مجله دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی
پاییز ۱۳۹۱؛۴(۳):۳۴۶-۳۳۵

Journal of North Khorasan University of Medical Sciences
Autumn 2012;4(3):335-346

مقاله پژوهشی

کاربرد نانوتیوبهای کربنی چند دیواره اکسید شده به عنوان یک جاذب نوین برای حذف رنگ اسید قرمز ۱۸ از محیط آبی

محمد شیرمردی[۱]، فاطمه خدا رحمی[۲]، محمد حیدری فارسانی[۲]، ابوالفضل نعیم آبادی[۳]، مهدی وثوقی نیری[۴]، جلیل جعفری[۴]*

[۱]دانشجوی دوره دکتری، گروه مهندسی وکمیته تحقیقات دانشجویی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور اهواز، اهواز، ایران
[۲]دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی وکمیته تحقیقات دانشجویی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور اهواز، اهواز، ایران
[۳]دانشجوی دوره دکتری، گروه مهندسی بهداشت محیط، عضو هیات علمی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی، بجنورد، ایران
[۴]دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران، تهران، ایران
[*]**نویسنده مسئول**: اهواز، دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور، دانشکده بهداشت، گروه مهندسی بهداشت محیط
پست الکترونیک: mohammadshirmardi@gmail.com

وصول:۱۳۹۱/۶/۲۳ اصلاح:۱۳۹۱/۸/۱۶ پذیرش:۱۳۹۱/۹/۷

چکیده

زمینه و اهداف: *رنگ‌های مصنوعی به طور گسترده در صنایع مختلفی مورد استفاده قرار می‌گیرند. تخلیه فاضلاب‌های رنگی به دلیل سمیت بالای این فاضلاب‌ها و تجمع احتمالی در محیط زیست مشکلات زیست محیطی جدی را پدید می‌آورد. مطالعه حاضر بر روی حذف رنگ آنیونی اسید قرمز ۱۸ (AR18) (Acid Red 18)از محیط‌های آبی توسط نانوتیوب‌های کربنی چند دیواره اکسید شده (o-MWCNT) ((oxidized multiwall carbon nanotubes به عنوان یک نوع جاذب متمرکز شده است.*

مواد و روش کار: *در این مطالعه تجربی تأثیر متغیرهای مختلفی مانند زمان تماس، pH محلول، مقدار ماده جاذب، غلظت اولیه رنگ بررسی شد. غلظت باقی‌مانده رنگ با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر UV/Vis در طول موج ۵۰۶ نانومتر قرائت شد. داده‌های جذب با استفاده از ایزوترم های لانگمویر، فروندلیچ و تمکین تجزیه و تحلیل شد.*

یافته‌ها: *نتایج این مطالعه نشان داد که با افزایش زمان تماس و مقدار ماده جاذب راندمان حذف رنگ افزایش یافت اما با افزایش pH محلول و غلظت اولیه رنگ راندمان حذف کاهش پیدا کرد. جذب رنگ اسید قرمز ۱۸ (AR18) از ایزوترم لانگمویر (R^2=۰/۹۹۵) تبعیت می‌کند.*

نتیجه گیری: *نتایج این مطالعه نشان داد نانوتیوب کربنی چند دیواره اکسید شده می‌تواند به عنوان یک جاذب موثر برای حذف رنگ‌ها مورد استفاده قرار گیرد.*

واژه‌های کلیدی: *نانو تیوب کربن، رنگ، جذب، ایزوترم، محیط آبی*

مقدمه

رنگ‌های مصنوعی به طور گسترده در صنایع مختلفی از قبیل نساجی، کاغذ، چرم، صنایع چاپ و لوازم آرایشی مورد استفاده قرار می‌گیرند. تخلیه فاضلاب‌های رنگی به دلیل سمیت بالای این فاضلاب‌ها و تجمع احتمالی در محیط زیست مشکلات زیست محیطی جدی را پدید می‌آورد. همچنین ساختار آروماتیکی پیچیده رنگ‌ها موجب پایداری بیشتر آن‌ها می‌شود و حذف آن‌ها از پساب‌های تخلیه شده به آب‌های پذیرنده را مشکل‌تر می‌کند [۲،۱]. رنگ‌های آزو یکی از مهم‌ترین گروه‌های رنگ‌های مصنوعی هستند که به دلیل قیمت پایین، حلالیت پذیری و پایداری بالا در بسیاری از صنایع نساجی استفاده می‌شوند[۳]. رنگ‌های آزو و فرآورده‌های واسطه‌ای آن‌ها برای زندگی آبزیان سمی، سرطان زا و

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

جهش زا می‌باشند [۴،۳]. بنابراین پساب‌های صنعتی حاوی رنگ نیازمند این هستند که قبل از تخلیه به محیط با یک روش مناسب تصفیه شوند [۵]. علاوه بر این اغلب این رنگ‌ها باعث آلرژی، درماتیت و خارش پوست می‌شوند، همچنین بروز سرطان و جهش زایی (موتاسیون) را در انسان‌ها تسریع می‌کنند [۷،۶]. از جمله روش‌های موجود برای حذف رنگ می‌توان به روش هضم هوازی و بی هوازی، انعقاد، اکسیداسیون پیشرفته، فرآیندهای ترکیبی شیمیایی و بیو شیمیایی، جذب سطحی و تصفیه غشایی اشاره کرد. هر کدام از این روش‌ها راندمان حذف، مزایا، معایب و هزینه‌های سرمایه گذاری و بهره برداری متفاوتی دارند. روش جذب سطحی بر حسب هزینه‌های اولیه، سادگی طراحی، راهبری آسان و ساده و عدم حساسیت به مواد سمی یک فرآیند موثر و جالب برای تصفیه فاضلاب است. علاوه بر این روش جذب سطحی می‌تواند یک پساب با کیفیت بسیار بالا تولید نماید که در این پساب مواد مضری مانند ازن و رادیکال‌های آزاد وجود ندارد [۸-۱۲]. کارایی جاذب‌های متعددی از قبیل کربن فعال [۱۳]، خاکستر تفاله نیشکر [۱۴]، خاکستر پوسته برنج [۱۵]، پوست نارگیل [۱۶]، کلرید منیزیم [۱۷] و کیتوزان [۱۸] برای حذف رنگ‌ها از فاضلاب مورد سنجش و آزمایش قرار گرفته است. از بین این مواد یا جاذب‌ها، کربن فعال پرکاربردترین جاذب برای کنترل آلودگی زیست محیطی می‌باشد. لانگ[1] و یانگ[2] [۱۹] گزارش دادند که نانوتیوب های کربنی چند دیواره برای حذف دی اکسین‌ها مؤثرتر از کربن فعال هستند، لذا با توجه به مطالعه آن‌ها نانو تیوب‌های کربن[3] (CNT_S) به عنوان جاذب‌های نوین و جدید توجه بسیاری از محققین را به خود جلب کرده است. مطابق با تعداد لایه‌های موجود، نانو تیوب‌های کربن به دو دسته کلی نانو تیوب‌های کربنی تک دیواره و نانو تیوب‌های کربنی چند دیواره تقسیم بندی می‌شوند. با توجه به ویژگی‌هایی مانند مساحت سطح ویژه نسبتاً بالا، اندازه کوچک، ساختار تو خالی منحصر به فرد، استحکام مکانیکی بالا و هدایت الکتریکی قابل توجه، CNT_S توانایی بالقوه بالایی به عنوان جاذب برای حذف انواع آلاینده‌های آلی و معدنی از آب و فاضلاب دارند [۲۰, ۲۱]. از این آلاینده‌ها می‌توان به فلزات سنگین، تری هالو متان[4] (THM_S)، فلوراید و رنگ‌ها اشاره کرد [۲۲-۲۵]. مطالعه حاضر بر روی حذف رنگ آنیونی اسید قرمز[5] ۱۸ (AR18) از محیط‌های آبی توسط نانو تیوب‌های کربنی چند دیواره اکسید شده[6] (o-MWCNT) متمرکز شده است. تأثیر متغیرهای مختلفی مانند زمان تماس، pH محلول، مقدار ماده جاذب و غلظت اولیه رنگ مورد ارزیابی قرار گرفت. ایزوترم‌های جذب نیز مورد بررسی و تجزیه و تحلیل قرار گرفتند.

