

سنتز نانوساختارهای هیدروکسید لایه‌ای دوگانه برای جذب رنگ بلور ویولت از محلول‌های آبی

احمد رئیسی وانانی^۱، سعید اسدپور^{۲*}، نرگس سرمست^۳ و معصومه کوراوند^۴

۱. دانشجوی کارشناسی ارشد شیمی تجزیه، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه شهرکرد، شهرکرد، ایران.

۲. استادیار شیمی تجزیه، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه شهرکرد، شهرکرد، ایران.

۳. دکتری شیمی آلی، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه شهرکرد، شهرکرد، ایران.

۴. دکتری شیمی تجزیه، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه شهرکرد، شهرکرد، ایران.

دریافت: بهمن ۱۴۰۰ بازنگری: مرداد ۱۴۰۱ پذیرش: شهریور ۱۴۰۱



10.30495/JACR.2022.1951080.2015



20.1001.1.17359937.1401.16.3.2.8

چکیده

وجود رنگ بلور ویولت در پساب صنایع متفاوت، افزون بر آلودگی محیط‌زیست، می‌تواند موجب بروز بیماری‌های متفاوتی در انسان و سایر موجودات شود. براین‌پایه، پژوهش در زمینه حذف و یا تخریب این آلاینده لازم به‌نظر می‌رسد. در پژوهش حاضر، کارایی هیدروکسیدهای لایه‌ای دوگانه اصلاح‌شده با سدیم‌دودسیل سولفات (LDH/SDS) به‌عنوان جاذب در حذف این آلاینده مطالعه شد. پس از سنتز جاذب و شناسایی آن با روش‌های پراش پرتو ایکس (XRD)، طیف‌سنجی فرسوخ تبدیل فوریه (FTIR) و میکروسکوپی الکترونی روبشی (SEM)، تأثیر عامل‌هایی مانند pH، زمان تماس و غلظت اولیه آلاینده با استفاده از طراحی آزمایش بررسی شد. برای یافتن بهترین مدل هم‌دمای داده‌های جذب، معادله‌های لانگمویر، فروندلیچ و تمکین ارزیابی شدند. برآزش داده‌ها با مدل‌های سینتیکی شبه‌درجه اول، شبه‌درجه دوم و نفوذ بین‌ذره‌ای صورت گرفت و پس از استخراج عامل‌های سینتیکی، بهترین مدل سینتیکی معرفی شد. نتیجه‌های به‌دست‌آمده از طراحی آزمایش و تحلیل آماری آن‌ها، اعتبار معادله درجه دوم به‌دست‌آمده را تأیید کرد. بررسی داده‌ها با استفاده از مدل‌های هم‌دما سینتیکی نشان داد جذب بلور ویولت بر جاذب (LDH/SDS) از مدل هم‌دما لانگمویر و مدل سینتیکی شبه‌درجه دوم پیروی می‌کند.

واژه‌های کلیدی: هیدروکسید لایه‌ای دوگانه کلسیم-آلومینیم-سدیم‌دودسیل سولفات، بلور ویولت، طراحی آزمایش

مقدمه

آریل‌متان از رنگ‌های پرکاربرد در صنایع متفاوت هستند [۱] و [۲]. بلور ویولت، از دسته رنگ‌های تری‌آریل‌متان است که به‌طور گسترده در صنایع نساجی، کاغذ، چرم، لوازم‌آرایی و

خانواده رنگ‌های آریل‌متان مشتق‌شده از ترکیب متان، شامل دی‌آریل‌متان، آمینوتری‌آریل‌متان و هیدروکسی‌تری-

بلور ویولت و مالاشیت گرین از محلول‌های آبی بهره گرفتند [۱۳]. فعالیت فتوکاتالیستی چندسازه هیدروکسید لایه دوگانه روی-آلومینیم-کربن فعال و روی-کروم-کربن فعال در زمینه تخریب آلاینده‌های آکریلین نارنجی، مالاشیت گرین، بلور ویولت، قرمز کنگو و متیل اورانژ از محلول‌های آبی در سال ۲۰۱۶ توسط علی‌خان و همکارانش گزارش شد. عملکرد این چندسازه، تخریب ۹۰ درصدی آلاینده‌های مذکور بود [۱۴]. با توجه به تنوع کاتیون‌های دو و سه‌ظرفیتی در ساختار لایه‌ها و همچنین، قابلیت تعویض آنیون‌های بین-لایه‌ای، این ترکیب‌ها می‌توانند به‌عنوان جاذب‌هایی ارزان و در دسترس با تنوع ساختاری بالا در حذف آلاینده‌ها استفاده شوند. براین پایه، در پژوهش حاضر از هیدروکسید لایه‌ای دوگانه کلسیم-آلومینیم اصلاح‌شده با ترکیب سدیم‌دودسیل سولفات به‌عنوان جاذب در حذف رنگ بلور ویولت از محلول‌های آبی استفاده شد.

