ می‌باشد. Mishra و همکاران در سال ۲۰۱۰ توسط نانولوله‌های کربنی چندجداره، رنگ آزو را حذف کردند نتایج مطالعه آن‌ها نشان داد که داده‌ها از واکنش درجه اول کاذب تبعیت می‌کند. نتایج مطالعه آن‌ها با نتایج مطالعه حاضر مطابقت دارد (۱۱) با توجه به نتایج حاصل از معادلات ایزوترمی که در نمودارهای ۹ و ۱۰ نشان داده شده است، ایزوترم جذب رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ روی نانولوله‌های کربنی تک‌جداره از ایزوترم فروندلیچ ( $R^2=0/989$ ) و همچنین از ایزوترم لانگمویر ( $R^2=0/950$ ) تبعیت می‌کند. نتایج مطالعه حاضر با نتایج تحقیق Ai و همکاران در سال ۲۰۱۱ مطابقت دارد آن‌ها در زمینه حذف متیلن بلو از محلول آبی توسط نانولوله کربنی چندجداره مگنتیک شده مطالعه کردند نتایج تحقیق آن‌ها نشان داد که

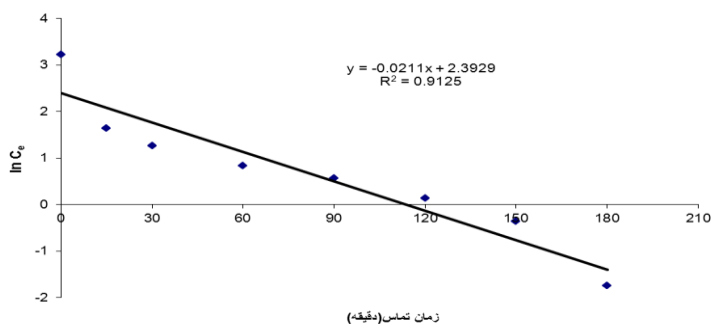


آمد. در حالی که در فاصله زمانی بین ۳۰ تا ۱۸۰ دقیقه، کارایی حذف برای غلظت ۲۵ میلی‌گرم در لیتر برابر ۸۵/۹٪ و ۹۹/۳٪ و برای غلظت ۵۰ میلی‌گرم در لیتر برابر ۷۳/۶٪ و ۹۵/۸٪ بود. در نتیجه می‌توان گفت که زمان بهینه برای موارد کاربردی در حد ۳۰ دقیقه بوده است. زمان تعادل به زمانی اطلاق می‌گردد که حذف آلاینده با گذشت زمان، کمتر از ۵ الی ۱۰ درصد مقادیر حذف در زمان‌های اولیه باشد در مطالعه حاضر، زمان تعادل برای واکنش جذب، ۱۸۰ دقیقه بود چون بعد از این زمان، میزان جذب بسیار کم بوده است (۳۰). نتایج مطالعه حاضر با نتایج به دست آمده توسط Yao و همکاران در سال ۲۰۱۱ که جذب متیل اورنژ را توسط نانولوله‌های کربنی چندجداره انجام دادند مطابقت دارد. در مطالعه Yao و همکاران زمان بهینه حذف ۶۰ دقیقه و زمان تعادل واکنش جذب ۱۸۰ دقیقه بود (۳۱).

