

## بررسی کارایی نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>-MPAP) در حذف رنگزای آبیونی از محلول‌های آبی: مطالعات سینتیکی، تعادلی و ترمودینامیکی

محسن محمدی گلنگش<sup>۱</sup>، زهرا بزرگپناه خراط<sup>۲</sup>، علی محمد صنعتی<sup>۳</sup>

### مقاله پژوهشی

### چکیده

**مقدمه:** حذف رنگ‌های راکتیوآزو، یکی از مشکلات اساسی در فرایند تصفیه پساب‌های صنایع نساجی شناخته می‌شود. در سال‌های اخیر استفاده از نانوذرات برای حذف و کاهش آلاینده‌ها در محیط‌های آبی بسیار مورد توجه قرار گرفته است. هدف از انجام پژوهش حاضر، سنت نانوذرات مغناطیسی آهن- سیلیکا با گروه عاملی استر (سیلیکا- استر (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>-MPAP) و بررسی کارایی آن‌ها جهت حذف رنگ راکتیو بلک ۵ (RB-5 Reactive Black 5) از محلول‌های آبی بود.

**روش‌ها:** سنت نانوذرات سیلیکا- استر به روش هم‌رسوبی در شرایط قلایی صورت گرفت. جهت تعیین اندازه نانوذرات، از تکنیک میکروسکوپ الکترونی عبوری (Transmission electron microscopy (TEM)) استفاده و تأثیر متغیرهای مستقل pH، غلظت اولیه رنگ و مقدار نانوذرات بر راندمان حذف رنگ بررسی گردید. آتالیزهای سینتیک، ایزوترم و ترمودینامیک به منظور تعیین نرخ و مکانیسم جذب انجام شد. در نهایت، کارایی نانوذرات بازیافت شده جهت حذف رنگ RB-5 مورد بررسی قرار گرفت.

**یافته‌ها:** ۱۰۰ درصد حذف رنگ در pH = ۲، غلظت رنگ ۲۰ میلی گرم بر لیتر و در مدت زمان ۸۰ دقیقه به دست آمد. مطالعات سینتیکی نشان داد که سینتیک حذف رنگ RB-5 در شرایط بهینه از سینتیک شبه مرتبه دوم تعییت کرد و فرایند جذب، شیمیایی بود. داده‌های تعادلی جذب به خوبی با مدل ایزوترمی Langmuir مطابقت نمود. مطالعات ترمودینامیکی نشان داد که فرایند جذب رنگ به سادگی امکان‌پذیر، خود به خودی و گرماگیر می‌باشد و نانوجاذب‌های سنت شده پس از پنج مرتبه بازیابی، از کارایی حذف مطلوبی برخوردار بودند.

**نتیجه‌گیری:** نانوذرات سیلیکا- استر در حذف رنگ RB-5 از محلول‌های آبی کارامد می‌باشد و این نانوذرات می‌توانند با توجه به ساختار شیمیایی و قدرت بازیابی مناسب، به عنوان جاذب مناسبی برای حذف رنگ‌های آبیونی از محلول‌های آبی مورد توجه قرار گیرند.

**واژه‌های کلیدی:** رنگزای، سیلیکا، استر، آلدگی آب، نانوذرات مغناطیسی

**ارجاع:** محمدی گلنگش محسن، بزرگپناه خراط زهرا، صنعتی علی محمد. بررسی کارایی نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>-MPAP) در حذف رنگ‌زای آبیونی از محلول‌های آبی: مطالعات سینتیکی، تعادلی و ترمودینامیکی. مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۳۹۷؛ ۴۱: ۴۱۸-۴۰.

تاریخ چاپ: ۱۳۹۷/۷/۱۵

پذیرش مقاله: ۱۳۹۷/۳/۱۰

دریافت مقاله: ۱۳۹۶/۱۲/۱۸

### مقدمه

امروزه منابع آبی یکی از اساسی‌ترین محیط‌های طبیعی به شمار می‌رود که فعالیت‌های انسانی مانند تخلیه پساب صنایع، سبب تخریب و ورود انواع آلاینده‌های خطرناک به این منابع و کاهش کیفیت آب می‌شود (۱). در این میان، رنگ یکی از آلاینده‌هایی است که با وجود اثرات مخربی که بر اکوسیستم‌های آبی دارد، به طور گسترده در صنایع مختلفی همچون صنایع چرم، لوازم آرایشی، کاغذ، چاپ، پلاستیک، داروسازی و به ویژه نساجی استفاده می‌شود (۲). مواد رنگ‌زای آبی در پساب‌ها اغلب دارای ساختمان‌کوکولی اروماتیکی پیچیده‌ای می‌باشند و به دلیل پایداری، قابلیت رویت بودن و مقاومت در مقابل تجزیه‌پذیری، اثرات زیانباری بر سلامت موجودات زنده ایجاد می‌کنند (۳). بیشتر رنگ‌های مصرفی در صنایع منشأ آبی دارد و می‌تواند سبب ایجاد آلرژی، تحریک پوستی و چشم‌های ژنتیکی در انسان شود و به علت قابلیت

تجزیه بیولوژیکی پایین و سرطان‌زا بودن (به دلیل تولید گروه‌های آمین در تجزیه بی‌هوざی)، بسیار خطرناک هستند (۴، ۵). رنگ راکتیو بلک ۵ (RB-5 Reactive Black 5) از گروه رنگ‌های راکتیوآزو و یک ترکیب دیاز با چهار گروه فلزی است و بس از اتحاد در محلول‌های آبی، به سولفونات‌های آبیونی تجزیه می‌شود. RB-5 رنگی سمی و چesh زا برای انسان می‌باشد که به تجزیه زیستی مقاوم است و به دلیل ثبات زیاد در طی شستشو، به مقدار زیادی در صنایع نساجی مورد استفاده قرار می‌گیرد (۶، ۷). از میان روش‌های مختلف فیزیکی، شیمیایی و بیولوژیکی جهت حذف رنگ از آب و پساب، جذب سطحی به لحاظ هزینه اولیه، استفاده مجدد از پساب، سادگی و انعطاف‌پذیری در مقایسه با تکنیک‌های دیگر، کاربرد گستره‌ای دارد (۸). در سال‌های اخیر، نانوذرات مغناطیسی از جمله جاذب‌های پرکاربرد جهت حذف انواع رنگ از محیط‌های آبی می‌باشد. موسوی و محمودی در مطالعه خود

- ۱- دانشیار، گروه علوم و مهندسی محیط زیست، دانشکده منابع طبیعی، دانشگاه گیلان، صومعه‌سراء، ایران
- ۲- کارشناس ارشد، گروه علوم و مهندسی محیط زیست، دانشکده منابع طبیعی، دانشگاه گیلان، صومعه‌سراء، ایران
- ۳- استادیار، گروه محیط زیست، پژوهشکده خلیج فارس، دانشگاه خلیج فارس، بوشهر، ایران

نویسنده مسؤول: محسن محمدی گلنگش

Email: m\_mohammadi@guilan.ac.ir

ایزوترم‌های Freundlich و Langmuir تطبیق داده شد و مطالعات ترمودینامیکی جهت تأثیر دما بر روی جذب رنگ نیز صورت گرفت. جهت تعیین سینتیک جذب رنگ RB-5 از مدل‌های سینتیکی شبه درجه اول و دوم استفاده شد. همچنین، کارایی نانوذرات سیلیکا-استر بازیافت شده جهت حذف رنگ RB-5 دوباره بررسی گردید. لازم به ذکر است که تمام آزمایش‌های مربوط به جذب رنگ با نانوذرات سیلیکا-استر در دمای اتاق صورت گرفت.

