

بررسی سیلان دار کردن جاذب معدنی پومیس برای جداسازی آب و روغن

پروانه رئیسی^۱، رضا نوروزبیگی^{۲*} و هادی شایسته^۳

۱. کارشناس ارشد مهندسی شیمی، گروه فرایندهای جداسازی و فراوری مواد، دانشکده مهندسی شیمی نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران، ایران.
۲. دانشیار مهندسی شیمی، گروه فرایندهای جداسازی و فراوری مواد، دانشکده مهندسی شیمی نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران، ایران.
۳. دانشجوی دکتری مهندسی شیمی، گروه فرایندهای جداسازی و فراوری مواد، دانشکده مهندسی شیمی نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران، ایران.

دریافت: تیر ۱۴۰۰ بازنگری: مهر ۱۴۰۰ پذیرش: آذر ۱۴۰۰



10.30495/JACR.2022.689198



20.1001.1.17359937.1400.15.4.12.3

چکیده

هدف از انجام این پژوهش بررسی عملکرد پومیس اصلاح شده با عامل‌های کاهش‌دهنده انرژی سطح برای به‌کارگیری یک جاذب معدنی در فرایند جداسازی آب و روغن بوده است. اثر دو عامل نوع اصلاح‌کننده (اکتادسیل‌تری‌کلروسیلان و تری‌متیل‌کلروسیلان) و غلظت اصلاح‌کننده، ارزیابی شد و تحت شرایط بهینه، پومیس فوق‌آب‌گریز و فوق‌روغن‌دوست با میانگین زاویه تماس $159.2^{\circ} \pm 0.82^{\circ}$ به‌دست آمد. همچنین، مقدار اندازه‌گیری‌شده پسماند زاویه تماس نمونه بهینه $2.38^{\circ} \pm 0.08^{\circ}$ بود. مشخصه‌یابی‌های دستگاهی برای تعیین ویژگی‌های جاذب نیز انجام پذیرفت و حضور اصلاح‌کننده‌های سطحی بر سطح پومیس اثبات شد. در آزمایش‌های انتهابسته درصد جداسازی دی‌کلرومتان از آب با نمونه بهینه ۹۸.۳٪ با شار عبوری $8422.38 \text{ lm}^{-2}\text{h}^{-1}$ به‌دست آمد. همچنین، آزمایش‌های جداسازی انتهابسته متوالی با تکرار ده مرتبه انجام پذیرفت و درصد جداسازی پس از ده چرخه جداسازی آب و دی‌کلرومتان، بیش از ۹۲٪ بود. از طرفی با افزایش چرخه‌های جداسازی آب و دی‌کلرومتان، شار عبوری از $8422.38 \text{ lm}^{-2}\text{h}^{-1}$ تا $3445.52 \text{ lm}^{-2}\text{h}^{-1}$ تغییر یافت. برای سنجش پایداری نمونه بهینه با ماهیت فوق‌آب‌گریزی، آزمایش غوطه‌وری در آب در مدت ۶ ساعت انجام شد و زاویه ایستا قطره از 159.2° به 153.3° کاهش یافت.

واژه‌های کلیدی: جداسازی آب و روغن، پومیس، فوق‌آب‌گریز، زاویه تماس.

مقدمه

به‌طور معمول، یکی از مهم‌ترین آلاینده‌های منابع آبی، مواد روغنی هستند. بسیاری از صنایع مقدار زیادی از پسماندهای روغنی و نفتی را تولید می‌کنند که تأثیرهای قابل توجهی بر محیط‌زیست دارند [۱]. افزایش تولید، انتقال و استفاده از ترکیب‌های روغنی و امکان نشت آن‌ها به محیط‌زیست به‌عنوان یک تهدید و آلودگی جدی برای محیط‌زیست بشمار می‌رود. در نتیجه حذف مؤثر این آلوده‌کننده‌های روغنی از آب با هزینه کم یک چالش جهانی است [۲]. اگرچه برای جداسازی آب و روغن در گذشته روش‌های متفاوتی گزارش شده است، ولی بسیاری از آن‌ها معایب گوناگونی دارند و در حال حاضر موادی که بتوانند این نیازها را برطرف کنند در حال توسعه هستند.

در حال حاضر، مواد و روش‌های مورد استفاده برای حذف آلودگی‌های روغنی به چهار گروه متفاوت گروه‌بندی می‌شوند: الف) روش‌های شیمیایی، ب) سوزاندن در محل، ج) زیست پالایی و د) بازیابی مکانیکی (بوم‌ها، اسکیمرها^۱ و جاذب‌ها) [۳ و ۴]. همه روش‌های ذکر شده برای حذف روغن از آب مؤثر هستند، ولی برخی از این روش‌ها با چالش‌های زیست‌محیطی همراه هستند. برای مثال، می‌توان به دود به‌دست‌آمده از سوزاندن در محل و سمیت روش پراکندگی شیمیایی اشاره کرد [۱، ۵ و ۶]. فناوری‌های فعلی به‌طور عمده با تکیه بر سازوکارهای متفاوت جداسازی مانند گرانشی، تصفیه شیمیایی، غشا و صافش، لخته‌سازی، شناورسازی هوا و جذب عمل می‌کنند [۷]. در میان روش‌های متفاوت جداسازی آب و روغن، جذب سطحی یکی از مناسب‌ترین فرایندها به‌نظر می‌رسد. جذب، فرایندی است که در آن تجمع یک گاز یا مایع بر سطح فاز جامد اتفاق می‌افتد [۲]. در مقیاس بزرگ و صنعتی، فرایند جذب سطحی به سرمایه ثابت و هزینه‌های عملیاتی کمی نیاز دارد. از

طرفی بازده جداسازی بالایی که این روش دارد، یکی از دلایل اصلی در پیشنهاد و انتخاب این گونه سامانه‌های جداسازی روغن از آب است. در نشریات و منابع علمی از مواد متفاوتی به‌عنوان نامیزه‌شکن^۲ برای تصفیه آب و روغن و جداسازی نامیزه‌های آن‌ها نامبرده شده است. برای مثال، در برخی منابع، استفاده از جاذب‌های طبیعی، بسپارهای تهیه شده و مواد معدنی (غیرآلی) گزارش شده‌اند [۶ و ۸]. وجود یک ماده جاذب که بتواند به‌طور مؤثر و سریع این چنین آلاینده‌های آب را جداسازی کند از اهمیت بالایی برخوردار است. برای پرداختن به چالش تصفیه پساب‌های آلوده به روغن یا نفت‌آلود، در سال‌های گذشته مواد متفاوتی با قابلیت ترشوندگی متفاوت پیشنهاد شده‌اند [۹].

جاذب‌های آرمانی باید ویژگی‌هایی همچون قیمت کم، در دسترس بودن، سادگی عملیات بازیابی و دفع ایمن داشته باشند. جاذب‌های با سطح ویژه بالا و با قابلیت جذب روغن مناسب به‌دست آمده از فراوری مواد معدنی و مواد زیستی یا فراورده‌های جانبی موجود زراعی، ممکن است به‌عنوان گزینه‌های خوبی برای جداسازی روغن به حساب آیند [۱۰ و ۱۱].