بخش تجربی

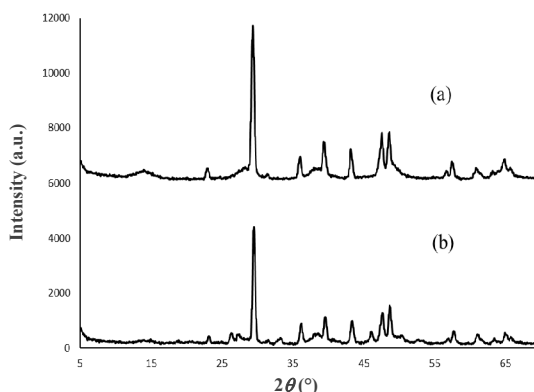
جاذب هیدروکسیدهای لایه‌ای دوگانه به سادگی و با استفاده از روش‌های متنوعی در آزمایشگاه سنتز می‌شوند. عمومی‌ترین روش سنتز این جاذب‌ها در آزمایشگاه، روش هم‌رسوبی شیمیایی است [۱۰ و ۱۳]. در این روش محلولی از کاتیون‌های موردنظر و آنیون بین‌لایه‌ای، در محیط قلیایی تحت هم‌زدن قرار می‌گیرد. قرارگیری کاتیون‌ها در ساختار لایه‌ای به همراه مولکول‌های آب و گروه‌های هیدروکسیل و امکان استفاده از آنیون‌های متفاوت در فضای بین‌لایه‌ای، منجر به ساخت جاذبی با سطح ویژه به‌نسبت بالا با ویژگی فیزیکی و شیمیایی متنوع می‌شود [۱۳]. در این پژوهش به‌منظور تهیه جاذب، دو محلول A و B تهیه شدند. محلول A شامل ۰/۰۳ مول کلسیم نیترات به همراه ۰/۰۱ مول آلومینیوم نیترات (نسبت ۱:۳) در ۱۰۰ میلی‌لیتر آب یون‌زدوده و محلول B شامل ۰/۰۰۲ مول سدیم‌دودسیل سولفات در

بهداشتی و صنایع دارویی استفاده می‌شود. این رنگ زیست‌تخریب‌پذیر نیست و برای مدت طولانی در محیط‌زیست باقی می‌ماند. وجود این آلاینده در پساب صنایع، افزون‌بر آلودگی محیط‌زیست، می‌تواند موجب بروز اثرهای جهش‌زایی و سرطان در انسان و سایر موجودات شود [۳]. حذف رنگ از محلول‌های آبی با روش‌های متفاوتی انجام می‌شود. روش جذب به‌عنوان روشی ساده، مقرون به‌صرفه و انعطاف‌پذیر یکی از متداول‌ترین روش‌های حذف آلاینده از محلول‌ها است، به‌ویژه اگر جاذب ارزان و در دسترس باشد [۴]. حذف رنگ بلور ویولت با جاذب‌های متفاوتی گزارش شده است. برای مثال، می‌توان به نانولوله‌های کربنی چنددیواره اصلاح‌شده [۵]، نانومیله‌های اکسید روی بارگذاری‌شده بر کربن فعال [۶]، زیست چندسازه هسته انبه [۷]، چندسازه بتونیت-آلژینات [۸]، نانوذره‌های نقره تثبیت‌شده بر کربن فعال [۹] و نانوذره‌های مغناطیسی Fe_3O_4/SiO_2 [۱۰] اشاره کرد. هیدروکسیدهای لایه‌ای دوگانه ترکیب‌هایی با ویژگی فیزیکی و شیمیایی متنوع هستند. ساختار لایه‌ای بی‌همتای این ترکیب‌ها آن‌ها را آماده داشتن ویژگی‌های مفیدی چون چگالی بار متغیر، قابلیت تورم در آب و تغییر فضای بین‌لایه‌ای با استفاده از تبدلات یونی بین‌لایه‌ای می‌کند. فرمول کلی این ترکیب‌ها به صورت $[M_{1-x}^{2+}M_x^{3+}(OH)_2(A^{n-})_{x/n}]^{x+}.mH_2O$ است که در آن M^{2+} کاتیونی دو ظرفیتی، M^{3+} کاتیون‌های سه‌ظرفیتی و A^{n-} آنیون‌های بین‌لایه‌ای هستند [۱۱]. در سال ۲۰۱۶ تان و همکارانش هیدروکسید لایه‌ای دوگانه منیزیم-آلومینیم نشانده‌شده بر بایوچار^۱های گیاهی را به‌عنوان جاذب در حذف رنگ بلور ویولت از محلول‌های آبی به‌کار بردند [۱۲]. در سال ۲۰۱۸ جورج و همکارانش از چندسازه هیدروکسیدهای لایه‌ای دوگانه روی-آلومینیم-نانوکربن برای حذف رنگ‌های