**سترن-نانوذرات مغناطیسی:** جهت سنتز نانوذرات اکسید آهن، ۱۰/۸۱۳۳ گرم کلرید آهن (III) و ۳/۹۷۶۶ گرم کلرید آهن (II) در ۲۰۰ میلی لیتر آب مقطور حل شد و تحت اتمسفر آرگون مخلوط گردید تا به دمای ۸۰ درجه سلسیوس رسید. سپس ۱۰ میلی لیتر آمونیاک به آن افزوده شد و واکنش به مدت ۵ ساعت در شرایط خلاً ادامه یافت و در نهایت، رسوب سیاه رنگ نانوذرات آهن (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) باقی ماند (۱۵). سپس نانوذرات آهن همراه با آب مقطور در دمای ۸۰ درجه سلسیوس همزده شد و پس از ده دقیقه، ۱ میلی لیتر تتراء ارتو سلیکات و اتانول به آن اضافه گردید. واکنش به مدت ۲۴ ساعت در همین دما در شرایط خلاً ادامه یافت که در نهایت، نانوذرات آهن-سیلیکا (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>) به دست آمد. جهت عامل دار کردن سطح نانوذرات Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>-Amine (APTES 3-Aminopropyl triethoxysilane) در اتانول در دمای ۸۰ درجه سلسیوس به محتوی بشر اضافه شد. پس از گذشت ۸ ساعت، رسوب سیاه رنگ نانوذرات سیلیکا-آمین (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>-APTES) تشکیل گردید (۱۶). در انتهای، به نانوذرات سیلیکا-آمین، ۱۳ میلی لیتر متیل اکربیلات و اتانول اضافه شد و مخلوط واکنش به مدت ۵ روز در دمای ۵۰ درجه سلسیوس رفلaksن گردید که در نهایت، نانوذرات سیلیکا-استر (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>-MPAP) به دست آمد که با اتانول شستشو داده شد و در آون خشک گردید (۱۷).

**تأثیر شاخص‌های مختلف در جذب رنگ توسط نانوذرات سیلیکا-استر:** برای بررسی تأثیر شاخص‌های مختلف بر کارایی حذف رنگ RB-5، با کمک اسید کلریدریک و هیدروکسید سدیم ۰/۱ مولار و pH متر، محلول‌هایی با pH‌های مختلف (۲، ۵ و ۱۰) ساخته شد. در این مرحله، pH به عنوان شاخص متغیر و بقیه شاخص‌ها (غلظت رنگ RB-5) برابر با ۲۰ میلی گرم بر لیتر و مقدار نانوذرات مغناطیسی ۰/۳ گرم بر لیتر ثابت در نظر گرفته شد. تأثیر مقدار جاذب بر کارایی حذف رنگ RB-5 در زمان‌های مختلف، با متغیر در نظر گرفتن نانوذرات مغناطیسی سیلیکا-استر (۰/۳، ۰/۰۲ و ۰/۰۴) گرم بر لیتر در شرایط ثابت (غلظت اولیه رنگ ۲۰ میلی گرم بر لیتر و pH = ۲) بررسی گردید. همچنین، تأثیر غلظت اولیه رنگ RB-5 بر کارایی حذف، با متغیر در نظر گرفتن غلظت رنگ (۰/۱۰، ۰/۰۳ و ۰/۰۰۲) گرم بر لیتر در شرایط ثابت (۰/۰۳ گرم بر لیتر و pH = ۲) مورد بررسی قرار گرفت. برای هر سه شاخص، میزان جذب رنگ توسط نانوذرات با استفاده از اسپکتروفوتومتر گردید. سپس برای محاسبه میزان کارایی حذف رنگ که اغلب به صورت درصد بیان می‌شود، از رابطه ۱ استفاده شد که در آن، R راندمان حذف رنگ (درصد)، C<sub>0</sub> غلظت اولیه رنگ و C<sub>e</sub> غلظت ثانویه رنگ بر حسب میلی گرم بر لیتر می‌باشد.

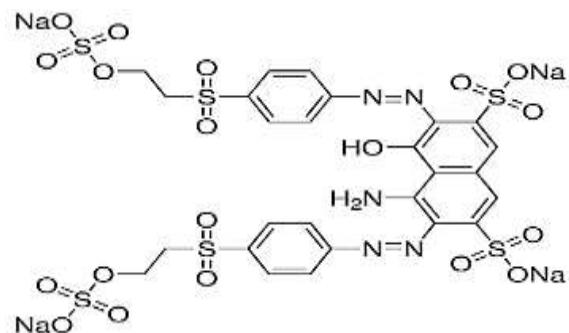
$$\text{رابطه ۱} \quad R = (C_0 - C_e)/C_0 \times 100$$

به بررسی حذف رنگ‌های راکتیو آبی ۱۹ و راکتیو قرمز ۱۹۸ با استفاده از نانوذرات اکسید منیزیم پرداختند و به این نتیجه رسیدند که نانوذرات اکسید منیزیم در جذب رنگ‌های راکتیو آبی ۱۹ و راکتیو قرمز ۱۹۸ توانا است (۱۰). ششمین و همکاران به حذف رنگ اسید اورنج ۷ با استفاده از نانوکامپوزیت مغنتیت گرافن-کیتوسان پرداختند و دریافتند که جاذب مذکور در حذف رنگ‌زا بسیار مؤثر می‌باشد و کارایی حذف رنگ با افزایش pH و مقدار دز جاذب به ترتیب کاهش و افزایش می‌یابد (۱۱). یزدان‌بخش و همکاران نانوذرات اسپینل (ZnCr<sub>7</sub>O<sub>4</sub>) را سنتز کردند و از آن جهت حذف رنگ راکتیو آبی ۵ استفاده نمودند. نتایج تحقیق آنان نشان داد که نانوذرات اسپینل می‌تواند این رنگ‌را با موفقیت حذب نماید (۱۲). محققان و همکاران پژوهشی را با هدف حذف رنگ RB-5 با استفاده از نانوکامپوزیت مغناطیسی پوسته صدف-مغنتیت انجام دادند و نتیجه گیری کردند که کارایی حذف رنگ RB-5 با افزایش زمان تماس و مقدار جاذب، افزایش می‌یابد و فرایند حذب گرمایش می‌باشد (۱۳).

از دلایل کاربرد نانوذرات مغناطیسی در مقایسه با مواد غیر مغناطیسی به عنوان جاذب، می‌توان به نسبت سطح به حجم بالا، پایداری حرارتی و مکانیکی زیاد، انجام سریع واکنش جذب، جداسازی آسان نانوذرات مغناطیسی از رنگ و قابلیت استفاده مجدد از این نانوذرات اشاره نمود (۱۰-۱۲). بنابراین، مطالعه حاضر با هدف بررسی کارایی نانوذرات مغناطیسی اکسید آهن با گروه عاملی استر جهت حذف رنگ RB-5 از آب از طریق حذف سطحی انجام شد.