روش کار

این مطالعه یک مطالعه بنیادی – کاربردی می‌باشد که در سیستم ناپیوسته در آزمایشگاه آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی تهران انجام گرفت. نانوتیوب های کربنی مورد استفاده در این مطالعه، نانوتیوب کربنی چند دیواره بودند. این نانو تیوب‌های کربنی توسط پژوهشگاه صنعت نفت ایران تولید شد و از آن سازمان خریداری گردید. طبق اطلاعات فراهم شده توسط پژوهشگاه صنعت نفت ایران، مساحت سطح ویژه و هدایت الکتریکی این CNT_S به ترتیب برابر با ۲۷۰ m^2/g و۱۵۰۰ s/m بود. قطر و طول این CNT_S به ترتیب در محدوده‌های ۱۰-۳۰nm و ۱۰µm قرار داشت. خلوص این CNT_S بیش از ۹۵٪ بود. برای حذف کربن ناخالص و کاتالیست‌های آهن ۲ گرم از نانو تیوب کربن خریداری شده به مدت ۲ ساعت در دمای اتاق در اسید نیتریک ۴ مولار غوطه‌ور شد، بعد از این مدت توسط آب دیونیزه شده چندین بار شستشو داده شد به طوری که در pH آب شستشو دهنده تغییری مشاهده نشد، سپس در دمای ۱۱۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲۴ ساعت در فور خشک گردید. CNTs تصفیه شده سپس با اسید نیتریک غلیظ به مدت ۲ ساعت در دمای ۱۲۰ درجه سانتی‌گراد مایع برگردان (رفلاکس[7]) شد، بعد از سرد شدن در دمای اتاق، این مخلوط با آب دیونیزه شده رقیق شد، از صافی ۰/۲۵

1. Long
2. Yang
3 .carbon nanotubes

4 . trihalomethanes
5 . Acid Red 18
6. Oxidized multiwall carbon nanotubes
7 .reflux

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

میکرون عبور داده شد و فرایند شستشو دادن تا زمانی که در pH آب شستشو دهنده تغییری مشاهده نشد ادامه یافت، و در نهایت در دمای ۱۱۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲۴ ساعت در فور خشک گردید و از آن برای انجام آزمایشات استفاده شد. رنگ‌هایی که حاوی گروه‌های (-N=N-) هستند به عنوان رنگ‌های آرزو شناخته شده هستند. از آنجایی که اسید قرمز ۱۸ (AR18) یک گروه آزو دارد برای این مطالعه انتخاب گردید و از شرکت الوان ثابت (همدان، ایران) خریداری شد و بدون تصفیه بعدی مورد استفاده قرار گرفت. فرمول شیمیایی، وزن مولکولی و حداکثر طول موج جذب برای رنگ اسید قرمز ۱۸ به ترتیب $C_{20}H_{11}N_2Na_3O_{10}S_3$، ۶۰۴/۴۷ g/mol و nm ۵۰۶ می‌باشد. محلول استوک از طریق وزن کردن و حل نمودن مقادیر مورد نیاز رنگ اسید قرمز ۱۸ در آب مقطر آماده شد. از این محلول استوک برای ساخت محلول‌های رنگ با غلظت‌های مختلف رنگ استفاده شد. جذب این محلول‌ها توسط دستگاه اسپکتروفتومتر UV/vis قرائت گردید. بعد از قرائت جذب منحنی کالیبراسیون برای تعیین غلظت رنگ هر یک از آزمایشات رسم گردید. سایر مواد شیمیایی مورد استفاده در این مطالعه دارای خلوص آزمایشگاهی بودند.