با استفاده از مواد تجدیدپذیر یا کم‌هزینه و در دسترس، این فناوری جذابیت‌های اقتصادی و فنی بیشتری نسبت به فناوری‌های متداول پیدا کرده است [۱۲ تا ۱۴]. براین اساس، به‌طور عمده برای جذب روغن از آب، از مواد متخلخل ارزان قیمت و در دسترس با ویژگی فوق‌آب‌گریز و فوق‌روغن‌دوست استفاده می‌شود. دستیابی به این ویژگی‌ها با کاهش انرژی سطح جاذب امکان پذیر است و همچنین، با بهره‌مندی از سطح ویژه بالای مواد متخلخل، حذف کامل فاز روغنی از آب محقق می‌شود [۱۵].

از دیدگاه علم مواد، مواد متخلخل با ترشوندگی ویژه ابزاری مناسب برای جداسازی آب و روغن به حساب می‌آیند. با

1. Skimmers

2. Demulsifier

هیدروکلریک اسید (قطران شیمی)، اتانول (کیمیالکل زنجان)، اکتادسیلتری کلروسیلان^۱ (ODTS)، تری متیل-کلروسیلان^۲ (TMSCI) و تولوئن (هر سه از مرک) بودند. فاز روغنی مورد استفاده در آزمایش‌های جداسازی، دی کلرومتان با چگالی 1.33 g/cm^3 بود که به عنوان روغن سنگین از شرکت Biobasic کانادا تهیه شد.

دستگاه‌ها و تجهیزات آزمایشگاهی

برای اندازه‌گیری و تنظیم pH محلول‌ها از کاغذهای pH یا کاغذ تورنسل ساخت شرکت مرک آلمان استفاده شد. همچنین، به منظور اندازه‌گیری وزن مواد متفاوت از ترازوی الکتریکی مدل Bel با دقت 0.001 ساخت کشور ایتالیا استفاده شد. برای هم‌زدن نمونه‌ها و انجام عملیات اصلاح، همزن مغناطیسی و برای خشک کردن نمونه‌ها، دستگاه آون ساخت شرکت شیمی فن به کار گرفته شد. زاویه تماس نمونه‌ها با میکروسکوپ نوری دیجیتالی DINOLITE مدل AM-4113ZT ساخت کشور تایوان و سرنگ 10 میکرولیتر همیلتون (آمریکا) اندازه‌گیری شد.

طیف‌سنجی FTIR با استفاده از قرص KBr و طیف‌نورسنج مدل Spectrum RX1 ساخت شرکت Perkin Elmer آلمان برای تجزیه و تحلیل بارگذاری گروه‌های عاملی بر جاذب‌ها و جاذب‌های اصلاح‌شده، به کار گرفته شد. میکروسکوپ الکترونی پویشی گسیل میدانی مدل TESCAN VEGA در 30 kV برای ریخت‌شناسی نمونه‌ها مورد استفاده قرار گرفت. این میکروسکوپ مجهز به تجهیزات طیف‌سنجی تفکیک انرژی (EDS) بود که برای تعیین عناصر موجود در نقاط معینی از نمونه‌ها به کار گرفته شد.

آماده‌سازی سطح جاذب

به دلیل وجود ناخالصی و گردوغبارهای موجود روی سطح، پومیس ابتدا با آب شهری چندین بار به طور کامل

نگاهی به روند پژوهش‌های انجام گرفته در سال‌های اخیر به خوبی می‌توان فهمید که به کارگیری ترشوندگی سطح یا به عبارتی به کارگیری اثر نیروهای مؤثر در جداسازی روغن از آب به شدت رو به افزایش است. برای تصفیه این‌گونه پساب‌ها تلاش‌های بسیاری برای جایگزینی جاذب‌های ارزان قیمت شده است. در این راستا، جامدهای طبیعی متفاوتی که قادرند آلودگی‌های روغنی را از پساب با کمترین قیمت و به سادگی بزایند، بیشتر مورد توجه هستند. از جاذب‌های ارزان قیمت و طبیعی می‌توان به مواد معدنی رسی (بتونیت، کائولین و...)، ژئولیت‌ها، مواد سیلیکایی (آلونیت، پرلیت، پومیس و...)، ضایعات کشاورزی (تفاله نیشکر، سبوس برنج، پوست نارگیل و...)، جاذب‌های زیستی (کیتوسان، خزه پوسیده و...) و موادی از این دست اشاره کرد [۱۶ و ۱۷].

در این پژوهش، امکان اصلاح سطح پومیس با عامل‌های سیلانی برای کاهش انرژی سطح، بررسی شد. سپس، با اندازه‌گیری زاویه‌های تماس قطره آب بر سطوح اصلاح‌شده، بهترین شرایط اصلاح برای ایجاد بالاترین زاویه تماس ایستا مشخص شد. از نمونه بهینه تهیه شده در این شرایط، برای جداسازی دی کلرومتان از آب استفاده شد و این جداسازی در 10 چرخه متوالی مورد ارزیابی قرار گرفت. همچنین، برای تعیین ویژگی‌های جاذب اصلاح‌شده مشخصه‌یابی‌های دستگاهی نیز انجام شد.

بخش تجربی

مواد

ماده معدنی پومیس مورد استفاده در این پژوهش از معادن روستای تیکمه‌داس آذربایجان شرقی و از شرکت پوک معدنی البرز تأمین شد. پومیس تهیه شده، رنگی روشن (سفید متمایل به کرمی رنگ) و ساختاری متخلخل و سبک و با دانه‌هایی با میانگین اندازه 1 cm سانتی‌متر است. اصلاح‌کننده‌ها و حلال‌ها با خلوص آزمایشگاهی، شامل

1. Octadecyltrichlorosilane (ODTS)

2. Chlorotrimethylsilane (TMSCI)

شسته شد، به‌گونه‌ای که در پایان شستشو آب عبوری از روی پومیس زلال بود. سپس پومیس شسته‌شده در مدت ۱۲ ساعت تحت دمای °C ۸۰ داخل آون خشک شد. برای اطمینان از شستشوی کامل، این مراحل یک‌بار دیگر تکرار شدند. پومیس شسته‌شده با آسیاب گلوله‌ای (با حجم محفظه ۵ لیتر و نسبت جرمی پومیس و گلوله سرامیکی برابر ۲:۳) خرد شد و ذره‌های پومیس به‌دست آمده بین مش‌های ۴۰۰ و ۱۷۰ (۳۷ و ۸۸ میکرومتر) جمع‌آوری شدند. در ادامه به‌منظور حذف ذره‌های ریز تولیدشده در حین خردشدن، پومیس با آب دو بار تقطیر شسته و در مدت ۲۴ ساعت در دمای °C ۸۰ خشک شد. پودر به‌دست آمده برای استفاده در آزمایش‌های بعدی در یک ظرف شیشه‌ای در دمای محیط نگهداری شد.