## روش‌ها

این تحقیق از نوع بنیادی-کاربردی در مقایسه آزمایشگاهی بود. رنگ RB-5 با فرمول مولکولی C<sub>26</sub>H<sub>21</sub>Na<sub>5</sub>O<sub>19</sub>S<sub>6</sub> از نوع رنگ‌های آینونی و دی‌آزو می‌باشد. این رنگ دارای وزن مولکولی ۹۹۱/۸ گرم بر مول و حدکتر طول موج ۵۷۷ نانومتر است (۱۳، ۱۴). ساختار شیمیایی رنگ RB-5 در شکل ۱ نشان داده شده است.



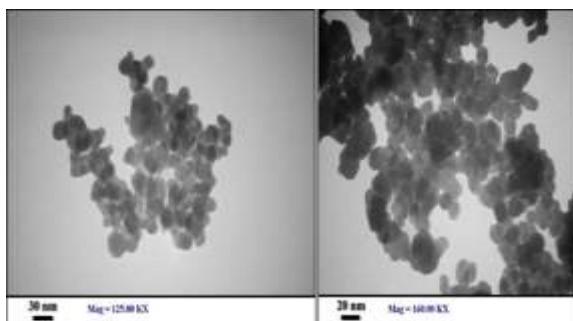
شکل ۱. ساختار شیمیایی رنگ RB-5 (Reactive Black-5)

تمام مواد آزمایشگاهی به کار رفته از شرکت Merck (آلمان) و تنها ترا اتیل اورتو سیلیکات از شرکت Sigma Aldrich (آمریکا) تهیه گردید. در پژوهش حاضر، ابتدا نانوذرات سیلیکا-استر سنتز شد و سپس تأثیر متغیرهای مستقل همچون pH، غلظت اولیه رنگ و مقدار جاذب بر راندمان حذف RB-5 توسط نانوذرات سیلیکا-استر تعیین گردید. داده‌ها جهت بررسی تعادل جذب، با

**کارایی نانوذرات بازیافت شده جهت حذف رنگ RB-5** برای اجیا<sub>۰/۱</sub> نانوذرات مورد استفاده در آزمایش های حذف رنگ، از هیدروکسید سدیم pH = ۲ جذب رنگ در شرایط بهینه (۰/۳ گرم بر لیتر) انجام شد (۲۰). بازیابی نانوذرات سیلیکا- استر در پنج مرحله تکرار گردید.

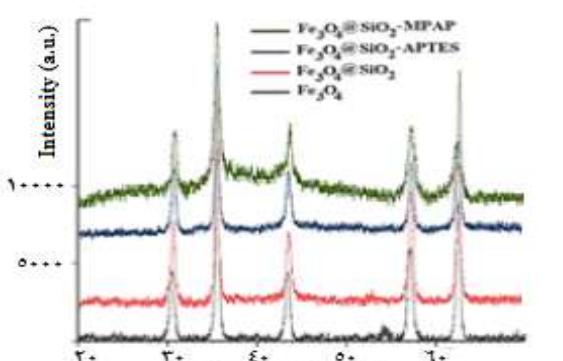
### یافته ها

**مشخصات نانوذرات سیلیکا- استر:** تصاویر میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM) و Transmission electron microscopy (XRD) در شرکت دی پترونیک تهران با استفاده از میکروسکوپ الکترونی (مدل EM10C-100KV، شرکت Zeiss آلمان) تهیه شد که در شکل های ۲ و ۳ نشان داده شده است.



شکل ۲. نمای (TEM) Transmission electron microscopy از نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر

**تأثیر pH در کارایی حذف رنگ توسط نانوذرات:** تأثیر pH برای حذف رنگ RB-5 در چهار سطح pH (۲، ۵، ۷ و ۱۰) با غلظت رنگ ۲۰ میلی گرم بر لیتر و مقدار نانوذرات مغناطیسی (۰/۳ گرم در مدت زمان ۹۰ دقیقه بررسی شد (شکل ۴) که بیشترین راندمان حذف در pH = ۲ به دست آمد.



شکل ۳. نمای (XRD) X-Ray Diffraction از نانوذرات مغناطیسی

غلظت رنگ در فاز جاذب پس از تعادل با استفاده از رابطه ۲ محاسبه می گردد که بر طبق آن،  $q_e$  مقدار رنگ در واحد جرم جاذب (بر حسب میلی گرم بر گرم)، V حجم محلول (بر حسب لیتر) و M جرم جاذب (بر حسب گرم) است (۱۰، ۱۲، ۱۳).

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)}{M} \times V \quad \text{رابطه ۲}$$

**مطالعات سینتیکی:** جهت تعیین سینتیکی جذب رنگ RB-5 با نانوذرات سیلیکا- استر، از مدل های سینتیکی شبه درجه اول و دوم استفاده گردید. آزمایش های سینتیکی فرایند جذب، در غلظت رنگ ۲۰ میلی گرم بر لیتر، مقدار نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر (۰/۳ گرم بر لیتر)، pH = ۲ و زمان های تماس مختلف انجام شد (۷).

**مطالعات تعادلی:** در تحقیق حاضر، داده های تعادلی جذب با مدل های ایزوترم Freundlich و Langmuir موردنی بررسی قرار گرفت. رابطه ایزوترم به صورت رابطه ۳ می باشد که در آن،  $q_e$  مقدار رنگ در واحد جرم جاذب (بر حسب میلی گرم بر گرم)،  $C_e$  غلظت تعادلی رنگ بعد از جذب سطحی (بر حسب میلی گرم بر لیتر)،  $q_{max}$  ظرفیت جذب و ثابت  $K_L$  است که از رسم نمودار  $C_e/q_e$  در مقابل  $C_e$  به دست می آید.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{K_L q_{max}} + \frac{1}{q_{max}} C_e \quad \text{رابطه ۳}$$

رابطه خطی ایزوترم Freundlich به صورت رابطه ۴ است که در آن،  $C_e$  غلظت تعادلی رنگ بعد از جذب (بر حسب میلی گرم بر لیتر)،  $q_e$  ظرفیت جذب رنگ در زمان تعادل (بر حسب میلی گرم بر گرم) و ثابت  $K_F$  و معادله خطی  $\log C_e = \log K_F + \frac{1}{n} \log q_e$  به دست می آید که در مقابله  $\log C_e = \log K_F + \frac{1}{n} \log q_e$  عرض از مبدأ آن است (۱۸-۲۰).