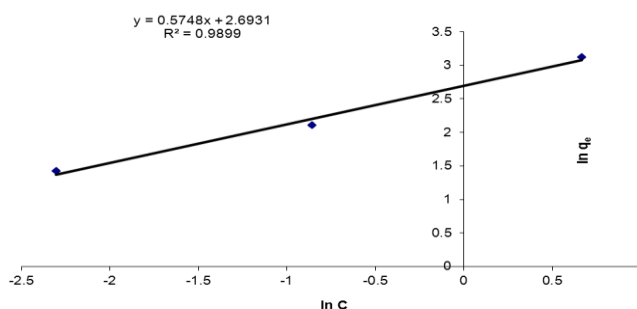
واکنش جذب از مدل ایزوترمی لانگمویر ( $R^2 = 0/987$ ) و همچنین از مدل ایزوترم فروندلیچ ( $R^2 = 0/868$ ) تبعیت می‌کند که با نتایج مطالعه حاضر مطابقت دارد (۱۰). اصولاً در فرایندهای بر پایه جذب، زمان بهینه برای حذف آلاینده و دستیابی به مقادیر استاندارد از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است. زمان بهینه به زمانی اطلاق می‌شود که آلاینده در حد مطلوبی حذف گردد و چنان‌چه زمان واکنش از این حد فراتر رود فرایند از لحاظ کاربردی مقرون به صرفه نبوده و همچنین کارایی حذف آلاینده بسیار کم خواهد بود. در مطالعه حاضر راندمان حذف رنگ مورد مطالعه در غلظت‌های ۲۵ و ۵۰ میلی‌گرم در لیتر در زمان‌های تماس ۱۵ تا ۱۸۰ دقیقه مورد بررسی قرار گرفت. در زمان تماس ۳۰ دقیقه، برای غلظت‌های ۲۵ و ۵۰ میلی‌گرم در لیتر، راندمان حذف رنگ به ترتیب ۸۵/۹٪ و ۷۳/۶٪ به دست



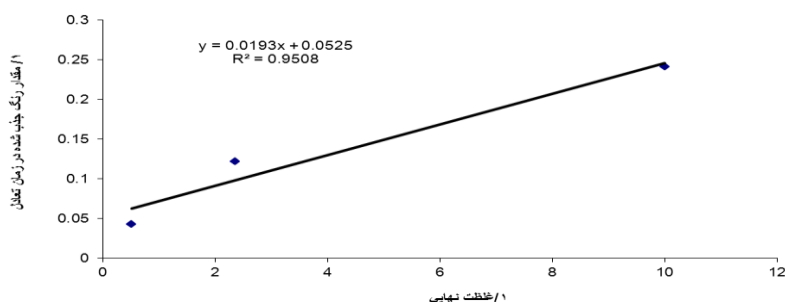
نمودار ۷. رابطه بین میزان جذب با مقدار دوز جاذب



نمودار ۸. سینتیک درجه اول کاذب، با دوز جاذب ۰/۶ گرم در لیتر نانولوله کربنی تک‌جداره (pH=۴) و غلظت اولیه رنگ ۲۵ میلی‌گرم در لیتر



نمودار ۹. ایزوترم فروندلیچ نانولوله کربنی تک‌جداره با دوز جاذب ۰/۱، ۰/۳، ۰/۶، ۰/۹ گرم در لیتر (زمان ۲۴ ساعت و در pH=۴ و غلظت اولیه رنگ ۲۵ میلی‌گرم در لیتر)



نمودار ۱۰. ایزوترم لانگمویر نانولوله کربنی تک‌جداره با دوز جاذب ۰/۱، ۰/۳، ۰/۶، ۰/۹ گرم در لیتر (زمان ۲۴ ساعت و در pH=۴ و غلظت اولیه رنگ ۲۵ میلی‌گرم در لیتر)

بیشترین میزان حذف در ۱۸۰ دور در دقیقه بوده است. سینتیک واکنش با معادله درجه اول کاذب توصیف شد و ایزوترم جذب از هر دو مدل فروندلیچ و لانگمویر تبعیت می‌کند. این مطالعه نشان می‌دهد که 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 نانولوله‌های کربنی تک‌جداره به عنوان جاذب در حذف آلاینده‌های آلی از محلول‌های آب، این جاذب می‌تواند جهت حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۹۸ مؤثر باشد.