اصلاح شیمیایی جاذب با HCl

با توجه به پتانسیل زتای منفی پومیس، به‌منظور آماده‌سازی سطح پومیس یعنی تغییر ترشوندگی آن ضرورت داشت که بار سطحی پومیس تغییر داده شود. از طرفی با توجه به خالص‌سازی و فعال‌کردن سطح متخلخل ماده معدنی پومیس لازم بود اصلاح شیمیایی با هیدروکلریک اسید (HCl) انجام شود. به‌همین منظور ابتدا ۵ گرم پومیس آماده‌شده از مرحله پیشین داخل ۲۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر با pH برابر با 5.5 ± 0.5 ریخته شد و به‌مدت یک ساعت روی همزن قرار داده شد. سپس، محلول HCl یک مولار تهیه و ۲۵ میلی‌لیتر از آن به‌صورت قطره‌قطره به مخلوط آب و پومیس افزوده شد تا pH آن به 0.5 ± 1.5 کاهش یابد. پس از آن مخلوط اسیدی حاوی ذره‌های پومیس با هدف اصلاح شیمیایی به مدت ۳ ساعت روی همزن قرار داده شد و در انتها با صاف‌کردن محلول با قیف و ارلن‌خا، پودر باقی‌مانده روی کاغذ صافی با کمی آب مقطر شسته شد تا کلرید اضافی روی سطح پومیس زدوده شود. در پایان جاذب به مدت ۱۲ ساعت در داخل آون با دمای °C ۸۰ خشک شد.

اصلاح سطح جاذب با ترکیب‌های سیلانی

از دو اصلاح‌کننده ODTS و TMSCI محلول‌هایی در پنج غلظت متفاوت تهیه شدند. برای این کار، محلول‌ها با درصد‌های حجمی مشابه به‌صورت ۰/۲، ۰/۵، ۱، ۰/۱، ۰/۵ و ۷/۷٪ که به‌ترتیب معادل غلظت‌های ۰/۵، ۱/۲۵، ۲/۵، ۱۲/۵ و ۲۵ mM برای اصلاح‌کننده ODTS و معادل غلظت‌های ۱/۵، ۳/۷۵، ۷/۵، ۳۷/۵ و ۷۵ mM برای اصلاح‌کننده TMSCI، آماده شدند. برای مثال، عملیات اصلاح برای جاذب با اصلاح‌کننده ODTS با غلظت ۰/۵ mM (معادل ۷/۷٪ ۰/۲) بدین‌صورت انجام گرفت که ۰/۳ گرم از جاذب اصلاح شیمیایی‌شده با HCl داخل یک بالن ۵۰ میلی‌لیتری ریخته و به آن ۲۰ میلی‌لیتر محلول ۰/۵ mM از ODTS افزوده شد. این بالن به همراه یک آهن‌ربا ۱/۵ cm و همچنین، با قراردادن تجهیزات بازروانی روی دهانه آن، به مدت ۲ ساعت با همزن مغناطیسی هم‌زده شد. در پایان پس از صاف‌کردن مخلوط، ذره‌های باقی‌مانده با اتانول شسته و در مدت ۶ ساعت در دمای °C ۵۰ خشک شد. پودر به‌دست آمده روی کاغذ صافی به یک ویال تمیز منتقل و برای اندازه‌گیری زاویه تماس آماده شد. به‌همین ترتیب اصلاح جاذب پومیس با پنج غلظت متفاوت از دو اصلاح‌کننده ODTS و TMSCI انجام شد.

اندازه‌گیری زاویه تماس ایستا قطره آب در هوا (WCA)

برای اندازه‌گیری زاویه تماس ایستا از یکی از روش‌های معمول اندازه‌گیری به نام روش قطره آویزان^۱ با تزریق قطره‌های آب ۵ میکرولیتری استفاده شد [۱۸]. تصویربرداری از مرز مشترک قطره و سطح با میکروسکوپ انجام پذیرفت. سپس با به‌کارگیری روش LBADSA با نرم‌افزار Image J 1.51i زاویه تماس‌ها اندازه‌گیری شدند. زاویه تماس ایستا گزارش‌شده برای هر نمونه به‌صورت میانگین ۶ نقطه‌ای از ۶ زاویه تماس اندازه‌گیری‌شده بود.

آزمایش چرخه متوالی جداسازی

پس از انجام آزمایش انتهابسته برای نمونه بهینه، آزمایش جداسازی متوالی انتهابسته نیز با تکرار ۱۰ مرتبه انجام پذیرفت. بدین منظور مقدار ۰/۵ گرم از پومیس روی یک توری فلزی (مش ۴۰۰) به عنوان پایه قرار گرفت و بین دو لوله شیشه‌ای به قطر ۱۵ میلی‌متر تثبیت شد. سپس ده بار و در هر بار ۱۰ میلی‌لیتر دی‌کلرومتان به روی لایه جاذب ریخته و مشاهده شد در هر بار پس از عبور دی‌کلرومتان از لایه جاذب، لایه آب بدون تغییر باقی ماند.

پایداری غوطه‌وری در آب

بر پایه پژوهش‌های انجام شده، پایداری ترشوندگی پودر فوق‌آب‌گریز با آزمایش غوطه‌وری در آب بررسی شد [۱۸]. نمونه بهینه در آب یون‌زدوده غوطه‌ور شد. زوایه‌های تماس با گذشت هر دو ساعت از زمان شروع آزمایش تا ۶ ساعت اندازه‌گیری شدند.

نتیجه‌ها و بحث

اندازه‌گیری زاویه تماس ایستا قطره آب در هوا

اندازه زاویه تماس قطره آب بر هر نمونه به‌عنوان پاسخ آزمایش‌ها موردتوجه قرار گرفت تا با مقایسه زاویه تماس هر نمونه پس از اصلاح سطح با دو نوع اصلاح‌کننده، نمونه بهینه با بالاترین زاویه تماس مشخص شود. هدف این بخش مقایسه میانگین زاویه تماس ایستا قطره آب روی نمونه‌ها بر پایه تغییر نوع ترکیب اصلاح‌کننده و غلظت اصلاح‌کننده بوده است.

بررسی زاویه تماس قطره آب روی نمونه‌های شاهد

زاویه تماس ایستا قطره آب روی نمونه‌های شاهد پومیس بررسی شد. برای پومیس خام (بدون هیچ‌گونه اصلاح شیمیایی) و همچنین، پومیس بدون اصلاح سطح که فقط اصلاح شیمیایی با HCl روی آن‌ها انجام شده بود، زاویه

همچنین، بازه اطمینان^۱ زاویه تماس هر نمونه نیز گزارش شد.

در مورد چگونگی اندازه‌گیری زاویه تماس قطره آب روی هر نمونه، لازم به ذکر است که به دلیل حالت پودری نمونه‌ها، ابتدا مقدار تقریبی ۰/۸ گرم از هر نمونه به صورت یک لایه بر یک لام شیشه‌ای در ابعاد ۱ cm × ۱ cm تثبیت و در ادامه پس از تزریق قطره آب بر روی هر نمونه، عکس‌برداری انجام شد [۱۹].