آزمایشات جذب در محیط بسته و با استفاده از ارلن‌های در بسته به حجم ۲۵۰ میلی لیتر که حاوی ۱۰۰ میلی لیتر محلول رنگی بود انجام شد. این ارلن‌ها در دستگاه همزن[1] قرار داده شدند و در دور ۱۷۵rpm اختلاط صورت گرفت. pH اولیه محلول‌های رنگی با استفاده از HCL و NaOH، ۱ نرمال تنظیم شد. در این مطالعه پارامترهایی مانند زمان تماس، pH محلول، مقدار ماده جاذب و غلظت اولیه رنگ مورد بررسی قرار گرفت. با افزودن ۰/۰۲ گرم از o-MWCWT به ۱۰۰ml محلول رنگی با غلظت‌های اولیه متفاوت تأثیر زمان تماس بررسی شد. در فواصل زمانی مشخص (۵، ۱۵، ۳۰، ۴۵، ۶۰، ۷۵، ۹۰، ۱۰۵، ۱۲۰، ۱۵۰، ۱۸۰، ۲۴۰) از این محلول‌های رنگی نمونه برداری صورت گرفت و این نمونه‌ها آنالیز شدند. برای تعیین اثر pH بر روی فرآیند جذب رنگ محدوده‌های مختلفی از pH (۳، ۵، ۷ و ۹) مورد بررسی قرار گرفت. برای تعیین اثر مقدار ماده جاذب، مقادیر مختلفی از جاذب (۰/۲، ۰/۴ و ۰/۶ گرم در لیتر) به غلظت‌های مختلفی از محلول رنگ اسید قرمز ۱۸در pH حدود ۳ اضافه شد. برای مطالعه و بررسی اثر غلظت اولیه رنگ AR18 بر روی فرآیند جذب ۱۰۰ml از محلول رنگی با غلظت‌های رنگ متفاوت (۲۵، ۵۰، ۷۵ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر) تهیه گردید در مقدار pH برابر با ۳ مقادیر متفاوتی از ماده جاذب به محلول‌های رنگی افزوده شد و تأثیر غلظت اولیه رنگ مورد مطالعه قرار گرفت. در پایان زمان تعادل برای جداسازی جاذب از محلول‌های رنگی این محلول‌ها ابتدا در دور ۴۰۰۰rpm و به مدت ۱۰ دقیقه سانتریفوژ شدند سپس از صافی با قطر منافذ حدود ۰/۲۵µm عبور داده شدند. غلظت باقی‌مانده رنگ AR18 با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر UV/Vis (perkin-Elmer, Lambda25,USA) در حداکثر طول موج جذب برابر با ۵۰۶nm قرائت و مورد سنجش قرار گرفت [۴, ۲۶]. درصد حذف رنگ، مقدار رنگ جذب شده در زمان t (q_t, mg/g) و در زمان تعادل (q_e,mg/g) به ترتیب با استفاده از معادلات زیر محاسبه شدند.

معادله (۱)

$$\text{درصد حذف رنگ} = \frac{(C_o - C_e)}{C_o} \times 100$$

معادله (۲)

$$q_t = \frac{(C_o - C_t) \times V}{M}$$

معادله (۳)

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

که در این معادلات C_o و C_e (mg/l) به ترتیب غلظت اولیه و غلظت تعادلی رنگ اسید قرمز ۱۸ می‌باشند. M بر حسب (g) مقدار وزن ماده جاذب می‌باشد و V بر حسب (L)حجم محلول، C_t غلظت رنگ در زمان t و q_t بر حسب (mg/g) مقدار رنگ جذب شده بر روی جاذب در هر زمان است.

جهت رسم نمودارها و تجزیه و تحلیل آن‌ها از نرم افزار Microsoft office excel 2007 استفاده شد.

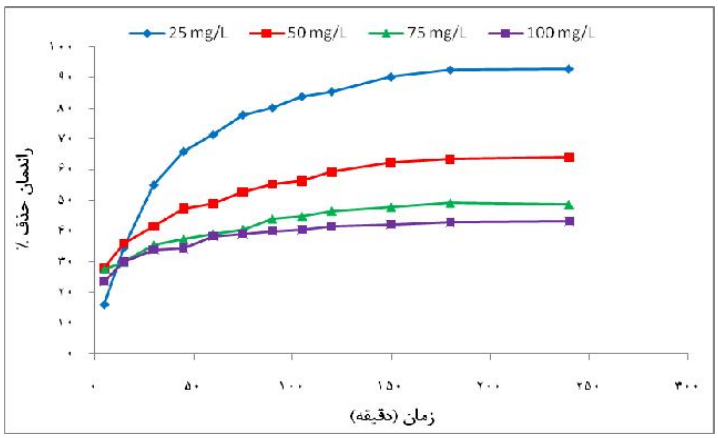
1 .shaker

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

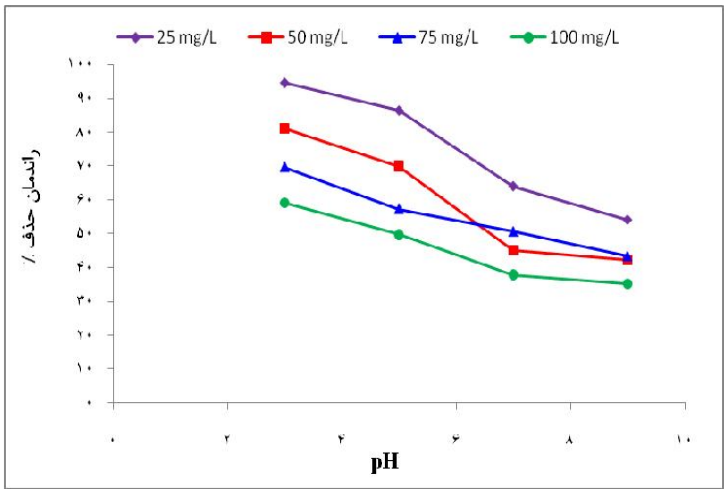
یافته‌ها

تأثیر زمان تعادل: تأثیر زمان تعادل بر روی جذب رنگ اسید قرمز ۱۸ (AR18) توسط o-MWCNT برای غلظت‌های مختلف رنگ در شکل ۱ نشان داده شده است. با افزایش زمان تعادل مقدار رنگ جذب شده بر روی o-MWCNT در هر زمان افزایش پیدا کرده است. نتایج نشان می‌دهد جذب AR18 در مراحل ابتدایی بسیار سریع است سپس کاهش می‌یابد و در نهایت در زمان حدود ۱۵۰ دقیقه به تعادل می‌رسد.

تأثیر pH محلول: تأثیر pH محلول بر روی حذف AR18 توسط جاذب o-MWCNT برای مقادیر مختلف pH در غلظت‌های مختلف رنگ بررسی و مطالعه شد در این آزمایشات مقدار ماده جاذب، زمان تماس و دما ثابت بود و مقادیر آن‌ها به ترتیب ۰/۰۴ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر، ۱۵۰ دقیقه و ۲۵ درجه سانتی‌گراد بود. تأثیر pH بر روی حذف AR18 در شکل ۲ نمایش داده شده است. همان‌طور که در شکل ۲ نشان داده شده است راندمان حذف رنگ برای همه غلظت‌های رنگ زمانی که pH از ۳ به ۹ افزایش یافت



شکل ۱: تأثیر زمان تماس بر جذب رنگ AR18 توسط o-MWCNT در غلظت‌های مختلف رنگ (شرایط: مقدار ماده جاذب ۰/۰۲ گرم، دما ۲۵ °C، pH= ۵)