### تشکر و قدردانی

نویسندگان لازم می‌دانند از کسانی که ما را در انجام این پژوهش یاری نموده‌اند تشکر و قدردانی نمایند

### نتیجه‌گیری

نتایج این مطالعه نشان داد که با افزایش دوز جاذب، راندمان افزایش و  $Q_e$  کاهش می‌یابد. هم‌چنین راندمان حذف رنگ با افزایش غلظت اولیه رنگ، کاهش و  $Q_e$  با افزایش غلظت اولیه رنگ، افزایش می‌یابد. با افزایش زمان تماس از ۱۵ به ۱۸۰ دقیقه، راندمان افزایش می‌یابد ولی چون حداکثر جذب در ۳۰ دقیقه اول بوده بنابراین زمان ۳۰ دقیقه به عنوان زمان بهینه جذب در نظر گرفته شد. واکنش جذب در ۱۸۰ دقیقه به تعادل می‌رسد و پس از این زمان، میزان جذب بسیار کم بود. نتایج هم‌چنین مشخص کرد که با کاهش pH از ۱۰ به ۴ راندمان افزایش می‌یابد و pH ۴ به عنوان pH بهینه در نظر گرفته شد، چون بیشترین راندمان حذف در pH اسیدی (۴) بود. هم‌چنین با افزایش شدت اختلاط راندمان افزایش می‌یابد و

## References

1. Machado F M, Fernando M Machado, Carlos P Bergmann, Thais H M Fernandes, Eder C Lima, Betina Royer, et al. Adsorption of Reactive Red M-2BE dye from water solutions by multi-walled carbon nanotubes and activated carbon, *Journal of Hazardous Materials* 2011;192: 1122- 31.
2. Wu. C H. Adsorption of reactive dye onto carbon nanotubes: Equilibrium, kinetics and thermodynamics, *Journal of Hazardous Materials* 2007; 144: 93–100.
3. Qu S, Huang F, Yu SN, Chen G, Kong JL. Magnetic removal of dyes from aqueous solution using multi-walled carbon nanotubes filled with Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> particles. *Journal of Hazardous Materials* 2008; 160(2-3) :643–7.
4. Rasoulifard M.H, Taheri Qazvini N, Farhangnia E, Heidari A, Doust Mohamadi S. M. M. Removal of direct Yellow 9 and Reactive Orange 122 from contaminated water using Chitosan as a Polymeric Bioadsorbent by Adsorption Process. *Journal of Color Science and Technology* 2010: 17- 23.
5. Ghaneian M T, Ghanizadeh G, Gholami M, Ghaderinasab F. Application of Eggshell as a Natural Sorbent for the Removal of Reactive Red 123 Dye from Synthetic Textile Wastewater, *Zahedan Journal of Research in Medical Sciences ( Tabib-E-Shargh)* 2010;11(4): 25-34.
6. Gong J L, Wang B, Zeng G M, Yang C P, Niu C G, Niu Q Y, Zhou W G, Liang Y. Removal of cationic dyes from aqueous solution using magnetic multi-wall carbon nanotube nanocomposite as adsorbent. *Journal of Hazardous Materials*;164(2): 1517–22.
7. Madrakian T, Afkhami A, Ahmadi M, Bagheri H. Removal of some cationic dyes from aqueous solutions using magnetic-modified multi-walled carbon nanotubes, *Journal of Hazardous Materials* 2011; 196: 109–14.
8. Xu. S, Ng J, Zhang X, Bai H, Delai Sun D et al. Adsorption and photocatalytic degradation of Acid Orange 7 over hydrothermally synthesized mesoporous TiO<sub>2</sub> nanotube, *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects.* 2011; 379(1):169–75.
9. Kuo C Y. Preventive dye-degradation mechanisms using UV/TiO<sub>2</sub>/carbon nanotubes process, *Journal of Hazardous Materials* 2009; 163(1): 239–44.
10. Ai. L, Zhang. C, Liao. F, Wang. Y, Li. M, Meng. L, et al. Removal of methylene blue from aqueous solution with magnetite loaded multi-wall carbon nanotube: Kinetic, isotherm and mechanism analysis, *Journal of Hazardous Materials* 2011;198: 282–90.
11. Mishra A K, Arockiadoss T, Ramaprabhu S. Study of removal of azo dye by functionalized multi walled carbon nanotubes, *Chemical Engineering Journal* 2010; 162: 1026–34.
12. He C, Yu Y, Hu X , Larbot A. Influence of silver doping on the photocatalytic activity of titania films. *Appl Surf Sci* 2002; 200(1-4): 239–47.
13. Ehrampoush MH, Ghanizadeh Gh, Ghaneian MT. Equilibrium and Kinetics study of Reactive Red 123 dye Removal from aqueous solution by Adsorption on Eggshell. *Journal Environmental Health Science Engineering* 2011; 8(2): 101-8.
14. Riaz U, Ashraf SM. Semi-conducting poly (1-naphthylamine) nanotubes: A pH independent adsorbent of sulphonate dyes. *Chemical Engineering Journal* 2011; 174(2-3): 546–55.
15. Crini G. Non-conventional low-cost adsorbents for dye removal: A review. *Bioresour. Technol* 2006; 97 (9): 1061–85.
16. Lu C, Chiu H. Adsorption of zinc (II) from water with purified carbon nanotubes. *Chemical Engineering Science* 2006; 61(4):1138-45.
17. Bina B, Amin MM, Rashidi A, Pourzamani H. Benzene and toluene removal by carbon nanotubes from aqueous solution. *Archives of Environmental Protection* 2012; 38(1):3-25.
18. Pourzamani H, Bina B, Rashidi A, Amin M. Performance of raw and regenerated multi-and single-walled carbon nanotubes in xylene removal from aqueous solutions. *International Journal of Environmental Health Engineering* 2012; 1(1):4