آزمایش جداسازی انتهابسته

آزمایش انتهابسته به منظور جداسازی آب و دی‌کلرومتان برای نمونه بهینه پومیس انجام شد. با توجه به سامانه به کارگرفته شده در این آزمایش برای جداسازی آب و روغن، لازم بود فاز روغنی سنگین‌تر از فاز آبی باشد و انتخاب دی‌کلرومتان به همین دلیل بود. مقدار مشخصی (۰/۵ گرم) از پومیس به صورت یک لایه نازک (ضخامت تقریبی ۰/۵ سانتی‌متر) روی یک توری فلزی (مش ۴۰۰) به‌عنوان یک پایه قرار گرفت و بین دو لوله شیشه‌ای به قطر ۱۵ میلی‌متر و ارتفاع مجموع ۲۰ سانتی‌متر تثبیت شد. آب با استفاده از متیلن‌آبی^۲ و دی‌کلرومتان با قرمز روغنی برای مشاهده آسان ترکیب شدند. لایه جاذب پیش از فرایند جداسازی به‌طور کامل با دی‌کلرومتان آغشته شد. مخلوط ۲۰ میلی‌لیتر از دی‌کلرومتان و آب (۵۰٪ حجمی) بر لایه ذره‌ها ریخته و فرایند جداسازی با نیروی جاذبه انجام شد. پس از عبور دی‌کلرومتان از لایه جاذب فوق‌آب‌گریز و فوق‌روغن‌دوست، آب بدون تغییر روی جاذب باقی ماند و عبور نکرد. با تعیین جرم آب و دی‌کلرومتان مورد استفاده پیش و پس از جداسازی در آزمایش و با مشخص شدن زمان عبوردهی دی‌کلرومتان از لایه جاذب، درصد جداسازی و شار عبوری محاسبه شدند.

1. Confidence interval

2. Methylene blue

مقادیر بالا از این اصلاح‌کننده‌ها، می‌تواند موجب کاهش انرژی سطح و ویژگی ترشوندگی موردنظر شود. بنابراین، روندهای افزایشی که به‌وجود آمده است، نتیجه جذب فیزیکی و پیوند اصلاح‌کننده در حفره‌ها و خلل و فرج جاذب‌ها و موفقیت‌آمیز بودن اصلاح ترشوندگی موردنظر است. روند کاهشی که در نمودارها و جدول نیز قابل مشاهده است به‌دلیل پرشدن حفره‌های ناشی از غلظت بالای اصلاح‌کننده‌ها است. لازم به‌ذکر است که این موضوع را می‌توان از تصاویر FESEM که در ادامه ارائه خواهند شد نیز برداشت کرد.

بررسی طیف‌های فرسرخ تبدیل فوریه (FTIR)

شکل ۱ طیف‌های FTIR به‌دست‌آمده در گستره ۴۵۰ تا 4400 cm^{-1} از پومیس، پومیس اصلاح شیمیایی شده با HCl و پومیس اصلاح‌شده با ترکیب‌های سیلانی (ODTS و TMSCI) را نشان می‌دهد. با توجه به طیف نمونه پومیس خام، نوار مشاهده‌شده در 3435 cm^{-1} مربوط به پیوندهای -OH - سیلانولی سطح است (ارتعاش‌های پیوند -OH - گروه‌های سیلانولی سطح به‌دلیل آب جذب‌شده از محیط و حضور گروه‌های غیرمتراکم -OH - است).

نوار مشاهده‌شده در 1031 cm^{-1} مربوط به ارتعاش‌های کششی نامتقارن Si-O-Si است. نوار مشاهده شده در 783 cm^{-1} مربوط به ارتعاش پیوندهای Si-O-H است. نوار مشاهده شده در کمتر از 450 cm^{-1} به ارتعاش‌های کششی متقارن Si-O-Si است [۲۰ تا ۲۲]. در طیف نمونه پومیس اصلاح شیمیایی شده با HCl، تغییر در نوار مربوط به ارتعاش‌های کششی Si-O-Si مربوط به اشغال مکان‌های Si با H^+ اسید است. همچنین، نوار مشاهده شده در 778 cm^{-1} پهن‌تر شده است.

این تغییرات، بیانگر اصلاح شیمیایی نمونه پومیس است [۲۳]. با توجه به طیف‌های نمونه‌های پومیس اصلاح‌شده با ترکیب‌های سیلانی (ODTS و TMSCI)، مقایسه گستره

تماس صفر درجه به‌دست آمد که نشان‌دهنده رفتار فوق‌آب دوستی سطح این ماده پیش از سیلانی کردن است.

بررسی زاویه تماس قطره آب روی پومیس اصلاح‌شده با ترکیب‌های سیلانی

نتیجه‌های اندازه‌گیری زاویه تماس ایستا قطره آب روی نمونه‌های اصلاح‌شده در جدول ۱ آورده شده است. همان‌طور که از این جدول قابل تشخیص است، پومیس اصلاح‌شده با ODTS با درصد حجمی ۰/۵، بیشترین میانگین زاویه تماس را پس از اصلاح را دارد که اطلاعات مربوط به آن‌ها در جدول قابل مشاهده است.

جدول ۱ زاویه تماس ایستا قطره آب روی نمونه‌های اصلاح‌شده با

ترکیب‌های سیلانی

شماره آزمایش	میانگین زاویه تماس قطره آب روی پومیس اصلاح‌شده (°)	اصلاح‌کننده	
		نوع	درصد حجمی
۱	146.8 ± 0.58	ODTS	۰/۲ (۰/۵ mM)
۲	150.1 ± 1.08	ODTS	۰/۵ (۱/۲۵ mM)
۳	152.3 ± 0.73	ODTS	۰/۱ (۲/۵ mM)
۴	159.2 ± 0.82	ODTS	۰/۵ (۱۲/۵ mM)
۵	156.5 ± 1.26	ODTS	۱ (۲۵ mM)
۶	147.6 ± 0.72	TMSCI	۰/۲ (۱/۵ mM)
۷	150.7 ± 1.39	TMSCI	۰/۵ (۳/۷۵ mM)
۸	150 ± 1.2	TMSCI	۰/۱ (۷/۵ mM)
۹	152.5 ± 1.8	TMSCI	۰/۵ (۳۷/۵ mM)
۱۰	149.5 ± 0.29	TMSCI	۱ (۷۵ mM)

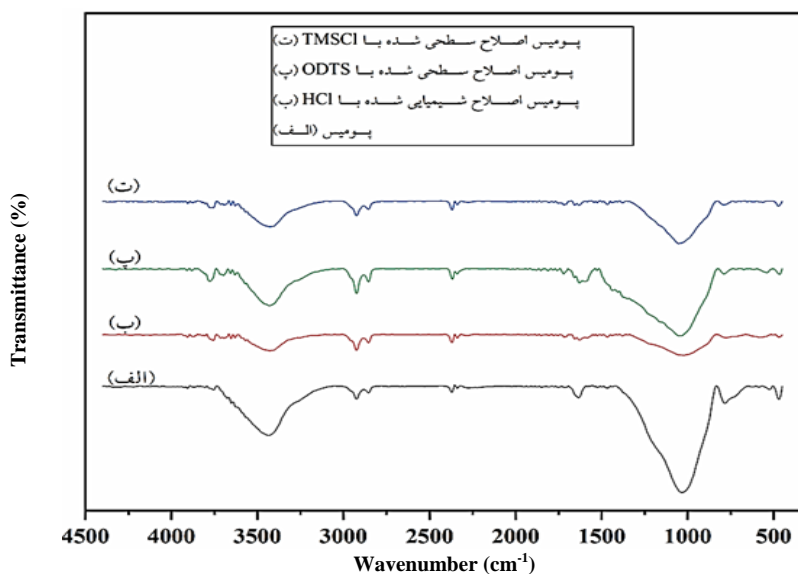
از مقایسه نتیجه‌های دو ترکیب سیلانی مورد استفاده که با هدف کاهش انرژی سطح استفاده شدند، مشخص است که میانگین زاویه تماس قطره آب قرار گرفته روی نمونه‌ها در مورد اصلاح‌کننده ODTS (با زنجیره کربنی طولانی‌تر) بیشتر از اصلاح‌کننده TMSCI است. همان‌طور که اشاره شد، با افزایش کربن در زنجیره کربنی اصلاح‌کننده‌ها، کاهش انرژی سطح نیز بیشتر است. از طرفی استفاده با