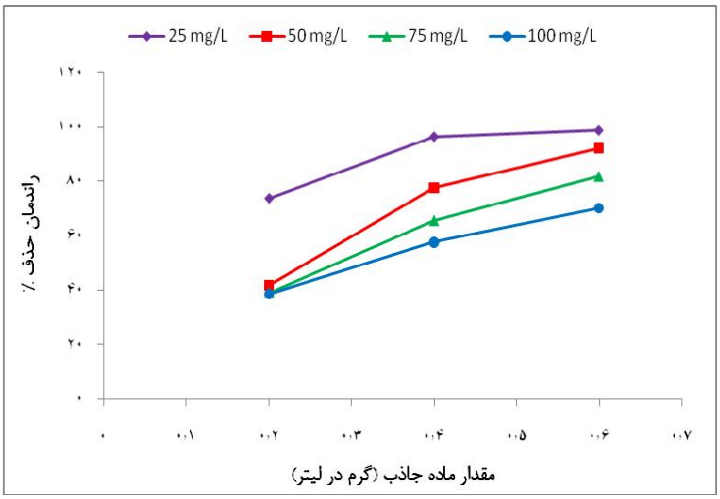
شکل ۲: تأثیر pH بر جذب رنگ AR18 توسط o-MWCNT در غلظت‌های مختلف رنگ (شرایط: مقدار ماده جاذب ۰/۰۴ گرم، دما ۲۵ °C)

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

کاهش پیدا کرد که این نشان دهنده این است که pH به طور قابل توجهی بر روی درصد حذف رنگ خصوصاً تحت شرایط اسیدی اثرگذار است. برای غلظت اولیه رنگ حدود ۲۵ میلی‌گرم بر لیتر زمانی که pH از ۳ به ۹ افزایش یافت راندمان حذف رنگ AR18 از ۹۴ درصد به ۵۵ درصد کاهش پیدا کرد؛ بنابراین pH =۳ به عنوان pH بهینه برای سایر آزمایشات انتخاب شد.

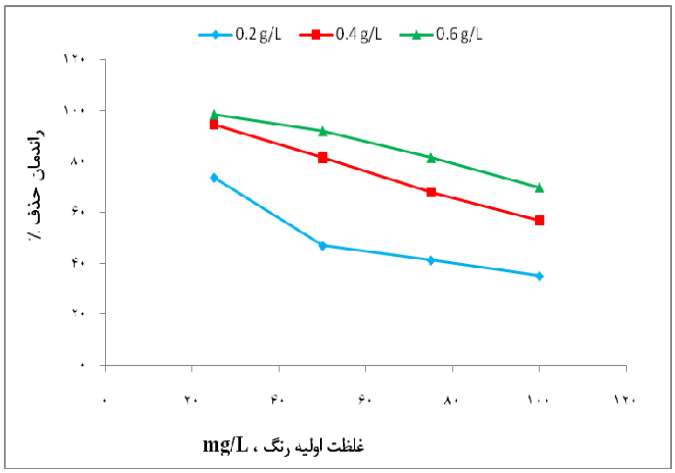
تأثیر مقدار ماده جاذب: تأثیر مقدار ماده جاذب بر روی حذف رنگ AR18 برای غلظت‌های اولیه رنگ ۲۵، ۵۰، ۷۵ و ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر بررسی و مطالعه گردید. شکل شماره ۳ حذف رنگ را به عنوان تابعی از مقدار o-MWCNT نشان می‌دهد. همان‌طور که در شکل ۳ نشان داده شده است برای غلظت اولیه رنگ ۲۵ میلی‌گرم بر لیتر زمانی که مقدار ماده جاذب (o-MWCNT) از ۰/۰۲ گرم به ۰/۰۶ گرم افزایش یافت درصد راندمان حذف از ۷۳ درصد به ۹۸ درصد افزایش پیدا کرد.

تأثیر غلظت اولیه رنگ: شکل ۴ تأثیر غلظت اولیه رنگ AR18 بر روی راندمان حذف رنگ توسط o-MWCNT را نشان می‌دهد. از این شکل می‌توان دریافت که با افزایش غلظت اولیه رنگ درصد راندمان حذف رنگ کاهش می‌یابد هرچند که مقدار واقعی رنگ جذب شده به ازای واحد جرم o-MWCNT با افزایش غلظت اولیه رنگ افزایش یافت. همان‌طور که غلظت اولیه رنگ از ۲۵ میلی‌گرم بر لیتر به ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر افزایش یافت درصد راندمان حذف از ۹۹ به ۷۰ درصد کاهش پیدا کرد. در حالی که مقدار AR18 جذب شده در حالت تعادل از ۴۱ mg/g به ۱۱۶ mg/g افزایش یافت. در این آزمایشات مقدار ماده جاذب حدود ۰/۰۶ گرم و ثابت بود.



شکل ۳: تأثیر مقدار ماده جاذب بر جذب رنگ AR18 توسط o-MWCNT در غلظت‌های مختلف رنگ (شرایط: دما ۲۵°C، pH= ۳)

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]



شکل ۴: تأثیر غلظت اولیه رنگ بر جذب رنگ AR18 توسط o-MWCNT در مقادیر مختلف ماده جاذب (شرایط: مقدار ماده جاذب ۰/۰۶ گرم، دما ۲۵°C، pH= ۳)

ایزوترم‌های جذب: ایزوترم‌های جذب بسیار حائز اهمیت هستند و مشخص می‌کنند که ماده جذب شونده چگونه با جاذب فعل و انفعال نشان می‌دهد و اساساً برای توصیف اینکه چگونه مولکول‌های جذب بین فاز مایع و فاز جامد توزیع می‌شوند زمانی که فرآیند جذب به حالت تعادل می‌رسد؛ و اطلاعات مهم و با ارزشی برای بهینه کردن طراحی سیستم جذب به ما می‌دهد [۲۷, ۲۸].

ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیچ و تمکین برای توصیف جذب AR18 از محیط‌های آبی توسط o-MWCNT استفاده شد.

ایزوترم لانگمویر: ایزوترم جذب لانگمویر پرکاربردترین ایزوترم جذب است که برای جذب ماده محلول از محیط‌های آبی استفاده شده است. این ایزوترم مبتنی بر فرض جذب تک لایه بر روی یک جاذب با ساختار همگن است که همه محل‌های جذب یکسان و به لحاظ انرژی با هم برابر هستند [۵]. جذب تک لایه اشباع توسط معادله زیر بیان می‌شود.

معادله (۴)
$$q_e = \frac{q_m K C_e}{1 + K C_e}$$

شکل خطی معادله لانگمویر به صورت زیر است.