$$\log q_e = \log K_F + \frac{1}{n} \log C_e \quad \text{رابطه ۴}$$

**مطالعات ترمودینامیکی:** بررسی شاخص های ترمودینامیکی در طی فرایند جذب سطحی، درک صحیحی از مکانیسم جذب در حالت تعادل را فراهم می اورد. جهت انجام مطالعات ترمودینامیکی، آزمایش های جذب در غلظت رنگ ۲۰ میلی گرم بر لیتر، pH = ۲، در گرم بر لیتر (۰/۳ گرم بر لیتر) و دمای ۲۵ درجه سلسیوس، در زمان های تماس مختلف انجام شد. در این مطالعات، تعیین تغییرات سه عامل آنتالپی استاندارد ( $\Delta H^\circ$ )، انرژی آزاد ( $\Delta G^\circ$ ) و آنتروپی استاندارد ( $\Delta S^\circ$ ) ضروری است. این شاخص ها از رسم نمودار آنرا به ترتیب شیب و عرض از مبدأ معادله خطی نمودار مذکور و بر حسب کیلوژول بر مول و ژول بر کلوین در مول می باشد. برای محاسبه انرژی آزاد Gibbs می توان از رابطه ۶ استفاده نمود (۱۹) که در آن  $R$  ثابت عمومی گازها برابر با  $۸/۳۱۴$  ژول بر کلوین در مول،  $K_d$  مقدار آلاینده جذب شده روی جاذب بر حسب میلی گرم بر گرم به مقدار باقی مانده آن در محلول بر حسب میلی گرم بر لیتر و  $T$  دما بر حسب درجه کلوین است.

$$\ln(K_d) = \frac{\Delta S}{R} - \frac{\Delta H}{RT} \quad \text{رابطه ۵}$$

$$\Delta G = -RT \ln (K_d) \quad \text{رابطه ۶}$$

**مطالعات سینتیکی، تعادلی و ترمودینامیکی:** نتایج مطالعات سینتیکی و ترمودینامیکی به ترتیب در جداول ۱ و ۲ و نتایج بررسی داده‌ها بر اساس مدل‌های ایزوترمی در شکل‌های ۷ و ۸ ارایه شده است که بر اساس آن‌ها، سینتیک جذب رنگ با مدل شبه درجه دوم و ایزوترم جذب با مدل Langmuir بیشترین تطابق را داشت.

**(RB-5) Reactive Black-5** جذب رنگ با نانوذرات سیلیکا-استر

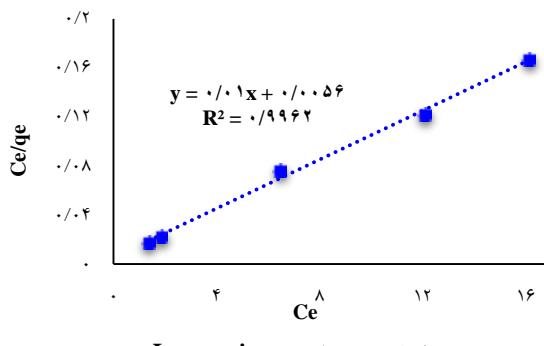
Model	K	R'	Model
Model شبه درجه اول	۰/۰۲۳۰	۰/۹۰۱۸	pH = ۲
Model شبه درجه دوم	۰/۰۰۴۶	۰/۹۸۲۶	pH = ۵

همچنین، نتایج تحقیقات ترمودینامیکی نشان داد که مقادیر آنتالپی استاندارد ( $\Delta H^\circ$ ) و آنتروپی استاندارد ( $\Delta S^\circ$ )، مثبت و مقدار انرژی آزاد ( $\Delta G^\circ$ )، منفی می‌باشد.

**Reactive Black-5** شاخص‌های ترمودینامیکی جذب رنگ با نانوذرات سیلیکا-استر

دما (درجه کلوین)	I/T	lnk	آنالی	آنتروپی استاندارد	آنتروپی Gibbs
۲۵	۰/۰۰۳۴	۰/۵۷۹۸	۰/۶۹۳	۴/۷۶۳	-۱/۴۱۲

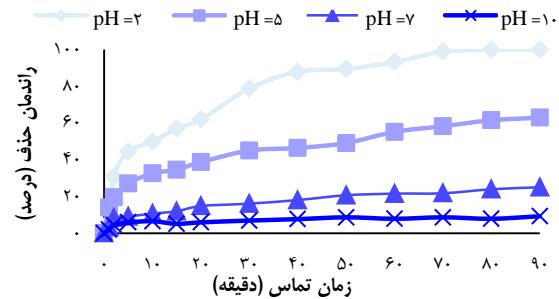
**بازیابی نانوذرات جهت حذف رنگ:** پس از بازیابی نانوذرات سیلیکا-استر، آزمایش جذب رنگ در  $pH = ۲$ ، غلظت اولیه رنگ  $۲۰$  میلی گرم بر لیتر و مقدار نانوذرات بازیافتنی  $۰/۰$  گرم بر لیتر طی پنج مرحله انجام شد که نتایج آن در شکل ۹ آمده است.



شکل ۷. نمودار جذب Langmuir

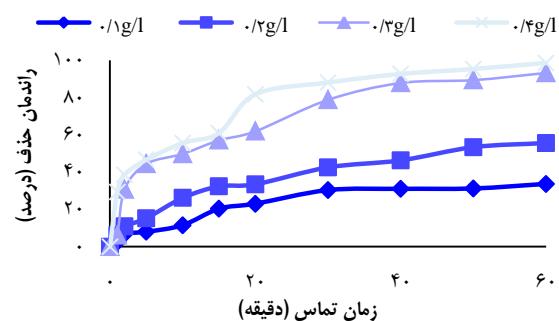
### بحث

**مشخصات نانوذرات سیلیکا-استر بر اساس تصاویر TEM:** بر اساس طیف TEM مشاهده شده در شکل ۲، نانوذرات سیلیکا-استر ستز شده، شکلی کروی با قطر متوسط حدود کمتر از  $۴۰$  نانومتر و تمایل به تجمع و تشکیل ذراتی با اندازه‌های بزرگ‌تر را دارند. طیف TEM به وضوح نشان



شکل ۴. تأثیر pH در کارایی حذف رنگ RB-5 در کارایی حذف رنگ توسط نانوذرات

**تأثیر در جاذب در کارایی حذف رنگ RB-5:** تأثیر مقدار جاذب در حذف رنگ RB-5 در چهار سطح  $۰/۰۱$ ،  $۰/۰۲$ ،  $۰/۰۳$  و  $۰/۰۴$  گرم بر لیتر، غلظت رنگ  $۲۰$  میلی گرم بر لیتر و  $pH = ۲$  بررسی گردید (شکل ۵) و بر اساس آن، مقدار  $۰/۰۳$  گرم به عنوان دز بهینه نانوذرات انتخاب شد.

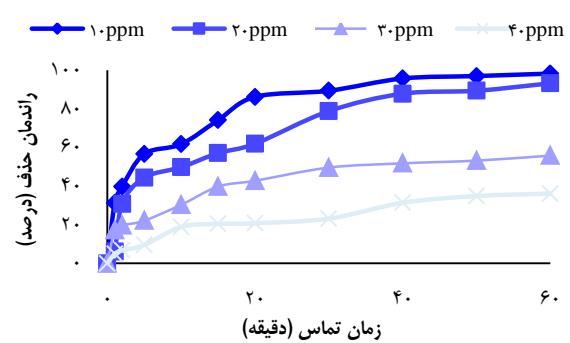


شکل ۵. تأثیر مقدار نانوذرات در کارایی حذف رنگ RB-5

(RB-5) Reactive Black-5

**تأثیر غلظت رنگ RB-5 در کارایی نانوذرات جهت حذف رنگ:**

تأثیر غلظت اولیه رنگ RB-5 بر کارایی حذف، در چهار سطح غلظت رنگ  $۰/۰۱$ ،  $۰/۰۲$ ،  $۰/۰۳$  و  $۰/۰۴$  میلی گرم بر لیتر با مقدار نانوذرات  $۰/۰۳$  گرم بر لیتر و  $pH = ۲$  بررسی شد (شکل ۶) که بر اساس آن، غلظت بهینه رنگ  $۰/۰۳$  میلی گرم بر لیتر تعیین گردید.