نشریه پژوهش‌های کاربردی در شیمی (JARC)

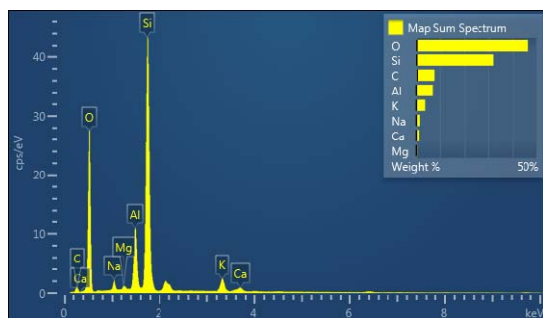
سال پانزدهم، شماره ۴، زمستان ۱۴۰۰

روی سطح پومیس و موفقیت آمیز بودن اصلاح با ترکیب‌های سیلانی است [۲۴ تا ۲۶].

نوارهای ۱۰۵۱، ۲۸۵۰ و 2923 cm^{-1} در نمونه‌های پومیس اصلاح شده با ODTS و TMSCl با گستره نظیر در طیف پومیس اصلاح نشده، نشان‌دهنده نشست اصلاح‌کننده‌ها



شکل ۱ طیف‌های FTIR برای پومیس، پومیس اصلاح شیمیایی شده با HCl و پومیس اصلاح شده با ترکیب‌های سیلانی



شکل ۲ طیف EDS نمونه بهینه

تصویرهای میکروسکوپ الکترونی پوششی گسیل میدانی (FESEM) نمونه‌ها

تصویرهای FESEM سطح پومیس در شکل ۳-الف نشان داده شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود این

طیف‌سنجی پخش انرژی پرتو ایکس (EDS)

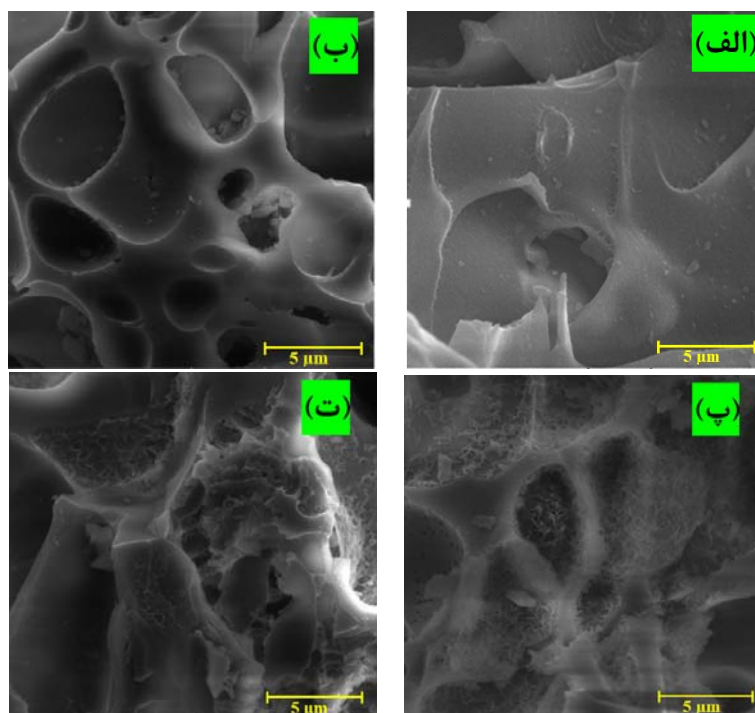
طیف تفکیک انرژی (EDS) و تجزیه عنصری نمونه بهینه در شکل ۲ نشان داده شده است. الگوی EDS نمونه بهینه نشان می‌دهد که عناصر اصلی و عمده تشکیل‌دهنده آن شامل اکسیژن، سیلیکون، کربن و آلومینیم است. پومیس در گزارش‌های ارائه شده شامل حدود ۶۳ درصد سیلیکا، ۱۳ تا ۱۷ درصد آلومینا و ۲ تا ۱۰ درصد پتاسیم اکسید و مابقی اکسیدهای کلسیم، منیزیم و سدیم است [۲۷ و ۲۸]. مقدار کربنی که در طیف نشان داده شده است به دلیل لایه نشانی ماده اصلاح‌کننده ODTS بر سطح پومیس است یا به عبارتی بیانگر موفقیت آمیز بودن اصلاح پومیس با ترکیب سیلانی ODTS است.

نشریه پژوهش‌های کاربردی در شیمی (JARC)

سال پانزدهم، شماره ۴، زمستان ۱۴۰۰

با مقایسه ریخت سطح پومیس پیش و پس از اصلاح با ترکیب‌های سیلانی ODTS و TMSCl، تغییرهای سطحی این ماده در اثر اصلاح قابل توجه است. ویژگی‌های بافتی و ریخت‌شناسی جاذب اصلاح‌شده با ترکیب‌های سیلانی ODTS و TMSCl به ترتیب در شکل‌های ۳-پ و ۳-ت نشان داده شده است. همان‌طور که از تصویرهای پومیس اصلاح‌شده و ناهمواری‌های ایجادشده مشخص است، اثر اصلاح‌کننده‌ها که با هدف تغییر ترشوندگی استفاده شدند روی ساختار سطحی پومیس به‌طور کامل مشهود است.

نمونه سطح ناهمواری دارد، ولی حفره‌ها و تخلخل کمتری در سطح آن مشاهده می‌شود. پس از اصلاح شیمیایی با HCl سطح آن ناهموارتر شده و تخلخل و حفره‌های عمیق بیشتری به دلیل اثر اسید بر ساختار پومیس و شستشوی یون‌ها و ناخالصی‌ها، پدیدار شده است (شکل ۳-ب). این حفره‌های عمیق به دلیل اثر اصلاح شیمیایی با اسید، می‌توانند مکان‌های مناسبی برای نفوذ و جذب آلاینده‌ها باشند. از این تصویرها قابل مشاهده است که سطح پومیس متخلخل است و می‌تواند موجب جذب مؤثر آلاینده‌ها شود [۳].