19. Strong K L, Anderson D P, Lafdi K, Kuhn J N. Purification process for single-wall carbon nanotubes, *Carbon* 2003; 41:1477–88.
20. Chang PR, Zheng PW, Liu BX, Anderson DP, Yu JG, Ma XF. Characterization of magnetic soluble starch-functionalized carbon nanotubes and its application for the adsorption of the dyes. *Journal of Hazardous Materials* 2011; 186: 2144-50.
21. Perez-Aguilar. N.V, Diaz-Flores. P.E, Rangel-Mendez. J.R, The adsorption kinetics of cadmium by three different types of carbon nanotubes, *Journal of Colloid and Interface Science* 2011; 364(2): 279–87.
22. Lu. C, Su. F. Adsorption of natural organic matter by carbon nanotubes, *Separation and Purification Technology* 2007; 58:113–21.
23. Janus M, Kusiak E, Choina J, Ziebro H, Morawski A W. Enhanced adsorption of two azo dyes produced by carbon modification of TiO<sub>2</sub>. *Desalination* 2009; 249(1): 359–63.
24. Moussavi G, Mahmoudi M. Degradation and biodegradability improvement of the reactive red 198 azo dye using catalytic ozonation with MgO nanocrystals. *Chemical Engineering Journal* 2009; 152(1): 1–7.
25. Ling C, Mohamed A, Bahatia S. Photo degradation of methylene blue dye in aqueous stream. *Journal of Technology* 2004; 40: 91-103.
26. Chakrabarti S, Dutta B K. Photo catalytic degradation of model textile dyes in wastewater using ZnO as semiconductor catalyst. *Journal of Hazardous Materials* 2004; 112(3): 269-78.
27. QU B, Zhou J, Xiang X, Zheng C, Zhao H, Zhou X. Adsorption behavior of Azo Dye C. I. Acid Red 14 in aqueous solution on surface soils. *J Env Sci.* 2008; 20:704-11.
28. Crini G, Badot PM. Application of chitosan, a natural aminopolysaccharide, for dye removal from aqueous solutions by adsorption processes using batch studies: A review of recent literature. *Prog. Polym. Sci* 2008; 33: 399–47.
29. Ehrampoush MH, Mahvi AH, Fallahzadeh H, Moussavi SP. The Evaluation of Efficiency of Multi-Walled Carbon Nanotubes in Humic Acid Adsorption in Acidic Conditions From Aqueous Solution. *Journal of Toloo-E-Behdasht* 2012; 3:79-90.
30. Samarghandi MR, Noori Sepehr M, Zarrabi M, Norouzi M, Amraie F. Mechanism and Removal Efficiency of C.I. Acid Blake 1 by Pumice Stone Adsorbent. *Iran J Health & Environ.* 2011; 3(4): 399-410.
31. Yao Y, Bing H, Feifei X, Xiaofeng C. Equilibrium and kinetic studies of methyl orange adsorption on multi-walled carbon nanotubes. *Chemical Engineering Journal* 2011; 170(1): 82–9.