نتیجه‌ها و بحث

شناسایی جاذب

الگوی XRD ساختار بلوری جاذب LDH با کرنات بین- لایه‌ای^۳ و LDH با دودسیل سولفات بین لایه‌ای^۴ در شکل ۱ نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود الگوی Ca-Al-CO₃ پیک‌هایی در زوایای ۱۴، ۲۹ و ۳۶ نشان می‌دهد که با صفحه‌های ۰۰۳، ۰۰۶ و ۰۰۹ همخوانی دارد. LDH با دودسیل سولفات بین لایه‌ای پیک‌هایی در زوایای کوچک‌تر نشان می‌دهد که نشان‌دهنده افزایش فاصله بین لایه‌ای با وارد شدن دودسیل سولفات است. برپایه معادله براگ با افزایش فاصله بین لایه‌ای، زاویه نمایان شده در الگوی پرتو ایکس کاهش می‌یابد.



شکل ۱ الگوهای پراش پرتو ایکس Ca/Al/CO₃-LDH (a) و Ca/Al/SDS-LDH (b)

طیف‌های FTIR ساختار بلوری جاذب LDH با کرنات بین لایه‌ای^۱ و LDH با دودسیل سولفات بین لایه‌ای^۲ در شکل ۲ نشان داده شده است. طیف FTIR جاذب Ca-Al-CO₃ دارای پیکی در 1423 cm^{-1} است که مربوط به ارتعاش کرنات بین لایه‌ای است. همچنین، پیک پهن در 3421 cm^{-1}

۱۰۰ میلی لیتر آب یون زدوده بود. سپس محلول A به صورت قطره قطره به محلول B که روی همزن مغناطیسی با سرعت ملایم هم زده می‌شد، افزوده شد. سپس محلول سدیم هیدروکسید یک مولار و سدیم کرنات ۰/۳ مولار به صورت قطره قطره به محلول حاوی A و B که با دور شدید هم زده می‌شد، افزوده شد، تا جایی که pH محلول برابر با ۱۰ شد و عمل رسوب کردن اتفاق افتاد. تعلیق به دست آمده به مدت ۱۸ ساعت در دمای $60\text{ }^{\circ}\text{C}$ هم زده شد. رسوب به دست آمده پس از جداسازی و شستشو به گونه‌ای که pH محلول زیر صافی خنثی شود، به مدت ۱۸ ساعت در آون با دمای $80\text{ }^{\circ}\text{C}$ خشک شد.

برای طراحی آزمایش از بهینه‌سازی به روش سطح پاسخ^۱ با طرح فاکتوریل مرکزی^۲ استفاده شد. سه عامل غلظت آلاینده، مدت زمان تماس و pH بررسی شدند.

همه آزمایش‌ها در دما و حجم ثابت ($25\text{ }^{\circ}\text{C}$ و 50 میلی لیتر) انجام شد. جداسازی جاذب از نمونه با دستگاه گریزان (مدل Armaghan Teb Iranian) با سرعت ۳۵۰۰ دور در دقیقه انجام شد. برای تنظیم pH، از محلول‌های هیدروکلریک اسید و سدیم هیدروکسید استفاده شد و pH با دستگاه pH متر (ZAG CHEME PTR79) اندازه‌گیری شد.

غلظت رنگ بلور ویولت با داده‌های دستگاه طیف‌نورسنج (مدل Ultrospec3100) در طول موج 590 نانومتر ارزیابی شد. مقدار همخوانی داده‌ها با مدل‌های هم‌دمای لانگمویر، فروندلیچ و تمکین و همچنین، مدل‌های سینتیکی شبه مرتبه اول و شبه مرتبه دوم و نیز نفوذ بین ذره‌ای بررسی شد. با رسم نمودار بازده حذف در دماهای متفاوت، ترمودینامیک فرایند حذف بررسی و عامل‌های ترمودینامیکی آن استخراج شد.