شکل ۶. تأثیر غلظت رنگ RB-5 در کارایی حذف رنگ جهت حذف رنگ

نتیجه رسید که با افزایش pH، کارابی حذف کاهش می‌یابد و بالاترین راندمان حذف در pH اسیدی (کمتر از ۴) به دست آمد؛ چرا که در مقادیر pH پایین‌تر از pH نقطه ایزوکلریک نانوذرات سیلیکا- استر که برابر با ۶ است (۲۰)، سطح جاذب مشتمل می‌باشد؛ در حالی که در pH‌های بالاتر از ۶ سطح نانوجاذب دارای بار منفی است و دافعه الکترواستاتیکی بین جاذب و رنگ ایجاد می‌گردد. بنابراین، با توجه به این که رنگ-5 RB- آبیونی است، کارابی جذب در pH پایین افزایش می‌یابد؛ چرا که در pH پایین سطح جاذب مشتمل خواهد شد و در نتیجه، برهم کش الکترواستاتیکی بین جاذب و رنگ آبیونی ایجاد می‌شود، اما در pH های بالا به دلیل وجود نیروهای دافعه الکترواستاتیکی بین مولکول‌های رنگ آبیونی-5 RB و جایگاه‌های دارای بار منفی در سطح نانوذرات مغناطیسی به واسطه تولید گروههای عاملی هیدروکسید، عمل جذب مطلوب نمی‌باشد. از طرف دیگر، در pH قلیایی، رقابت یون‌های OH<sup>-</sup> با یون‌های رنگ برای اتصال به سایتهاي جذب افزایش می‌یابد و در نتیجه، حذف رنگ کاهش پیدا می‌کند (۲۳، ۲۴).

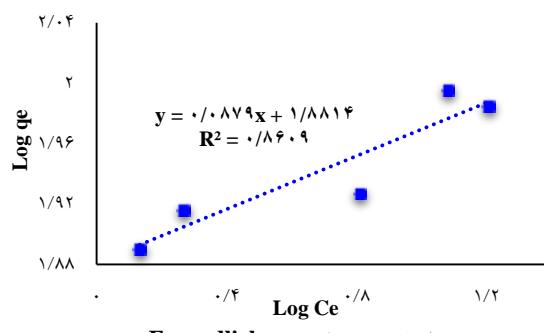
#### تأثیر مقدار نانوذرات سیلیکا- استر در کارابی حذف رنگ-5:

بررسی مقدار بهینه جاذب به دلیل هزینه‌های جذب در سیستم‌های بزرگ تجاری- صنعتی، از اقتصادی در طراحی فرایندهای جذب در سیستم‌های بزرگ تجاری- صنعتی، از مهم‌ترین مسایل مورد توجه است. نتایج حاصل از تأثیر مقدار اولیه نانوذرات در شکل ۴ نشان می‌دهد که با افزایش مقدار نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر از ۰/۱ به ۰/۴ گرم بر لیتر، کارابی حذف رنگ در طی ۶۰ دقیقه، از ۳۳/۷۰ به ۹۸/۶۶ درصد افزایش یافت. Cardoso و همکاران (۲۴) و ضرایبی و همکاران (۲۱) پژوهش‌هایی را بر روی حذف رنگ-5 RB با استفاده از جاذب‌های مختلف انجام دادند و شاخص‌های مختلفی از جمله مقدار ماده جاذب را بررسی کردند و به این نتیجه رسیدند که کارابی حذف این رنگ با افزایش مقدار جاذب افزایش می‌یابد. دلیل این امر را می‌توان چنین تبیین نمود که در مقادیر کم نانوذرات مغناطیسی، سطح نانوذرات به سرعت با مولکول‌های رنگ RB-5 اشباع شده و فضای خالی لازم برای حذف رنگ وجود نداشته است. بنابراین، همواره مقداری رنگ در محلول باقی ماند و با افزایش مقدار جاذب، افزایش سطح جاذب و افزایش تعداد جایگاه‌های جذب قابل دسترس در مقابل مقدار ثابتی از غلظت رنگ رخ می‌دهد که موجب افزایش میزان حذف رنگ می‌گردد (۲۳، ۲۴).

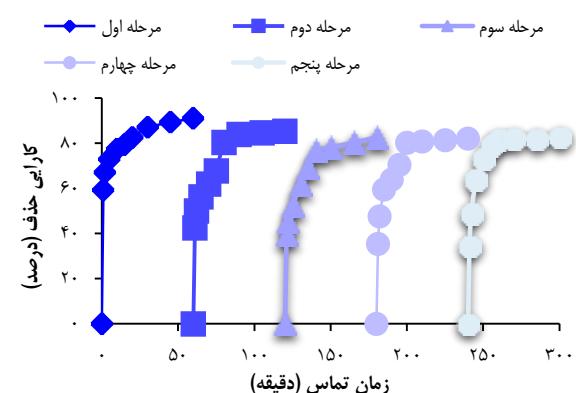
#### تأثیر غلظت رنگ-5 در کارابی نانوذرات جهت حذف رنگ:

تغییرات غلظت اولیه آلینده جذب شونده، از عوامل دیگری است که میزان جذب را تحت تأثیر قرار می‌دهد و فراهم کننده یک نیروی حرکه قابل ملاحظه جهت غلبه بر کل مقاومت حاصل از انتقال جرم رنگ بین فازهای مایع و جامد است (۲۵). در شکل ۵ مشاهده می‌گردد که با افزایش غلظت اولیه رنگ از ۱۰ به ۶۰ میلی گرم بر لیتر، کارابی حذف با استفاده از نانوذرات مغناطیسی در ۶۰ دقیقه، از ۹۸/۳۰ به ۳۶/۱۲ درصد کاهش یافت. Eren و Acar (۲۶) و Ballav و همکاران (۱۴) در مطالعاتی که برای حذف رنگ-5 RB با استفاده از جاذب‌های مختلف انجام دادند، به این نتیجه دست یافتند که افزایش غلظت اولیه رنگ-5 RB باعث کاهش کارابی حذف آن می‌گردد که با نتایج تحقیق حاضر مطابقت داشت. دلیل کاهش راندمان حذف با افزایش غلظت رنگ را می‌توان این گونه تفسیر نمود که با افزایش غلظت رنگ‌زای، بین مولکول‌های رنگ دافعه ایجاد می‌گردد که مانع جذب آن‌ها توسط جاذب می‌شود. از طرف دیگر، به

می‌دهد که نانوذرات سیلیکا- آمین در مرکز رنگ تیره‌تر نمایان شده و سطح نانوذرات به خوبی توسط لیگاند آلی (هاله روشن) پوشیده شده است و حضور پوسه استری بر روی نانوذرات سیلیکا- آمین، اندازه نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- آمین را افزایش می‌دهد (۲۰-۲۳).