شکل ۳ تصویرهای FESEM پومیس (الف)، پومیس اصلاح‌شیمیایی شده با HCl (ب) و پومیس اصلاح‌شده با ODTS (پ) و TMSCl (ت)

گونه‌ای اصلاح می‌شود که نسبت به یکی از فازها (دی‌کلرومتان یا همان فاز روغنی) مایع دوست و نسبت به فاز دیگر (آب) مایع‌گریز شده است. پس از تشکیل لایه

آزمایش انتهایی

مبنای جداسازی در این روش تفاوت در انرژی سطح و نیروهای مؤثر است. سطح جاذب در فرایند سیلانی کردن به

به‌طور کامل شبیه فرایندهای غشایی است. به دلیل ویژگی‌های فوق آب‌گریزی، هنگامی که مخلوط آب و دی‌کلرومتان روی سطح ریخته شود، می‌توان بسته‌های هوای حبس شده در ساختار میکرو را با دی‌کلرومتان جایگزین کرد و آن را از راه حفره‌های بین ذره‌ها عبور داد، در حالی که آب روی لایه مسدود می‌شود [۲۹]. فاز روغنی دی‌کلرومتان از فاز آبی سنگین‌تر است. بنابراین، فاز روغنی پایین فاز آبی قرار می‌گیرد (شکل ۴- الف). در شکل‌های ۴- ب و ۴- پ تصاویرهای مخلوط ۲۰ میلی‌لیتر آب و دی‌کلرومتان پیش و پس از جداسازی با سامانه انتهابسته آورده شده است.

جاذب در سامانه انتهابسته، فاز سنگین‌تر که چگالی بالاتری دارد (دی‌کلرومتان) به سطح جاذب می‌رسد. به دلیل ویژگی روغن‌دوستی جاذب، این سطح اجازه عبور فاز سنگین را می‌دهد. ولی وقتی آب که سبکتر است به سطح جاذب می‌رسد، جاذب که فوق آب‌گریز شده است، آب را دفع می‌کند و اجازه عبور نمی‌دهد. به این ترتیب دو فاز غیرقابل‌امتزاج آبی و روغنی از هم جدا می‌شوند.

درصد جداسازی و شار عبوری دی‌کلرومتان به‌عنوان خروجی این آزمایش بررسی شد. نتیجه‌ها نشان داد که دی‌کلرومتان از لایه فوق آب‌گریز عبور می‌کند و آب در بالای سطح جاذب حفظ می‌شود. سازوکار جداسازی



(پ)



(ب)



(الف)

شکل ۴ آب رنگ‌شده با متیلن‌آبی و دی‌کلرومتان با قرمز روغن و سنگین‌تر از آب (الف)، مخلوط ۲۰ میلی‌لیتر آب و دی‌کلرومتان (ب) و جداسازی آب و دی‌کلرومتان با جاذب فراوری شده و تثبیت‌شده در سامانه انتهابسته (پ)

که در آن، m_0 و m_1 به ترتیب جرم روغن در مخلوط اولیه و پس از عبور از سامانه انتهابسته است. شار عبوری نیز با معادله ۲ قابل محاسبه است.

$$F = V / St \quad (۲)$$

مقدار جداسازی با معادله ۱ محاسبه می‌شود.

$$\text{درصد جداسازی} = (m_1/m_0) \times 100 \quad (۱)$$

همان‌طور که در شکل ۵ نشان داده شده است، بیشترین مقدار جداسازی در نخستین آزمایش جداسازی، ۹۸٫۳٪ به‌دست آمده و مقادیر در دوره‌های بعدی کاهش یافته است. با این حال، مقدار جداسازی پس از ده چرخه جداسازی آب و روغن، بیش از ۹۲٪ است. چسبندگی قطره‌های روغن به سامانه و فراریت دی‌کلرومتان ممکن است از دلایل اصلی کاهش بازده جداسازی باشند.

شار عبوری از لایه جاذب برحسب چرخه‌های جداسازی آب و روغن برای پومیس در شکل ۶ نشان داده شده است. مشاهده می‌شود که با افزایش چرخه‌های جداسازی آب و روغن، شار کاهش می‌یابد. مقادیر طی ۱۰ چرخه برای پومیس از ۸۴۲۲٫۳۸ تا $1 \text{ m}^{-2}\text{h}^{-1}$ ۳۴۴۵٫۵۲ متغیر است. کاهش شار با افزایش چرخه‌های جداسازی آب و روغن به‌طور عمده به دلیل تجمع لایه روغن بین آب و سطح ذره‌های جاذب است که می‌تواند مسیر نفوذ مؤثر را مسدود کند [۳۰]. با این حال مقادیر شار به‌دست آمده بسیار بیشتر از مقادیر گزارش شده با غشای فراصافش صنعتی معمولی است که تحت فشار خارجی کار می‌کنند. همچنین، با توجه به اینکه در این مطالعه جداسازی آب و روغن فقط با نیروی جاذبه انجام شده است، منطقی است که این فرایند از نظر بازده انرژی نیز بسیار کارآمد به حساب آید [۳۱ و ۳۲].

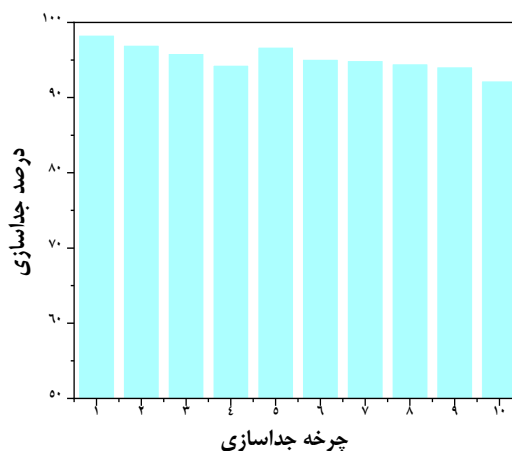
نتیجه‌های به‌دست آمده از سایر پژوهش‌ها در زمینه جداسازی آب و روغن در جدول ۲، به‌صورت مقدار جداسازی و شار عبوری جاذب‌ها گزارش شده است. برپایه این جدول، نتیجه‌های به‌دست آمده طی این پژوهش در مقایسه با سایر مقاله‌ها، نتایجی قابل قبول و مطلوب هستند.

که در آن، F و V به ترتیب شار ($\text{l m}^{-2}\text{h}^{-1}$) و حجم روغن عبوری (l) در نظر گرفته می‌شوند. S و t مساحت سطح مقطع لایه جاذب (m^2) و مدت زمان عبور (h) است.

برای نمونه بهینه پومیس مقادیر و اطلاعات مربوطه که در حین آزمایش ثبت شده بود در معادله‌های ۱ و ۲ جای‌گذاری شدند و مقدار جداسازی و شار عبوری طی آزمایش انتهایی به ترتیب برابر ۹۸٫۳٪ و $1 \text{ m}^{-2}\text{h}^{-1}$ ۸۴۲۲٫۳۸ به‌دست آمد. برای نمونه‌های شاهد پومیس (پومیس بدون اصلاح با HCl و پومیس اصلاح‌شده با HCl مقدار جداسازی و شار عبوری طی آزمایش انتهایی به‌دست آمده برابر صفر بود. به‌علت ویژگی فوق‌آب‌دوستی بالای نمونه‌های شاهد، افزون بر عبور فاز روغنی، فاز آب نیز به داخل ماده نفوذ می‌کند و موجب عبور فاز آبی نیز می‌شود.