معادله (۵)
$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{Kq_m} + \frac{C_e}{q_m}$$

که در این معادلات q_e مقدار رنگ جذب شده به ازای گرم o-MWCNTs (mg/g)، C_e : غلظت تعادلی رنگ در محلول (mg/L)، K ثابت لانگمویر (L/mg)، q_m ظرفیت اشباع تئوریکی جذب تک لایه (mg/g) است. مقادیر K و q_m از شکل خطی معادله ۵ با رسم C_e/q_e در مقابل C_e محاسبه می‌شوند.

ایزوترم فروندلیچ: ایزوترم فروندلیچ یک معادله تجربی است و مرتبط با سطوح ناهمگن جاذب است. معادله جذب فروندلیچ به صورت زیر بیان می‌شود [۲۲, ۲۹].

معادله (۶)
$$q_e = k_f C^{1/n}$$

شکل خطی معادله فروندلیچ به صورت زیر است.

معادله (۷)
$$\log q_e = \log(k_f) + \frac{1}{n}\log(C_e)$$

که در این معادلات q_e مقدار رنگ جذب شده به ازای واحد جرم جاذب (mg/g)، C_e غلظت AR18 در محلول در حالت تعادل است (mg/L)، K_f و n ثابت‌های فروندلیچ هستند که متناسب با ظرفیت جذب و شدت جذب جاذب هستند و از نمودار لگاریتمی q_e در مقابل C_e محاسبه می‌شوند.

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

ایزوترم تمکین: ایزوترم تمکین [۳۰،۵] شامل یک فاکتوری است که صریحاً فعل و انفعالات بین جاذب-جذب شونده را مدنظر قرار می‌دهد. معادله تمکین به صورت زیر است:

معادله (۸) $$q_e = B_1 \ln(k_t C_e)$$

شکل خطی ایزوترم تمکین به صورت زیر بیان می‌شود.

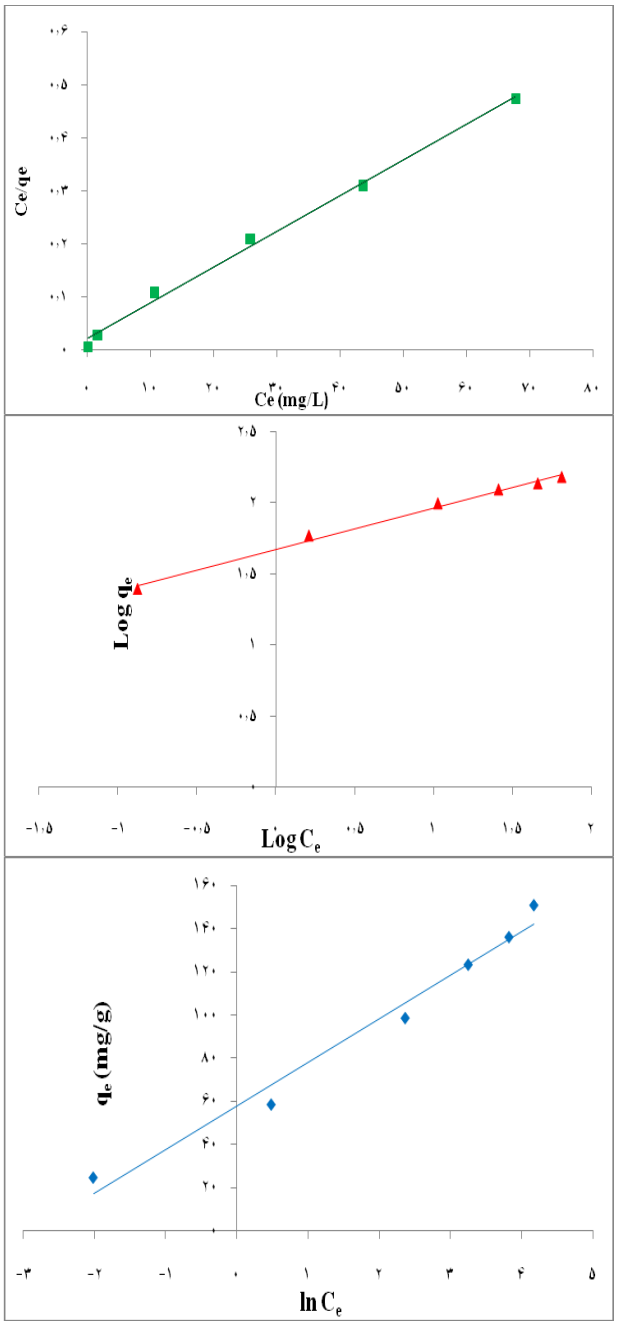
معادله (۹) $$q_e = B_1 \ln k_t + B_1 \ln C_e$$

که $B_1=RT/b$ و k_t ثابت هستند، R ثابت گاز است (۸/۳۱ j/mol k) و T(k) دمای مطلق است. k_t ثابت پیوند تعادلی است (L/mg) و مرتبط با حداکثر انرژی پیوندی است و B_1 مرتبط با گرمای جذب است. ثابت‌های ایزوترم (B_1 , k_t) از شیب و عرض از مبدأ نمودار q_e در مقابل LnC_e بدست می‌آیند. ثابت‌های ایزوترم برای همه ایزوترم‌های ذکر شده در بالا از شکل خطی هر ایزوترم برای غلظت‌های مختلف رنگ محاسبه شدند. پارامترهای هر سه ایزوترم و ضرایب همبستگی آن‌ها در جدول ۱ آورده شده است. شکل شماره ۵ ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیچ و تمکین را برای رنگ AR18 نشان می‌دهد.

جدول ۱: پارامترهای ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیچ و تمکین

مدل ایزوترم	*پارامتر*	*مقدار*
لانگمویر	q_m (mg/g)	۱۶۷
	k (L/mg)	۰/۳
	R^2	۰/۹۹۵
فروندلیچ	K_F (mg/g (L/mg)1/n)	۴۷/۰۹۸
	n	۳/۴۸
	R^2	۰/۹۸۹
تمکین	B	۱۹/۹۲
	k_t	۲/۹
	R^2	۰/۹۷۹

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]



شکل ۵: نمودار ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیچ و تمکین برای حذف رنگ AR18 (شرایط: غلظت رنگ: ۱۰، ۲۵، ۵۰، ۷۵، ۱۰۰ و ۱۲۰ میلی گرم بر لیتر، مقدار ماده جاذب: ۰/۰۴ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر، زمان تماس: ۲۴ ساعت)