**تأثیر pH در کارابی حذف رنگ توسط نانوذرات:** pH یکی از مهم‌ترین شاخص‌هایی است که بر فرایند جذب سطحی و به خصوص بر ظرفیت جذب، تأثیر می‌گذارد. pH ناشی از بار سطحی جاذب، میزان یونیزه شدن مواد موجود در محلول و همچنین، تکیک گروههای عاملی موجود در مکان‌های فعال جذب جاذب می‌باشد و بر روی برهم کش بین گروه عاملی جاذب و جذب شونده تأثیرگذار است (۲۱). بر اساس شکل ۳، هنگامی که pH از ۲ به ۱۰ افزایش یافته، کارابی حذف رنگ با استفاده از نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر پس از ۶۰ دقیقه، از ۹/۲۱ به ۹۰ درصد کاهش پیدا کرد. به عبارت دیگر، افزایش pH سبب کاهش کارابی حذف رنگ-5 RB با استفاده از جاذب شد و pH بهینه برابر با ۲ به دست آمد. با توجه به نتایج مشاهده می‌گردد که فرایند جذب در pH‌های پایین و اسیدی کارابی بهتری در مقایسه با pH‌های بالاتر و قلیایی دارد.



شکل ۹. کارابی نانوذرات بازیابی شده سیلیکا- استر در حذف رنگ (RB-5) Reactive Black-5

تحقیقات ضرایبی و همکاران (۲۱) و Begum و همکاران (۲۲) با هدف حذف رنگ-5 RB با استفاده از جاذب‌های مختلف صورت گرفت و به این

Gibbs منفی به دست آمد که با نتایج مطالعات محققان و همکاران (۱۳) و گلنگش و همکاران (۲۰) همخوانی داشت. منفی بودن میزان انرژی آزاد در پژوهش حاضر، بیان کننده مطلوب بودن فرایند جذب است و نشان می‌دهد که فرایند در طبیعت امکان‌پذیر و خود به خودی می‌باشد. مقادیر مثبت  $\Delta H$  نشان دهنده طبیعت گرمایگر فرایند جذب است و میزان مثبت  $\Delta S$  به دلیل افزایش بی‌نظمی در طول فرایند جذب در سطح فاز مایع- جامد می‌باشد که در نتیجه آن، کارایی جذب با بالا رفتن دما، افزایش می‌یابد؛ چرا که افزایش دما سبب نفوذ بیشتر مولکول‌های رنگ در میان لایه خارجی و منافذ داخلی ذرات جاذب و افزایش تحرک بین رنگ می‌شود. به طور کلی، بر اساس مطالعات ترمودینامیکی بر روی جذب رنگ RB-5 با استفاده از نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر، به نظر می‌رسد که افزایش دما برای جذب رنگ RB-5 مناسب می‌باشد (۱۹).

**بازیابی نانوذرات جهت حذف رنگ:** تولید و سنتز جاذب، فرایندی زمانبر و پرهزینه می‌باشد و یک جاذب علاوه بر دارا بودن قدرت جذب بالا، باید به راحتی بازیابی گردد تا در زمان و هزینه‌های سنتز آن صرفه‌جویی شود. از این‌رو، در تحقیق حاضر آزمایش‌های جذب با نانوذرات بازیافتی طی پنج مرتبه تکرار شد. همان‌گونه که در شکل ۸ مشاهده می‌گردد، حذف رنگ RB-5 با استفاده از نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر بازیافتی طی پنج مرتبه آزمایش جذب، با راندمان بالا صورت گرفته است. به عبارت دیگر، نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر مورد استفاده در حذف رنگ RB-5 را می‌توان به راحتی بازیابی نمود و با بازیافت این نانوذرات در پنج مرحله، هنوز این نانوذرات دارای کارایی مناسبی در حذف رنگ RB-5 می‌باشد. دلیل این کارایی می‌تواند ضعیف بودن پیوند الکترواستاتیک بین جاذب و رنگ RB-5 در محیط قلیایی و در نتیجه، تبادل بین های هیدروکسیل و مولکول‌های رنگ با بار منفی باشد. بد لیل وجود بین های هیدروکسیل در pH قلیایی، این بین ها جایگزین مولکول‌های رنگ با بار منفی می‌شوند. بنابراین، مولکول‌های رنگ از سطح جاذب جدا و مجدد سطح جاذب تازه و عاری از هرگونه آلودگی می‌گردد (۲۰-۲۹). در مطالعه گلنگش و همکاران که با هدف حذف رنگ آئیونی اسید رد ۱۱۴ با نانوذرات سیلیکا- استر انجام شد (۲۰)، در پژوهش محققان و همکاران که به منظور حذف رنگ RB-5 با استفاده از نانوکامپوزیت مغناطیسی پوسته صدف- مگنتیت (۱۳) صورت گرفت و در تحقیق  $Xu$  و همکاران که با هدف حذف رنگ‌های آئیونی با استفاده از نانوذرات سیلیکا- آمین (۲۹) انجام گردید، مشاهده شد که جاذب‌های مذکور پس از چندین مرحله بازیابی، از کارایی حذف مناسبی برخوردار بودند که با نتایج بررسی حاضر مشابهت داشت.

### نتیجه‌گیری

نتایج مطالعه حاضر نشان داد که نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر، جاذب مؤثری برای حذف رنگ RB-5 می‌باشد که درصد این رنگ در شرایط اسیدی pH=۲ مقدار  $0.73$  گرم بر لیتر نانوذرات، در غلظت رنگ  $20$  میلی گرم بر لیتر و در مدت زمان  $80$  دقیقه حذف گردید. سیتیک و اکنش از مدل شبه درجه دوم و ایزوترم جذب از مدل Langmuir تبیین نمود. شاخص‌های ترمودینامیک، طبیعت گرمایگر و خود به خودی بودن و اکشن جذب رنگ با نانوذرات را نشان داد و نانوذرات سیلیکا- استر پس از پنج مرحله بازیابی و استفاده مجدد، راتمنام بالایی جهت جذب رنگ RB-5 داشتند.

دلیل این که سطح جاذب قابل دسترس ثابت می‌باشد، در فرایند جذب ابتداء سطح جاذب با غلظت مشخصی از رنگ‌زا اشغال می‌شود و پس از آن امکان جذب بیشتر آلاینده وجود نخواهد داشت. بنابراین، یکی از روش‌های افزایش درصد حذف آلاینده در سیستم‌های تصوفیه به روش جذب سطحی، رقیق نمودن فاضلاب است (۲۵، ۲۶).