جدول ۲ ماتریس طراحی آزمایش به‌دست‌آمده از روش طراحی مکعب مرکزی

آزمایش	pH	غلظت آنالیت (ppm)	زمان تماس (دقیقه)	درصد جذب
۱	۴	۱۰۰	۹۰	۹۶٫۳
۲	۴	۲۰۰	۹۰	۶۸٫۱
۳	۶	۵۰	۱۲۰	۹۸٫۰
۴	۶	۱۵۰	۶۰	۸۵٫۶
۵	۱۰	۱۵۰	۱۲۰	۸۶٫۷
۶	۶	۱۵۰	۱۲۰	۹۴٫۹
۷	۸	۱۰۰	۱۵۰	۹۷٫۱
۸	۶	۱۵۰	۱۲۰	۹۵٫۷
۹	۸	۲۰۰	۱۵۰	۷۸٫۱
۱۰	۶	۱۵۰	۱۲۰	۹۵٫۵
۱۱	۶	۱۵۰	۱۲۰	۹۵٫۶
۱۲	۴	۱۰۰	۱۵۰	۹۶٫۶
۱۳	۲	۱۵۰	۱۲۰	۸۳٫۷
۱۴	۸	۱۰۰	۹۰	۹۶٫۹
۱۵	۶	۱۵۰	۱۲۰	۹۷٫۲
۱۶	۸	۲۰۰	۹۰	۶۹٫۵
۱۷	۶	۲۵۰	۱۲۰	۵۰٫۲۲
۱۸	۶	۱۵۰	۱۸۰	۹۳٫۷
۱۹	۶	۱۵۰	۱۲۰	۹۵٫۶
۲۰	۴	۲۰۰	۱۵۰	۷۵٫۲

پیش‌بینی شده با نتیجه‌های تجربی، هم‌دما، سینتیک و عامل‌های ترمودینامیکی فرایند جذب نیز بررسی شدند.

جدول ۱ عامل‌ها و سطوح تعیین شده آن‌ها

عامل‌ها	کلید	سطح متغیرها				
		+α	۱	۰	-۱	-α
pH	X ₁	۱۰	۸	۶	۴	۲
غلظت آنالیت	X ₂	۲۵۰	۲۰۰	۱۵۰	۱۰۰	۵۰
زمان تماس	X ₃	۱۸۰	۱۵۰	۱۲۰	۹۰	۶۰

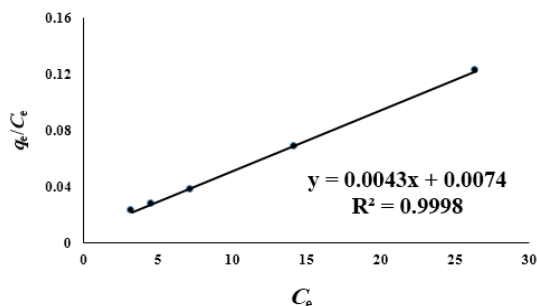
معادله زیر پیش‌بینی درصد حذف رنگ بلور ویولت با جذب Ca-Al-SDS منتج شده از طراحی آزمایش است.

$$Y = 95.46 + 0.7173X_1 - 11.96X_2 + 2.02X_3 + 0.3984X_1X_2 + 0.1746X_1X_3 + 1.9X_2X_3 - 2.76X_1^2 - 5.54X_2^2 - 1.66X_3^2$$
 در این معادله، Y درصد حذف رنگ بلور ویولت، X_3, X_2, X_1 به ترتیب pH، غلظت رنگ و زمان تماس هستند. برای معرفی بهترین مدل هم‌دما در جذب رنگ بلور ویولت بر Ca-Al-SDS، هم‌دماهای لانگمویر، فروندلیچ و تمکین بررسی شدند. معادله‌های این هم‌دماها و عامل‌های آن‌ها در جدول ۳ آورده شده است [۱۵].