آزمایش چرخه متوالی جداسازی

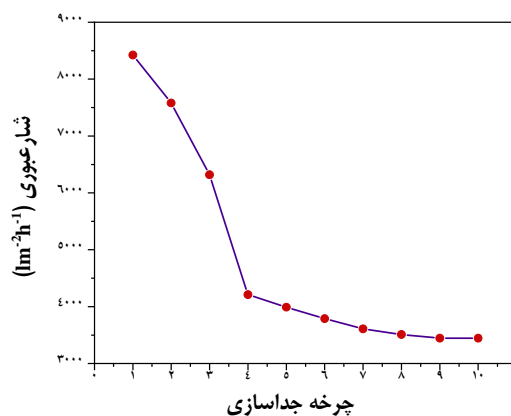
اطلاعات مربوط به آزمایش جداسازی انتهایی متوالی با تکرار ده مرتبه برای محاسبه درصد جداسازی و شار عبوری (با معادله‌های ۱ و ۲) در هر تکرار ثبت شدند. شکل ۵ تغییرهای مقدار جداسازی جاذب پومیس در مقابل چرخه‌های جداسازی آب و روغن را نشان می‌دهد.



شکل ۵ نمودار تغییرهای درصد جداسازی برحسب چرخه جداسازی نمونه بهینه

تعویض می‌شوند و این پدیده منجر به از بین رفتن ویژگی‌های فوق‌آب‌گریزی می‌شود [۱۸]. در سال‌های اخیر، چند مطالعه در مورد پایداری مواد فوق‌آب‌گریز تحت غوطه‌وری در آب گزارش شده است.

فن و همکارانش تغییرات زاویه تماس و مربوط به فیلم‌های فوق‌آب‌گریز را به عنوان تابعی از زمان غوطه‌وری در آب بررسی کردند [۳۷]. چو و همکارانش نشان دادند که فوق‌آب‌گریزی پوشش‌های مبتنی بر آلیاژ منیزیم پس از ۱۰ ساعت از بین نرفته است [۳۸]. شکل ۷ تغییرهای مقادیر زاویه تماس ایستا را بر حسب زمان غوطه‌وری برای نمونه بهینه را نشان می‌دهد. می‌توان دریافت که زاویه تماس پس از ۶ ساعت از 159.3° به 153.3° کاهش یافته است. در نهایت نمونه بهینه نشان داد که می‌تواند ماهیت فوق‌آب‌گریزی ($150^\circ >$ زاویه تماس) خود را پس از غوطه‌وری در آب طی مدت موردبررسی (حدود ۶ ساعت) حفظ کند.



شکل ۶ نمودار تغییرهای شار عبوری برحسب چرخه جداسازی نمونه بهینه

آزمایش پایداری غوطه‌وری در آب

یکی از چالش‌های اصلی در استفاده عملی از مواد فوق‌آب‌گریز، تضعیف فوق‌آب‌گریزی آن‌ها به دلیل غوطه‌وری طولانی مدت در آب است [۳۶]. وقتی مواد فوق‌آب‌گریز برای مدت طولانی با آب در تماس باشند، بسته‌های هوای محصور در حفره‌های مواد جاذب متخلخل به تدریج با ذره‌های آب

جدول ۲ درصد جداسازی و شار عبوری فاز روغن به دست آمده از سایر پژوهش‌ها

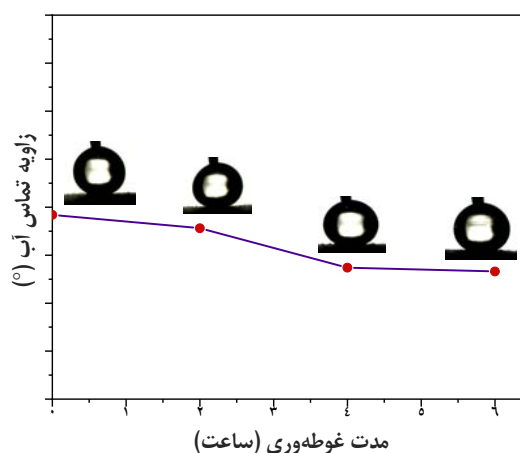
مرجع	شمار عبوری فاز روغن (l m ⁻² h ⁻¹)	درصد جداسازی	زاویه تماس ایستا (°)	جاذب
این پژوهش	۸۴۲۲/۳۸	۹۸/۳	159.2 ± 0.82	پومیس اصلاح شده با اکتادسیل تری کلروسیلان
[۳۳]	۶۱۲۰	۹۹/۵	152 ± 2	دیاتومیت اصلاح شده با اکتادسیل تری متوکسی سیلان
[۲۶]	-	۹۶/۶	154.0 ± 1.2	سنگ کوارتز اصلاح شده با نانوذره‌های سیلیکا فوق آب‌گریز
[۱۸]	۲۵۴۰	۹۵	163.8 ± 1.5	روی اکسید
[۳۴]	۱۴۴۰-۷۲۰۰	۱۰۰	160 ± 1	مش فلزی Cu _x S اصلاح شده با استتاریک اسید
[۳۵]	-	۹۵	151 ± 5	مش فلزی CuCl اصلاح شده با دودکان تیول

اصلاح شده با زنجیره کربنی طولانی‌تر، بیشتر است. همان‌طور که اشاره شد، با افزایش کربن در زنجیره کربنی اصلاح‌کننده‌ها، کاهش انرژی سطح نیز بیشتر است، ولی استفاده با مقادیر بالا از این اصلاح‌کننده‌ها، می‌تواند موجب کاهش ویژگی‌های ترشوندگی موردنظر شود.

۳. نتیجه‌های عملیات انتهایی نشان داد که جداسازی آب و دی‌کلرومتان به‌صورت مقدار جداسازی و شار عبوری از نمونه بهینه برابر $98/3\%$ و $8422/38 \text{ lm}^{-2}\text{h}^{-1}$ بود.

۴. آزمایش‌های جداسازی انتهایی متوالی با تکرار ده مرتبه برای نمونه بهینه انجام شد و درصد جداسازی پس از ده چرخه جداسازی آب و دی‌کلرومتان، بیش از 92% بود. از طرفی با افزایش چرخه‌های جداسازی آب و دی‌کلرومتان، شار عبوری برای پومیس از $8422/38$ تا $3445/52 \text{ lm}^{-2}\text{h}^{-1}$ متغیر بود.

۵. برای بررسی پایداری ترشوندگی نمونه بهینه، آزمایش غوطه‌وری در آب در مدت ۶ ساعت انجام شد. زاویه تماس پس از ۶ ساعت از $159/2^\circ$ به $153/3^\circ$ کاهش یافت و نمونه بهینه نشان داد که می‌تواند ماهیت فوق‌آب‌گریزی ($150^\circ >$ زاویه تماس) خود را پس از غوطه‌وری در آب طی مدت مورد بررسی حفظ کند.



شکل ۷ تغییرهای زاویه تماس ایستا نمونه بهینه برحسب مدت غوطه‌وری در آب

نتیجه‌گیری

می‌توان نتیجه‌های به‌دست آمده از این پژوهش را به‌صورت زیر بیان کرد:

۱. با استفاده از طراحی یک عامل در یک زمان، دو عامل نوع اصلاح‌کننده و غلظت اصلاح‌کننده در گستره‌های معین، برای پومیس ارزیابی شد و شرایط بهینه برای پومیس با رفتار ترشوندگی فوق‌آب‌گریز و فوق‌روغن‌دوست با میانگین زاویه تماس $159/2 \pm 0/82$ به‌دست آمد.