## Application of Single-Walled Carbon Nanotubes in Reactive Red 198 dye adsorption from aqueous solutions

Mohsen Sadani <sup>1</sup>, Seyedeh Parvin Moussavi <sup>2</sup>, Mohammad Hasan Ehrampoush <sup>3</sup>,  
Tahere Jasemi Zad <sup>4</sup>, Sare Rahimi <sup>5</sup>

### Original Article

#### Abstract

**Background:** Colors make many problems and these are major sources of environmental pollution. Therefore, this wastewater should be treated before discharge to environment to reduce the environmental threats. Adsorption is one of the usual processes for color removal from wastewater. Nanotubes are new adsorbents with extend application for adsorption of different compounds. Aim of this study was survey on feasibility of single-walled carbon Nanotubes as adsorbent to reactive red 198 dye adsorption from aqueous solutions.

**Methods:** This study was done in a batch reactor. The effects of various parameters such as contact time mixing intensity, initial dye concentration, pH and single-walled carbon Nanotubes dose on removal of Reactive Red 198 color was investigated.

**Findings:** The results showed the optimal time for achieve to maximum adsorption and equilibrium is 3 hours. More increasing in adsorbent dose from 0.1 to 0.9 g, more increasing in dye removal efficiency from 91.8% to 100%. It was found that the maximum adsorption capacity of reactive red 198 on single-walled carbon nanotubes was 7.98 mg/gr and it was occurred in acidic condition (pH = 4). Decreasing in initial dye concentration from 50 to 25 mg/l in pH 4 and during 3 hours can cause increasing in removal efficiency from 9/96% to 100%.

**Conclusion:** The results showed reaction kinetic was described by Pseudo-first order equation and adsorption isotherm was followed both Freundlich and Langmuir isotherm models. Due to the small size, high surface area, crystalline shape and unique regularity of the network, the reactivity of single-walled carbon Nanotubes is very high. Single-walled carbon nanotubes have impressive performance as adsorbents to removal of reactive red dye 198.

**Keywords:** Single-Walled Carbon Nanotubes, Adsorption, Reactive Red 198, Aqueous Solutions

**Citation:** Sadani M, Moussavi S P, Ehrampoush M H, Jasemi Zad T, Rahimi S. **Application of Single-Walled Carbon Nanotubes in Reactive Red 198 dye adsorption from aqueous solutions.** J Health Syst Res 2014; 10(2):??

Received date: 18.05.2013

Accept date: 13.10.2014

1. PhD Student, Environment research center, Isfahan University of medical sciences; Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Public Health, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences-Yazd, Yazd, Iran
2. Department of Environmental Health Engineering, International Branch of Shahid Sadoughi University of Medical Sciences and Health Services, Yazd, Iran (Corresponding author) seyedeparvin.mosavi@yahoo.com
3. Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Public Health, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran
4. Department of Environmental Health Engineering, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.
5. Islamic Azad university, Arsanjan, Iran