جدول ۳ معادله‌های هم‌دماهای بررسی شده و عامل‌های مربوط به آن‌ها

نوع ایزوترم	معادله ایزوترم	عامل‌های مربوط
لانگمویر	$C_e/q_e = (1/q_{max}) C_e + (1/bq_{max})$	C_e : مقدار آنالیت باقی‌مانده در محلول پس از جذب q_e : مقدار آنالیت جذب شده در شرایط تعادل q_{max} : بیشینه ظرفیت جذب به‌وسیله جاذب b : ثابت لانگمویر
فروندلیچ	$\ln q_e = \ln k_f + (1/n) \ln C_e$	K_f : شاخص ظرفیت جذب n : شاخص شدت جذب
تمکین	$q_e = B \ln A + B \ln C_e$	B : ثابت تمکین A : ثابت پیوندی، نشان‌دهنده بیشینه انرژی پیوندی

نمودار هم‌دما لانگمویر به همراه معادله خط و ضریب تعیین در شکل ۴ آورده شده است.



شکل ۴ نمودار هم‌دما لانگمویر در جذب بلور ویولت بر Ca/Al/SDS-LDH

سینتیک فرایند جذب از دیگر عوامل موردتوجه در فرایند جذب است. براین پایه، سینتیک فرایند جذب رنگ بلور ویولت بر جاذب Ca/Al/SDS-LDH، با استفاده از محلولی از رنگ با غلظت ۱۵۰ میلی‌گرم بر لیتر و pH برابر ۶ در مدت ۱۲۵ دقیقه بررسی شد. برای معرفی بهترین مدل سینتیکی، مقادیر به‌دست‌آمده از آزمایش، با مدل‌های سینتیکی شبه‌درجه اول، شبه‌درجه دوم و نفوذ بین‌ذره‌ای انطباق داده شد. معادله‌های این مدل‌ها و عامل‌های مربوط به آن‌ها در جدول ۵ آورده شده است [۱۶].

مقادیر ضرایب تعیین (R^2) برای مدل‌های سینتیکی شبه درجه اول، شبه‌درجه دوم و نفوذ بین‌ذره‌ای به ترتیب برابر با ۰٫۹۹۸۹، ۰٫۷۷ و ۰٫۹۹۸۹ به‌دست آمد (جدول ۶). بر این اساس همخوانی داده‌ها با مدل سینتیکی شبه‌درجه دوم نسبت به سایر مدل‌های موردبررسی بیشتر بود و این مدل، به‌عنوان مدل سینتیکی غالب در فرایند جذب در نظر گرفته شد. نمودار این مدل سینتیکی به همراه معادله خط و ضریب تعیین در شکل ۵ آورده شده است.

نتیجه‌های استخراج‌شده از بررسی هم‌دماهای فرایند جذب که در جدول ۴ آورده شده است نشان می‌دهد ضریب تعیین نمودار به‌دست آمده از داده‌های تجربی برای مدل هم‌دما لانگمویر به یک نزدیک‌تر است. بر این پایه، این مدل هم‌دما به‌عنوان مدل هم‌دما غالب در فرایند جذب رنگ بلور ویولت بر جاذب Ca-Al-SDS معرفی شد.

جدول ۴ مقادیر به‌دست آمده از بررسی هم‌دماهای جذب بلور ویولت بر Ca/Al/SDS-LDH

جاذب	عامل	ایزوترم
Ca-Al-SDS		
۲۳۲٫۵۶	$q_{max}(mg/g)$	لانگمویر
۰٫۹۹۹۸	R^2	
۰٫۰۲۴	R_L	
۰٫۲۰۷	$b(l/mg)$	
۱۲۶	$K_F((mg/g)/(mg/l))$	فروندلیچ
۰٫۴۷۴	$1/n$	
۲٫۱۱	n	
۰٫۸۹۴۳	R^2	
۰٫۹۹	a	تمکین
-۲٫۶۷	b	
۰٫۹۲۴۴	R^2	

بررسی‌ها نشان می‌دهد مقدار همخوانی این داده‌ها با مدل هم‌دما لانگمویر بیشتر از سایر مدل‌های موردبررسی است. مشابه این نتیجه در پژوهش‌های دیگری در حذف بلور ویولت با جاذب هیدروکسیدهای لایه‌ای دوگانه گزارش شده است [۱۳ و ۱۸]. این نتیجه به‌منزله رد کردن مدل هم‌دما فروندلیچ نیست. برای مثال، نتیجه‌های پژوهستان و همکارانش در جذب بلور ویولت بر جاذب هیدروکسید لایه‌ای دوگانه نشان داد داده‌های تجربی جذب با هم‌دما فروندلیچ همخوانی بیشتری دارد که با نتیجه‌های به‌دست آمده از پژوهش حاضر، مغایرت نشان می‌دهد [۱۲].