**مطالعات سیتیکی:** نتایج مطالعات سیتیکی در جدول ۲ نشان می‌دهد که فرایند جذب رنگ RB-5 با استفاده از نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر با مدل سیتیکی شبیه درجه دوم و  $R^2 = 0.9826$  تزدیک به (۱) می‌باشد. دارای بهترین برآنش در میان مدل‌های به کار رفته است و مکانیسم غالب در فرایند جذب رنگ RB-5 با استفاده از نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر، جذب شیمیایی می‌باشد. این مدل، متدالوئرین مدل سیتیکی برای توصیف جذب رنگ‌هایها به شمار می‌رود و بر خلاف سایر مدل‌های سیتیکی، رفتار جذبی در کل محدوده جذب را نیز پیش‌بینی می‌کند. در این مدل، هرچند فرایند جذب در مراحل ابتدایی به دلیل آزاد بودن سایت‌های جذبی بر روی سطح جاذب به سرعت صورت گرفته است، اما پس از پیشرفت فرایند جذب، سایت‌های خالی برای رنگ RB-5 بر روی سطح جاذب کاشه می‌یابد و در نتیجه، سرعت جذب به دلیل نفوذ رنگ به سایت‌های درونی جذب و تلاش برای اشغال آن‌ها کاشه می‌یابد (۲۷، ۲۸). نتایج پژوهش‌های Erdem و Ozcan (۲۸)، Eren (۲۸) و Ballav (۲۶) و Acar (۲۶) و همکاران (۱۴) نیز نشان داد که فرایند جذب رنگ RB-5 با جاذب‌های مختلف، از مدل سیتیک شبیه درجه دوم پیروی می‌کند.

**مطالعات تعادلی:** رابطه تعادلی بین مقدار ماده جذب شده بر روی سطح جامد و غلظت تعادلی آن در محلول در دمای ثابت با ایزوترم‌های جذب بیان می‌شود. شکل ایزوترم‌های جذب می‌تواند در طراحی سیستم‌های جذبی و پیش‌بینی این که یک سیستم جذبی مطلوب است یا نامطلوب به کار رود (۲۲). نتایج حاصل از مطالعات تعادلی (شکل ۶ و ۷) برای نانوذرات مغناطیسی سیلیکا- استر در دمای  $25$  درجه سلسیوس نشان می‌دهد که فرایند جذب رنگ RB-5 با مدل  $R^2 = 0.9962$  Langmuir ابتراق بیشتری نسبت به مدل Freundlich دارد. واکنش‌های جذبی که از مدل ایزوترم Langmuir پیروی می‌کند، واکنش‌های جذبی مطلوب نام دارد (۲۶). در تحقیقات Patel و Ozcan (۲۲) و Kyzas (۲۸) و همکاران (۸)، Begum (۲۲) و Suresh (۲۸)، Erdem (۲۸)، الگوی جذب رنگ RB-5 با مدل ایزوترم Langmuir نطایق بیشتری را نشان داد. این مدل بیانگر جذب تک لایه‌ای و یکنواخت (همگن) ماده جذب شونده با انرژی یکسان بر روی تمام سطوح جاذب می‌باشد و همچنین، بیان می‌کند که تمامی مکان‌های جذب دارای پیوستگی یکسانی نسبت به مولکول‌های ماده جذب شونده است (۲۲-۲۵).

**مطالعات ترمودینامیکی:** ترمودینامیک فرایند جذب، اطلاعات وسیعی را در مورد تغییرات آنتالپی استاندارد ( $\Delta H$ ) و آنتروپی استاندارد ( $\Delta S$ ) ارایه می‌نماید. از روی داده‌های ترمودینامیکی می‌توان به شاخص انرژی آزاد Gibbs ( $\Delta G$ ) دست یافت که میزان خود به خودی بودن فرایند جذب خود می‌دهد. هرچه مقادیر عددی  $\Delta G$  منفی تر باشد، نشان می‌دهد که فرایند جذب خود به خودی تر است (۱۹). با توجه به نتایج به دست آمده در جدول ۳، مقادیر  $\Delta S$  و  $\Delta H$  در دمای  $25$  درجه سلسیوس مثبت بود. همچنین، میزان انرژی آزاد

## تشکر و قدردانی

پژوهش حاضر برگرفته از پایان نامه مقطع کارشناسی ارشد گروه محیط زیست با

شماره ۱۰۳۵۳، مصوب دانشگاه گیلان می باشد. بدین وسیله از حمایت بخش های آموزشی و پژوهشی دانشگاه تشکر و قدردانی به عمل می آید.

## References

1. Anbia M, Salehi S. Removal of acid dyes from aqueous media by adsorption onto amino-functionalized nanoporous silica SBA-3. *Dyes Pigm* 2012; 94(1): 1-9.
2. Kaykioglu G, Gunes E. Comparison of acid red 114 Dye adsorption by  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  and  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  impregnated rice husk ash. *J Nanomater* 2016; 2016: 6304096.
3. Nandi BK, Goswami A, Purkait MK. Removal of cationic dyes from aqueous solutions by kaolin: Kinetic and equilibrium studies. *Appl Clay Sci* 2009; 42(3): 583-90.
4. Ozdemir O, Turan M, Turan AZ, Faki A, Engin AB. Feasibility analysis of color removal from textile dyeing wastewater in a fixed-bed column system by surfactant-modified zeolite (SMZ). *J Hazard Mater* 2009; 166(2-3): 647-54.
5. Ghанизاده G, Asgari G. Removal of methylene blue dye from synthetic wastewater with bone char. *Iran J Health Environ* 2009; 2(2): 104-13. [In Persian].
6. Chen AH, Huang YY. Adsorption of Remazol Black 5 from aqueous solution by the templated crosslinked-chitosans. *J Hazard Mater* 2010; 177(1-3): 668-75.
7. Patel R, Suresh S. Kinetic and equilibrium studies on the biosorption of reactive black 5 dye by *Aspergillus foetidus*. *Bioresour Technol* 2008; 99(1): 51-8.
8. Kyzas GZ, Travlou NA, Kalogirou O, Deliyanni EA. Magnetic Graphene Oxide: Effect of Preparation Route on Reactive Black 5 Adsorption. *Materials (Basel)* 2013; 6(4): 1360-76.
9. Mittal H, Parashar V, Mishra SB, Mishra AK.  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  MNPs and gum xanthan based hydrogels nanocomposites for the efficient capture of malachite green from aqueous solution. *Chem Eng J* 2014; 255: 471-82.
10. Moussavi G, Mahmoudi M. Removal of azo and anthraquinone reactive dyes from industrial wastewaters using  $\text{MgO}$  nanoparticles. *J Hazard Mater* 2009; 168(2-3): 806-12.
11. Sheshmani S, Ashori A, Hasanzadeh S. Removal of Acid Orange 7 from aqueous solution using magnetic graphene/chitosan: A promising nano-adsorbent. *Int J Biol Macromol* 2014; 68: 218-24.
12. Yazdanbakhsh M, Khosravi I, Goharshadi EK, Youssefi A. Fabrication of nanospinel  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  using sol-gel method and its application on removal of azo dye from aqueous solution. *J Hazard Mater* 2010; 184(1-3): 684-9.
13. Mohagheghian A, Vahidi-Kolur R, Pourmohseni M, Yang JK, Shirzad-Siboni M. Application of Scallop shell- $\text{Fe}_3\text{O}_4$  Nano-Composite for the Removal Azo Dye from Aqueous Solutions. *Water Air Soil Pollut* 2015; 226: 321.
14. Ballav N, Debnath S, Pillay K, Maity A. Efficient removal of Reactive Black from aqueous solution using polyaniline coated ligno-cellulose composite as a potential adsorbent. *J Mol Liq* 2015; 209: 387-96.
15. Mohammadi S, Khayatian G, Atashkar B, Rostami A. Synthesis and application of magnetic nanoparticle supported ephedrine as a new sorbent for preconcentration of trace amounts of Pb and Cu in water samples. *J Braz Chem Soc* 2014; 25(11): 2039-47.
16. Alizadeh A, Khodaei M M, Beygzaadeh M, Kordestani D, Feyzi M. Biguanide-functionalized  $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  magnetic nanoparticles: An efficient heterogeneous organosuperbase catalyst for various organic transformations in aqueous media. *Bull Korean Chem Soc* 2012; 33(8): 2546.
17. Reynhardt JP, Yang Y, Sayari A, Alper H. Periodic mesoporous silica-supported recyclable rhodium-complexed dendrimer catalysts. *Chem Mater* 2004; 16(21): 4095-102.
18. Shariati S, Faraji M, Yamini Y, Rajabi AA.  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  magnetic nanoparticles modified with sodium dodecyl sulfate for removal of safranin O dye from aqueous solutions. *Desalination* 2011; 270(1): 160-5.
19. Aravindhan R, Fathima NN, Rao JR, Nair BU. Equilibrium and thermodynamic studies on the removal of basic black dye using calcium alginate beads. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp* 2007; 299(1): 232-8.
20. Galangash MM, Kolkasaraei ZN, Ghavidast A, Shirzad-Siboni M. Facile synthesis of methyl propylaminopropanoate functionalized magnetic nanoparticles for removal of acid red 114 from aqueous solution. *RSC Advances* 2016; 6(114): 113492-502.
21. Zarabi M, Rahmani AR, Samarghandi MR, Barjasteh Askary F. Investigation the zero-valent iron (ZVI) performance in the presence of uv light and hydrogen peroxide on removal of azo dyes acid orange 7 and reactive black 5 from aquatic solutions. *Iran J Health Environ* 2013; 5(4): 469-78. [In Persian].
22. Begum HA, Mondal AK, Muslim T. Adsorptive removal of reactive black 5 from aqueous solution using chitin prepared from shrimp shells. *Bangladesh Pharmaceutical Journal* 2012; 15(2): 145-52.
23. Zhou L, Jin J, Liu Z, Liang X, Shang C. Adsorption of acid dyes from aqueous solutions by the ethylenediamine-modified magnetic chitosan nanoparticles. *J Hazard Mater* 2011; 185(2-3): 1045-52.
24. Cardoso NF, Lima EC, Calvete T, Pinto IS, Amavisca CV, Fernandes TH, et al. Application of acai stalks as biosorbents for the removal of the dyes reactive black 5 and reactive orange 16 from aqueous solution. *J Chem Eng Data* 2011; 56(5): 1857-68.
25. Gautam RK, Rawat V, Banerjee S, Sanroman MA, Soni S, Singh SK, et al. Synthesis of bimetallic  $\text{FeZn}$  nanoparticles and its application towards adsorptive removal of carcinogenic dye malachite green and Congo red in water. *J Mol Liq* 2015; 212: 227-36.