۲. مقایسه نتیجه‌های دو اصلاح‌کننده‌های به‌کارگرفته‌شده که با هدف کاهش انرژی سطح استفاده شدند، مشخص کرد که میانگین زاویه تماس قطره آب قرارگرفته بر نمونه‌های

مراجع

- [1] Jamaly, S.; Giwa, A.; Hasan, S.W.; Journal of Environmental Sciences (China). 37, 15–30, 2015.
- [2] Chu, Z.; Feng, Y.; Seeger, S.; Angewandte Chemie - International Edition. 54, 2328–2338, 2015.
- [3] Chen, P.C.; Xu, Z.K.; Scientific Reports 3, 2776, 2013.
- [4] Ivshina, I.B.; Kuyukina, M.S.; Krivoruchko, A.V.; Elkin, A.A.; Makarov, S.O.; Cunningham, C.J.; Peshkur, T.A.; Atlas, R.M.; Philp, J.C.; Environmental Sciences: Processes and Impacts. 17, 1201–1219, 2015.
- [5] Wu, J.; An, A.K.; Guo, J.; Lee, E.J.; Farid, M.U.; Jeong, S.; Chemical Engineering Journal 314, 526–536, 2017.

- [6] Kayvani Fard, A.; Rhadfi, T.; Mckay, G.; Al-marri, M.; Abdala, A.; Hilal, N.; Hussien, M.A.; *Chemical Engineering Journal* 293, 90–101, 2016.
- [7] Gursoy-Haksevenler, B.H.; Arslan-Alaton, I.; *Water Science and Technology* 69, 1453–1461, 2014.
- [8] Zhang, Y.; Wu, B.; Xu, H.; Liu, H.; Wang, M.; He, Y.; Pan, B.; *Nano Impact* 3–4, 22–39, 2016.
- [9] Yao, X.; Chen, Q.; Xu, L.; Li, Q.; Song, Y.; Gao, X.; Quéré, D.; Jiang, L.; *Advanced Functional Materials* 20, 656–662, 2010.
- [10] Xue, Z.; Cao, Y.; Liu, N.; Feng, L.; Jiang, L.; *Journal of Materials Chemistry A*, 2, 2445–2460, 2014.
- [11] Navarathna, C.M.; Bombuwala Dewage, N.; Keeton, C.; Pennisson, J.; Henderson, R.; Lashley, B.; Zhang, X.; Hassan, E.B.; Perez, F.; Mohan, D.; Pittman, C.U.; Mlsna, T.; *ACS Applied Materials and Interfaces*, 12, 9248–9260, 2020.
- [12] Hadi, H.J.; Al-Zobai, K.M.M.; Alatabe, M.J.A.; *Current Applied Science and Technology* 20, 494–511, 2020.
- [13] Lundgren, M.; Allan, N.L.; Cosgrove, T.; *Langmuir* 23, 1187–1194, 2007.
- [14] Pouloupoulos, S.G.; Voutsas, E.C.; Grigoropoulou, H.P.; Philippopoulos, C.J.; *Journal of Hazardous Materials* 117, 135–139, 2005.
- [15] Nazhipkyzy, M.; Nurgain, A.; Florent, M.; Policicchio, A.; Badosz, T.J.; *Journal of Environmental Chemical Engineering* 7(3), 103074, 2019.
- [16] Gupta, V.K.; Suhas,; *Journal of Environmental Management* 90(8), 2313–2342, 2009.
- [17] Shayesteh, H.; Rahbar-Kelishami, A.; Norouzbeigi, R.; *Desalination and Water Treatment* 57, 12822–12831, 2016.
- [18] Velayi, E.; Norouzbeigi, R.; *Ceramics International* 44, 14202–14208, 2018.
- [19] Shayesteh, H.; Norouzbeigi, R.; Rahbar-Kelishami, A.; *Surfaces and Interfaces* 26, 101315, 2021.
- [20] Sepehr, M.N.; Amrane, A.; Karimaian, K.A.; Zarrabi, M.; Ghaffari, H.R.; *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers* 45, 635–647, 2014.
- [21] Guler, U.A.; Sarioglu, M.; *Journal of Environmental Health Science and Engineering* 12(79), 1-11, 2014.
- [22] Shayesteh, H.; Raji, F.; Rahbar-Kelishami, A.; *Surfaces and Interfaces* 22, 100806, 2021.
- [23] Soleimani, H.; Mahvi, A.H.; Yaghmaeian, K.; Abbasnia, A.; Sharafi, K.; Alimohammadi, M.; Zamanzadeh, M.; *Journal of Molecular Liquids* 290, 13–17, 2019.
- [24] Pratiwi, N.; Arief, S.; Wellia, D.V.; *ChemistrySelect* 5, 1450–1454, 2020.
- [25] Darmawan, A.; Rasyid, S.A.; Astuti, Y.; *Surface and Interface Analysis* 53, 305–313, 2021.
- [26] Liu, P.; Niu, L.; Tao, X.; Li, X.; Zhang, Z.; Yu, L.; *Applied Surface Science* 447, 656–663, 2018.
- [27] Çifçi, D.İ.; Meriç, S.; *Desalination and Water Treatment* 57, 18131–18143, 2016.
- [28] Shayesteh, H.; Rahbar-Kelishami, A.; Norouzbeigi, R.; *Journal of Molecular Liquids* 221, 1–11, 2016.
- [29] Zhu, H.; Duan, R.; Wang, X.; Yang, J.; Wang, J.; Huang, Y.; Xia, F.; *Nanoscale* 10, 13045–13054, 2018.
- [30] Jain, R.; Pitchumani, R.; *Langmuir* 34, 3159–3169, 2018.
- [31] Zhu, X.; Dudchenko, A.; Gu, X.; Jassby, D.; *Journal of Membrane Science* 529, 159–169, 2017.
- [32] Prince, J.A.; Bhuvana, S.; Anbharasi, V.; Ayyanar, N.; Boodhoo, K.V.K.; Singh, G.; *Water Research* 103, 311–318, 2016.
- [33] Li, J.; Cui, M.; Tian, H.; Wu, Y.; Zha, F.; Feng, H.; Tang, X.; *Separation and Purification Technology* 189, 335–340, 2017.
- [34] Khosravi, M.; Azizian, S.; Boukherroub, R.; *Separation and Purification Technology* 215, 573–581, 2019.

- [35] Chen, J.; Guo, D.; Huang, C.; Wen, X.; Xu, S.; Cheng, J.; Pi, P.; *Materials Letters* 233, 328–331, 2018.
- [36] Saleh, T.A.; Baig, N.; Alghunaimi, F.I.; Aljuryyed, N.W.; *RSC Advances* 10, 5088–5097, 2020.
- [37] Fan, Y.; He, Y.; Luo, P.; Chen, X.; Liu, B.; *Applied Surface Science* 368, 435–442, 2016.
- [38] Chu, Q.; Liang, J.; Hao, J.; *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 443, 118–122, 2014.