جدول ۵ معادله‌ها و عامل‌های مدل‌های سینتیکی مورد بررسی

نوع مدل	معادله	عامل‌های مربوطه
شبه مرتبه اول	$\log(q_e - q_t) = \log q_e - (k_{p1}/2.303)t$	q_e = مقدار آنالیت جذب شده در زمان تعادل (mg/g) q_t = مقدار آنالیت جذب شده در زمان t (mg/g) k_{p1} = ثابت سرعت شبه مرتبه اول (min^{-1})
شبه مرتبه دوم	$t/q_t = 1/k_{p2}q_e^2 + (1/q_e)t$	k_{p2} = ثابت سرعت شبه مرتبه دوم (min^{-1})
نفوذ بین ذره‌ای	$q_t = k_{int}t^{1/2}$	k_{int} = ثابت سرعت نفوذ درون ذره است

حذف بلور ویولت با جاذب هیدروکسیدهای لایه‌ای دوگانه اصلاح شده با سدیم دودسیل سولفات نشان داد اثر افزایش دما بر مقدار جذب، یک اثر افزایشی است. با استفاده از داده‌های مقدار حذف رنگ با افزایش دما و رسم نمودار وانت هوف، عامل‌های ترمودینامیکی فرایند حذف محاسبه شد که نتیجه‌های آن در جدول ۷ آورده شده است.

بررسی عامل‌های ترمودینامیکی فرایند جذب نشان داد فرایند جذب بلور ویولت بر جاذب Ca/Al/SDS-LDH خودبخودی، گرماگیر و با کاهش بی‌نظمی همراه است (تغییرهای انرژی آزاد گیبس منفی و تغییرهای آنتالپی و آنتروپی مثبت).

جدول ۷ عامل‌های ترمودینامیکی جذب بلور ویولت بر جاذب

Ca/Al/SDS-LDH				
R^2	ΔS ($\text{kJ mol}^{-1} \text{K}^{-1}$)	ΔH (kJ mol^{-1})	$\Delta G \times 10^3$ (kJ mol^{-1})	T ($^{\circ}\text{C}$)
۰.۹۹۳۴	۱۹۸.۱۵۵۹	۲۹.۲۳۵۱	-۵۸.۱۰۶۰۰	۲۰
			-۶۰.۰۴۱۶	۳۰
			-۶۲.۰۲۳۲	۴۰
			-۶۴.۰۵۰۰	۵۰

نتیجه‌های تحلیل وردایی (ANOVA)

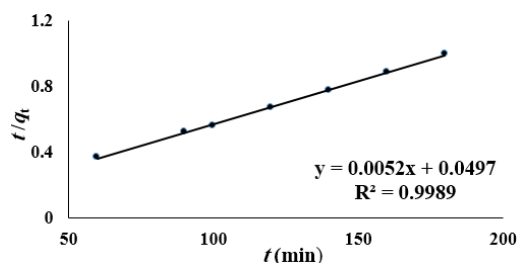
نتیجه‌های تحلیل وردایی (ANOVA) برای الگوی طراحی شده در جدول ۸ آورده شده است. درجه اهمیت هر متغیر با دو عامل F و P تعیین می‌شود. عامل P نشان‌دهنده

سال شانزدهم، شماره ۳، پاییز ۱۴۰۱

بررسی سینتیک فرایند جذب نشان داد سینتیک جذب رنگ بلور ویولت بر جاذب Ca/Al/SDS-LDH با مدل سینتیکی شبه مرتبه دوم ($R^2 = 0.999$) همخوانی بهتری دارد. این نتیجه برای جذب بلور ویولت بر انواع جاذب‌ها در پژوهش‌های دیگری نیز گزارش شده است [۱۹ و ۲۰].

جدول ۶ عامل‌های مرتبط با سینتیک جذب بلور ویولت با جاذب Ca-Al-SDS

جاذب	شبه مرتبه اول			شبه مرتبه دوم			نفوذ بین ذره	
	R^2	k_1	q_e	R^2	k_2	q_e	R^2	C
Ca-Al-SDS	۰.۹۹۹	۰.۰۴۱۳۲۱۹	۰.۹۶	۰.۹۹۸۹	۰.۰۰۵۱۹۲۳	۰.۹۶	۰.۷۷	۱۴۱.۳۷۳۳



شکل ۵ نمودار مدل سینتیکی شبه مرتبه دوم در جذب بلور ویولت بر جاذب Ca/Al/SDS-LDH

در آزمایش‌های جذب وابسته به دما، ΔH ، ΔS و ΔG با معادله وانت هوف محاسبه می‌شود [۱۷]. ΔH و ΔS به ترتیب با شیب و عرض از مبدأ نمودار $\ln k$ نسبت به $1/T$ قابل محاسبه است [۱۸]. بررسی اثر افزایش دما بر درصد