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

بحث

در شکل ۱ مشاهده می‌شود که راندمان حذف رنگ با افزایش زمان تماس برای همه غلظت‌های رنگ AR18 افزایش پیدا کرد. این مشاهدات نشان می‌دهد غلظت اولیه رنگ بر روی زمان لازم برای رسیدن به حالت تعادل تأثیری ندارد. میزان جذب سریع و بالا در مراحل اولیه احتمالاً به دلیل وجود محل‌های خالی بسیار بر روی سطح جاذب است، با گذشت زمان این محل‌ها به طور تدریجی توسط مولکول‌های رنگ اشغال می‌گردد و میزان جذب رنگ کاهش پیدا می‌کند. با افزایش زمان به دلیل افزایش نیروهای دافعه بین مولکول‌های رنگ اشغال محل‌های باقی‌مانده خالی بسیار مشکل می‌گردد [۳۲،۳۱]. در مطالعه‌ای که توسط شکوهی و همکاران [۴] در سال ۲۰۱۰ بر روی حذف رنگ اسید قرمز ۱۸ با استفاده از کربن فعال تهیه شده از چوب صنوبر انجام گرفت حذف رنگ اسید قرمز ۱۸ در زمان ۱۲۰ دقیقه به تعادل رسید. در مطالعه دیگری که توسط شهریاری و همکاران [۳۳] در سال ۲۰۱۰ بر روی حذف رنگ متیلن بلو از محیط‌های آبی با استفاده از نانو تیوب‌های کربنی چند دیواره انجام شد، زمان تعادل برای حذف رنگ ۱۲۰ دقیقه گزارش شد. ندافی و همکاران زمان تعادل برای حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۲۰ از محیط‌های آبی با استفاده از نانو آلومینا را ۱۵۰ دقیقه گزارش کردند [۳۴]. یکی از مهم‌ترین پارامترها که بر روی جذب مولکول‌های رنگ اثرگذار است pH محلول می‌باشد. رنگ AR18 در محلول‌های آبی دارای بار منفی است پس حذف این رنگ زمانی اتفاق می‌افتد که جاذب‌های مورد استفاده برای حذف آن دارای بار سطحی مثبت باشند [۴]. شرایط اسیدی جذب الکترواستاتیکی بین رنگ آنیونی (AR18) و جاذب o-MWCNT که نسبتاً دارای بار سطحی مثبت است را افزایش می‌دهد، با افزایش مقدار pH (شرایط بازی) تعداد محل‌های با بار مثبت بر روی سطح جاذب کاهش می‌یابد و تعداد محل‌های با بار منفی افزایش پیدا می‌کند که این خود سبب کاهش حذف رنگ می‌شود [۳۵, ۳۶]. نتایج مشابهی در دیگر مطالعات انجام شده یافت شد. به طور مثال در مطالعه‌ای که توسط میشرا[1] و همکاران [۲] بر روی حذف رنگ‌های آزو در سال ۲۰۱۰ انجام گرفت، مقدار pH بهینه برای حذف رنگ‌های قرمز مستقیم کنگو و سبز راکتیو به ترتیب برابر با ۳ و ۵ بود. همچنین سیواراج[2] و همکاران [۳۷] گزارش دادند حداکثر حذف رنگ اسید بنفش ۱۷ در pH حدود ۲ اتفاق افتاد. یکی دیگر از مهم‌ترین پارامترهای تأثیر گذار بر فرایند جذب مقدار ماده جاذب می‌باشد در این مطالعه با افزایش مقدار ماده جاذب از ۰/۰۲ گرم به ۰/۰۶ گرم در ۱۰۰ میلی لیتر راندمان حذف رنگ افزایش یافت. افزایش درصد راندمان حذف رنگ در نتیجه افزایش مقدار ماده جاذب این‌گونه توجیه می‌شود که با افزایش مقدار ماده جاذب، مساحت سطح بیشتری موجود است که این افزایش سطح جاذب منجر به افزایش راندمان حذف رنگ می‌گردد [۵]. نتایج مشابهی در مطالعات قبلی یافت شد. احرامپوش و همکاران [۳۸] که از پوسته تخم‌مرغ برای حذف رنگ راکتیو قرمز ۱۲۳ استفاده کردند پیشنهاد کردند که با افزایش مقدار ES[3] در محلول آبی حذف آلاینده افزایش می‌یابد اما این افزایش مقدار ES منجر به کاهش رنگ جذب شده به ازای واحد جرم جاذب (q_e) می‌شود. نتایج مشابهی همچنین برای پوست میوه کاج برزیلی توسط ادر سی لیما[4] و همکاران [۳۹] و برای کربن فعال تهیه شده از زائدات کشاورزی توسط سنتیل کومار[5] و همکاران [۴۰] حاصل شد. غلظت رنگ یکی دیگر از متغیرهایی است که می‌تواند بر روی فرآیند حذف رنگ اثرگذار باشد. با افزایش غلظت اولیه رنگ راندمان حذف رنگ توسط جاذب کاهش یافت که این کاهش راندمان حذف به دلیل اشباع شدن محل‌های خالی بر روی سطح جاذب در غلظت‌های بالاتر رنگ است. اما در غلظت‌های بالاتر رنگ مقدار رنگ جذب شده به ازای واحد جرم جاذب (q_e) افزایش یافت که این افزایش به علت افزایش نیروی پیش برنده[6] برای غلظت‌های بالاتر رنگ است [۴۱]. نتایج مشابهی در مطالعات قبلی گزارش شده است [۳۱, ۳۵]. بر اساس ضریب همبستگی (R^2) (جدول ۱) واضح و روشن است که جذب AR18 بر روی

1. Mishra

2 .Sivaraj
3.Egg shell
4.Eder C Lima
5. Senthilkumaar
6 .driving force

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

o-MWCNT در مقایسه با دو ایزوترم دیگر بیشتر از ایزوترم لانگمویر تبعیت می‌کند که نمایانگر جذب تک لایه است. حداکثر ظرفیت جذب محاسبه شده از ایزوترم لانگمویر حدود ۱۶۷ میلی‌گرم بر گرم است. در مطالعه انجام شده بر روی حذف رنگ راکتیو قرمز (پروکئون قرمز MX-5B) توسط نانو تیوب‌های کربنی چند دیواره، حذف رنگ از ایزوترم لانگمویر تبعیت می‌کرد و حداکثر ظرفیت جذب محاسبه شده برای حذف آن رنگ در ۶/۵ =pH برابر با ۴۲/۹۲ بود [۲۲]. همچنین آنادورای[1] و همکاران [۴۲] گزارش دادند که جذب رنگ ریمازول سیاه ۱۳ توسط کیتوزان از ایزوترم لانگمویر با حداکثر جذب ۱۱۹/۰۴ میلی گرم بر گرم تبعیت می‌کند.