26. Eren Z, Acar FN. Adsorption of Reactive Black 5 from an aqueous solution: Equilibrium and kinetic studies. Desalination 2006; 194(1): 1-10.
27. Saygi B, Tekin D. Photocatalytic degradation kinetics of Reactive Black 5 (RB5) dyestuff on TiO<sub>2</sub> modified by pretreatment with ultrasound energy. Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis 2013; 110(1): 251-8.
28. Ozcan AS, Erdem M. Adsorption of Reactive Black 5 onto quaternized 2-dimethylaminoethyl methacrylate based polymer/clay nanocomposites. Adsorption 2016; 22(4-6): 767-76.
29. Xu Z, Li W, Xiong Z, Fang J, Li Y, Wang Q. Removal of anionic dyes from aqueous solution by adsorption onto amino-functionalized magnetic nanoadsorbent. Desalination and Water Treatment 2016; 57(15): 7054-65.

**Investigation of the Efficiency of Silica-Ester Magnetic Nanoparticles ( $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ -MPAP) for the Removal of Anionic Dye from Aqueous Solutions: Kinetic, Isotherm, and Thermodynamic Studies**

**Mohsen Mohammadi-Galangash<sup>1</sup>, Zahra Bozorgpanah-Kharat<sup>2</sup>, Ali Mohammad Sanati<sup>3</sup>**

**Original Article**

**Abstract**

**Background:** Removal of reactive azo dyes has been recognized as one of the major problems in textile wastewater treatment process. In recent years, the use of nanoparticles has been highly considered for the removal and reduction of contaminants in aquatic environments. In this survey, after synthesis of magnetic nanoparticles with a functional group of ester ( $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ -MPAP silica-ester nanoparticles), their efficiency to remove the Reactive Black 5 (RB-5) dye from aqueous solutions was investigated.

**Methods:** The synthesis of magnetic silica-ester nanoparticles was carried out with co-precipitation method in alkaline conditions. Transmission electron microscopy (TEM) analysis was used to identify the nanoparticle size. The effect of independent variables of pH, initial concentration of dye, and amount of nanoparticles on dye removal efficiency were evaluated. Kinetic, isotherm, and thermodynamic analysis were implemented to determine the mechanism and rate of absorption. Finally, the efficiency of recycled nanoparticles to remove the RB-5 dye was investigated.

**Findings:** 100% of the dye was removed at pH of 2, dye concentration of 20 mg/l, and silica-ester nano-absorbent concentration of 0.3 g/l during 80 minutes. Kinetic studies of RB-5 removal in the optimal conditions demonstrated that the pseudo-second-order equation kinetic model corresponded to the adsorption process, and also represented the chemical absorption procedure. The absorption equilibrium data were in good agreement with the Langmuir isotherm model. Thermodynamic studies showed that the process of dye absorption was feasible, spontaneous, and endothermic. The synthesized nano-adsorbents had a five-fold suitable recycle efficiency.

**Conclusion:** The silica-ester nanoparticles are effective in removing RB-5 dye from aqueous solutions, and these nanoparticles, due to proper recycling capability and chemical stretcher, can be noticed as an active absorbent for other anionic dyes.

**Keywords:** Dyes, Esters, Silicon dioxide, Water pollutions, Magnetite nanoparticles

**Citation:** Mohammadi-Galangash M, Bozorgpanah-Kharat Z, Sanati AM. **Investigation of the Efficiency of Silica-Ester Magnetic Nanoparticles ( $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2$ -MPAP) for the Removal of Anionic Dye from Aqueous Solutions: Kinetic, Isotherm, and Thermodynamic Studies.** J Health Syst Res 2018; 14(3): 410-8.

1- Associate Professor, Department of Environmental Science and Engineering, School of Natural Resources, University of Guilan, Sowme'eh Sara, Iran

2- Department of Environmental Science and Engineering, School of Natural Resources, University of Guilan, Sowme'eh Sara, Iran

3- Assistant Professor, Department of Environmental Science, Persian Gulf Research Institute, Persian Gulf University, Bushehr, Iran

**Corresponding Author:** Mohsen Mohammadi-Galangash, Email: m\_mohammadi@gilan.ac.ir