نشریه پژوهش‌های کاربردی در شیمی (JARC)

حذف بلور ویولت در پژوهش حاضر، نشان‌دهنده معتبر بودن معادله درجه دوم به‌دست‌آمده است. از دیگر عامل‌های آماری در برازش یک مدل R^2 و R^2 Adj. است. مقادیر به‌دست‌آمده برای این عامل‌ها در مدل طراحی‌شده به ترتیب برابر با ۰/۹۹۶ و ۰/۹۹۳ است که نشان‌دهنده دقت بالا برای این مدل است.

مقدار معناداری یک متغیر است. براین‌پایه، عبارت‌هایی که مقدار P آن‌ها کمتر از ۰/۰۵ باشند، معنادار هستند. همچنین، عامل F نشان‌دهنده انحراف داده از مقدار میانگین است. در این طراحی همه عبارات موجود مقادیر P کمتر از ۰/۰۵ را نشان دادند که گویای معنادار بودن آن‌ها است. نقص برازش یکی دیگر از عامل‌های مهم است که مجموع مربع‌های باقی‌مانده است [۱۹]. بی‌معنی بودن مقدار عدم‌تناسب برای

جدول ۸ نتیجه‌های تحلیل وردایی

منبع	مجموع مربع‌ها	درجه آزادی	میانگین مربع‌ها	مقدار F	مقدار P
مدل	۳۲۳۱/۹۸	۹	۳۵۹/۱۱	۲۹۰/۷۷	> ۰/۰۰۰۱
X_1	۸/۲۳	۱	۸/۲۳	۶/۶۷	۰/۰۲۷۳
X_2	۲۲۸۹/۹۸	۱	۲۲۸۹/۹۸	۱۸۵۴/۱۹	> ۰/۰۰۰۱
X_3	۶۵/۵۲	۱	۶۵/۵۲	۵۳/۰۶	> ۰/۰۰۰۱
X_1X_2	۱/۲۷	۱	۱/۲۷	۱/۰۳	۰/۳۳۴۵
X_1X_3	۰/۲۴۴	۱	۰/۲۴۴	۰/۱۹۷۵	۰/۶۶۶۲
X_2X_3	۲۸/۷۴	۱	۲۸/۷۴	۲۳/۲۷	۰/۰۰۰۷
X_1^2	۱۹۲/۰۴	۱	۱۹۲/۰۴	۱۵۵/۴۹	> ۰/۰۰۰۱
X_2^2	۷۷۱/۴۸	۱	۷۷۱/۴۸	۶۲۴/۶۶	> ۰/۰۰۰۱
X_3^2	۶۹	۱	۱/۲۴	۵۵/۸۷	> ۰/۰۰۰۱
باقی‌مانده	۱۲/۳۵	۱۰	۱/۸۷		
نقص برازش	۹/۳۵	۵	۰/۵۹۹۹	۳/۱۲	۰/۱۱۸۹
خطای خاص	۳	۵			
مجموع	۳۲۴۴/۳۳	۱۹			

نمودارها نشان می‌دهد با افزایش pH و زمان تماس، درصد حذف افزایش می‌یابد درحالی‌که اثر افزایش غلظت رنگ بر درصد حذف، یک اثر کاهشی است. برپایه این نمودارها، بالاترین درصد حذف رنگ در pH ۶ غلظت ۵۰ppm و زمان ۱۲۰min به‌دست می‌آید. تأثیر مثبت افزایش pH بر درصد حذف بلور ویولت در پژوهش‌های مشابه دیگر نیز گزارش شده است.