نتیجه گیری

با استفاده از روش بسته حذف رنگ اسید قرمز ۱۸ از محیط آبی توسط نانوتیوب کربنی چند دیواره اکسید شده انجام گرفت. تأثیر متغیرهایی مانند زمان تماس، pH محلول، مقدار ماده جاذب و غلظت اولیه رنگ بررسی شد. نتایج این مطالعه نشان داد برای همه غلظت‌های اولیه رنگ فرایند جذب در زمان ۱۵۰ دقیقه به تعادل رسید. حداکثر راندمان حذف رنگ در pH=۳ مشاهده شد. با افزایش غلظت اولیه رنگ و pH محلول راندمان حذف کاهش یافت. حذف رنگ اسید قرمز ۱۸ از ایزوترم لانگمویر تبعیت می‌نمود.

References

1. Yao Y, Xu F, Chen M, Xu Z, Zhu Z, Adsorption behavior of methylene blue on carbon nanotubes, Bioresour Technol 2010;101(9):3040-3046.
2. Mishra AK, Arockiadoss T, Ramaprabhu S, Study of removal of azo dye by functionalized multi walled carbon nanotubes, Chem Eng J 2010;162(3):1026-1034.
3. Shirmardi M, Mesdaghinia A, Mahvi AH, Nasseri S, Nabizadeh R, Kinetics and Equilibrium Studies on Adsorption of Acid Red 18 (Azo-Dye) Using Multiwall Carbon Nanotubes (MWCNTs) from Aqueous Solution, E-Journal of Chemistry 2012;9(4):2371-2383[Persian]
4. Shokoohi R, Vatanpoor V, Zarrabi M, Vatani A, Adsorption of Acid Red 18 (AR18) by Activated Carbon from Poplar Wood- a Kinetic and Equilibrium study, E J Chem 2010;7(1): 65-72[Persian]
5. Kuo C-Y, Wu C-H, Wu J-Y, Adsorption of direct dyes from aqueous solutions by carbon nanotubes: Determination of equilibrium, kinetics and thermodynamics parameters, J Colloid Interface Sci 2008;327(2):308-315.
6. Royer B, Cardoso NF, Lima EC, Vaghetti JCP, Simon NM, Calvete T, “et al”, Applications of Brazilian pine-fruit shell in natural and carbonized forms as adsorbents to removal of methylene blue from aqueous solutions: Kinetic and equilibrium study , J Hazard Mater 2009;164:1213–1222.
7. Brookstein DS, Factors associated with textile pattern dermatitis caused by contact allergy to dyes, finishes, foams and preservatives, Dermatol Clin 2009;27:309–322.
8. Amin NK, Removal of direct blue-106 dye from aqueous solution using new activated carbons developed from pomegranate peel: Adsorption equilibrium and kinetics, J Hazard Mater 2009;165(1-3):52-62.
9. Iram M, Guo C, Guan Y, Ishfaq A, Liu H, Adsorption and magnetic removal of neutral red dye from aqueous solution using Fe3O4 hollow nanospheres, JHazard Mater 2010;181(1-3):1039-1050.
10.Moussavi G, Mahmoudi M, Removal of azo and anthraquinone reactive dyes from industrial wastewaters using MgO nanoparticles, J Hazard Mater 2009;168(2-3):806-812[Persian]
11.Mahvi AH, Ghanbarian M, Nasseri S, Khairi A, Mineralization and discoloration of textile wastewater by TiO2 nanoparticles , Desalination 2009;239(1-3):309-316[Persian]
12.Jeni J, Kanmani S, solar nanophotocatalytic decolorization of reactive dyes using titanium dioxide, Iran J Environ Health Sci Eng 2011;8(1):15-24. .
13.Gómez V, Larrechi MS, Callao MP, Kinetic and adsorption study of acid dye removal using activated carbon, Chemosphere 2007;69(7):1151-1158.
14.Mall ID, Srivastava VC, Agarwal NK, Mishra IM, Adsorptive removal of malachite green dye from aqueous solution by bagasse fly ash and activated carbon-kinetic study and equilibrium isotherm analyses, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 2005;264(1–3):17-28.

1-Annadurai

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

15.Mane VS, Deo Mall I, Chandra Srivastava V, Kinetic and equilibrium isotherm studies for the adsorptive removal of Brilliant Green dye from aqueous solution by rice husk ash, J EnvironManage 2007;84(4):390-400.
16.Vieira AP, Santana SAA, Bezerra CWB, Silva HAS, Chaves JAP, Melo JCP, "et al", Removal of textile dyes from aqueous solution by babassu coconut epicarp (Orbignya speciosa), Chem Eng J,In Press, Corrected Proof.
17.Gao B-Y, Yue Q-Y, Wang Y, Zhou W-Z, Color removal from dye-containing wastewater by magnesium chloride, J Environ Manage 2007;82(2):167-172.
18.Momenzadeh H, Tehrani-Bagha AR, Khosravi A, Gharanjig K, Holmberg K, Reactive dye removal from wastewater using a chitosan nanodispersion, Desalination 2011;271(1-3):225-230[Persian]
19.Long RQ, Yang RT, Carbon nanotubes as superior sorbent for dioxin removal , J Am Chem Soc 2001;123:2058–2059.
20.Chen G-C, Shan X-Q, Zhou Y-Q, Shen X-e, Huang H-L, Khan SU, Adsorption kinetics, isotherms and thermodynamics of atrazine on surface oxidized multiwalled carbon nanotubes, J Hazard Mater 2009;169(1-3):912-918.
21.Gong J-L, Wang B, Zeng G-M, Yang C-P, Niu C-G, Niu Q-Y," et al", Removal of cationic dyes from aqueous solution using magnetic multi-wall carbon nanotube nanocomposite as adsorbent, J Hazard Mater 2009;164(2-3):1517-1522.
22.Wu C-H, Adsorption of reactive dye onto carbon nanotubes: Equilibrium, kinetics and thermodynamics, J Hazard Mater 2007;144(1-2):93-100.
23.23. Li Y-H, Wang S, Zhang X, Wei J, Xu C, Luan Z, "et al", Adsorption of fluoride from water by aligned carbon nanotubes, Mater Res Bull 2003;38(3):469-476.
24.Peng X, Luan Z, Di Z, Zhang Z, Zhu C, Carbon nanotubes-iron oxides magnetic composites as adsorbent for removal of Pb(II) and Cu(II) from water Carbon 2005 43:880–883.
25.Di Z-C, Ding J, Peng X-J, Li Y-H, Luan Z-K, Liang J, Chromium adsorption by aligned carbon nanotubes supported ceria nanoparticles, Chemosphere 2006;62(5):861-865.
26.K. Barbusiński, Majewski J, Discoloration of Azo Dye Acid Red 18 by Fenton Reagent in the Presence of Iron Powder, Polish Journal of Environmental Studies 2003;12(2):151-155.
27.Mahmoodi NM, Hayati B, Arami M, Kinetic, equilibrium and thermodynamic studies of ternary system dye removal using a biopolymer, Ind Crop Prod 2012;35(1):295-301[Persian]
28.Mahmoodi NM, Hayati B, Arami M, Lan C, Adsorption of textile dyes on Pine Cone from colored wastewater: Kinetic, equilibrium and thermodynamic studies, Desalination 2011;268(1-3):117-125[Persian]
29.Tan IAW, Ahmad AL, Hameed BH, Adsorption of basic dye on high-surface-area activated carbon prepared from coconut husk: Equilibrium, kinetic and thermodynamic studies , J Hazard Mater 2008;154(1-3):337-346.
30.Han R, Han P, Cai Z, Zhao Z, Tang M, Kinetics and isotherms of Neutral Red adsorption on peanut husk, J Environ Sci 2008;20(9):1035-1041.
31.Luo P, Zhao Y, Zhang B, Liu J, Yang Y, Liu J, Study on the adsorption of Neutral Red from aqueous solution onto halloysite nanotubes, Water Res 2010;44(5):1489-1497.
32.Mohamed M, Ouki SK, Kinetic and Removal Mechanisms of Ethylbenzene from Contaminated Solutions by Chitin and Chitosan, Water Air Soil Pollut 2011;220:131–140.
33.Shahryari Z, Goharrizi AS, Azadi M, Experimental study of Methylene Blue adsorption from aqueous solutions onto carbon nano tubes, Int J Water Res Environ Eng 2010;2(2):16-28[Persian]
34.K. Nadafi, M. Vosoughi, A. Asadi, M. Omidvar Borna, Shirmardi M, Reactive Red 120 dye Removal from aqueous solution by adsorption on nano-alumina, journal of water chemistry and technology 2012;in press.
35.Yao Y, Bing H, Feifei X, Xiaofeng C, Equilibrium and kinetic studies of methyl orange adsorption on multiwalled carbon nanotubes, Chem Eng J 2011;170(1):82-89.
36.Machado FM, Bergmann CP, Fernandes THM, Lima EC, Royer B, Calvete T, "et al", Adsorption of Reactive Red M-2BE dye from water solutions by multi-walled carbon

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

nanotubes and activated carbon, J Hazard Mater 2011;192(3):1122-1131.
37.Sivaraj R, Namasivayam C, Kadirvelu K, Orange peel as an adsorbent in the removal of Acid violet 17 (acid dye) from aqueous solutions, Waste Management 2001;21:105-110.
38.Ehrampoush MH, Ghanizadeh G, Ghaneian MT, Equilibrium and kinetics study of Reactive Red 123 dye removal from aqueous solution by adsorption on eggshell, Iran J Environ Health Sci Eng 2011;8(2):101-108[Persian]
39.Lima EC, Royer B, Vaghetti JCP, Simon NM, da Cunha BM, Pavan FA, "et al", Application of Brazilian pine-fruit shell as a biosorbent to removal of reactive red 194 textile dye from aqueous solution: Kinetics and equilibrium study, J Hazard Mater 2008;155(3):536-550.
40.Senthilkumaar S, Kalaamani P, Porkodi K, Varadarajan PR, Subburaam CV, Adsorption of dissolved Reactive red dye from aqueous phase onto activated carbon prepared from agricultural waste, Bioresour Technol 2006;97(14):1618-1625.
41.Bhattacharyya KG, Sharma A, Kinetics and thermodynamics of Methylene Blue adsorption on Neem (Azadirachta indica) leaf powder, Dyes Pigments 2005;65(1):51-59.
42.Annadurai G, Ling LY, Lee J-F, Adsorption of reactive dye from an aqueous solution by chitosan: isotherm, kinetic and thermodynamic analysis, Journal of Hazardous Materials 2008;152(1):337-346.

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]

Original Article

Application of oxidized multiwall carbon nanotubes as a novel adsorbent for removal of Acid Red 18 dye from aqueous solution

Shirmardi M[1], Khodarahmi F[2], Heidari Farsani M[2], Naeimabadi A[3], Vosughi Niri M[4], Jafari J[4]

[1]PH.D student in Environmental Health Engineering , Member of student Research Committee, Faculty of Public Health, Ahvaz Jundishapur University of Medical Sciences, Ahvaz, Iran
[2]M.Sc in Environmental Health Engineering , Member of student Research Committee, Faculty of Public Health, Ahvaz Jundishapur University of Medical Sciences, Ahvaz, Iran.
[3]faculty member in Environmental Health, Faculty of Public Health, North Khorasan University of Medical Sciences, Bojnourd, Iran
[4]M.Sc in Environmental Health Engineering, Faculty of Public Health, Tehran University of Medical Sciences, Tehran, Iran.

***Corresponding Author:** Ahvaz, Ahvaz Jundishapur University of Medical Sciences, Faculty of Public Health, department of Environmental Health Engineering.
Email: mohammadshirmardi@gmail.com*

Abstract

Background & objectives: *Synthetic dyes are widely used in various industries. Discharging waste water containing dyes causes serious environmental problems because of its high toxicity and possible accumulation in the environment. The present work focuses on removal of anionic dye (Acid Red 18) by oxidized multiwall carbon nanotubes (o-MWCNT) from aqueous solution.*

Materials & Methods*: In this experimental study the effect of various parameters such as contact time, solution pH, adsorbent dosage and initial dye concentration were studied. The final dye concentration was read by UV–Vis spectroscopy at maximum wavelength 506 nm. Adsorption data were analyzed using Langmuir, Freundlich and Temkin adsorption isotherms.*

Results: *the results of this study showed that, by increasing contact time and adsorbent dosage dye removal percentage increases but by increasing solution pH and initial dye concentration dye removal percentage decrease. The adsorption of Acid Red 18 dye complies with Langmuir isotherm (R^2 = 0.995) model.*

Conclusion: *The results of this study indicate that oxidized multiwall carbon nanotubes can be used as an effective adsorbent for the removal of dyes.*

Keywords: *Carbon nanotubes, dye, Adsorption, Isotherm, Aqueous solution*

Submitted:*13 Sep 2012*
Revised:*6 Nov 2012*
Accepted:*27 Nov 2012*

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2026-11-19]