نمودارهای سه‌بعدی سطح پاسخ

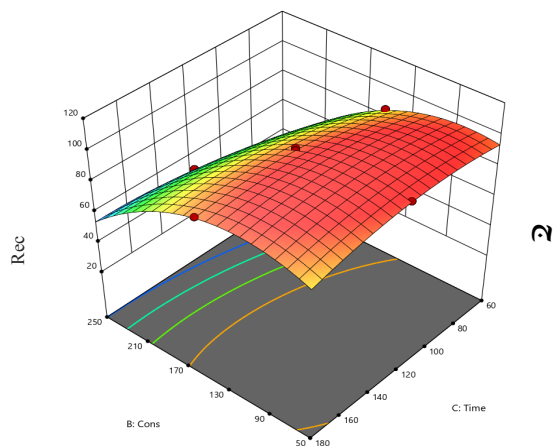
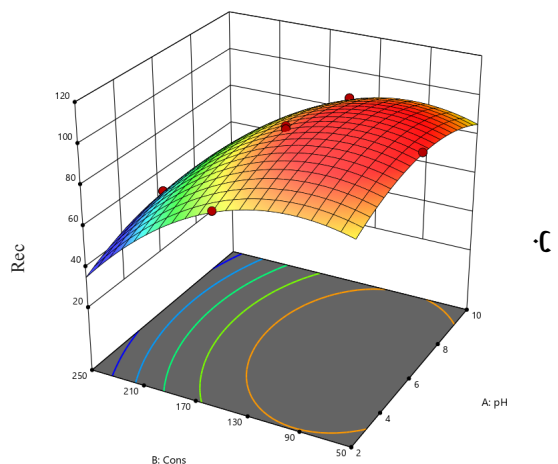
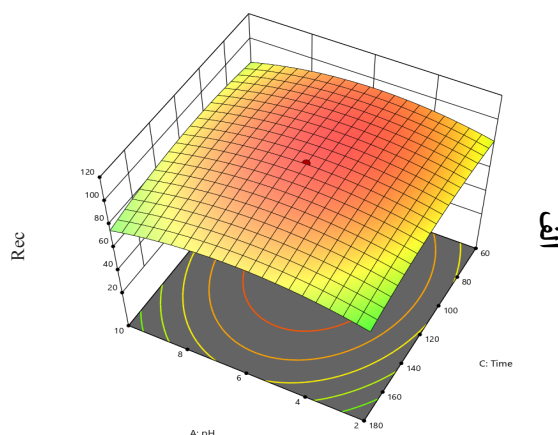
از دیگر منابع کاربردی در توصیف آزمایش‌های طراحی‌شده با طرح فاکتوریل مرکزی، نمودارهای سه‌بعدی سطح پاسخ است که برای تحلیل تأثیر عامل‌های متفاوت بر واکنش استفاده می‌شود.

شکل ۶ نمودارهای سه‌بعدی سطح پاسخ در بالاترین درصد برای توصیف واکنش جذب بلور ویولت بر هیدروکسیدهای لایه‌ای دوگانه اصلاح‌شده با سدیم دودسیل سولفات را نشان می‌دهد.

در پژوهش مالکی و همکارانش، pH بهینه در جذب بلور ویولت با استفاده از ریشاله‌های سدیم دودسیل سولفات پوشش داده شده با نانوذره‌های مغناطیسی Fe_3O_4/SiO_2 ، برابر با pH ۶ گزارش شد [۱۰]. تان و همکارانش بدون گزارش دادن یک pH ویژه، این اثر افزایشی را تأیید کرده‌اند [۱۲] درحالی که جورج و همکارانش، pH برابر با ۹ را به عنوان pH بهینه در جذب بلور ویولت بر Zn/Al-LDH پوشش داده شده با کربن گزارش کردند [۱۳]. اثر افزایشی بالا رفتن زمان تماس بر درصد حذف و اثر کاهشی در نتیجه افزایش غلظت آلاینده نیز در این پژوهش‌ها تأیید شده است.

نتیجه‌گیری

با توجه به تحلیل نتیجه‌های به دست آمده از طراحی آزمایش و بررسی عامل‌های مؤثر بر حذف رنگ بلور ویولت با جاذب Ca/Al/SDS-LDH به طور کلی با تنظیم pH بر ۶ و مدت ۱۲۰ دقیقه مقدار درصد جذب بسیار خوبی را مشاهده کردیم. با کاهش غلظت اولیه به ۵۰ ppm مقدار درصد جذب ۹۸ درصد به دست آمد و غلظت حدود ۱۰۰ ppm نیز ۹۶ درصد جذب به همراه داشت. این جاذب در شرایط بهینه pH برابر با ۶ دمای محیط و مدت ۱۲۵ دقیقه توانست در غلظت ۱۵۰ میلی‌گرم بر لیتر از رنگ، ۹۴ درصد رنگ را از محلول آبی حذف کند که بیشینه مقدار ظرفیت جذب به دست آمده در مدل هم-دمای لانگمویر برای جاذب هیدروکسید لایه‌ای دوگانه اصلاح شده با سدیم دودسیل سولفات، ۲۳۲/۵۶ میلی‌گرم بر گرم به دست آمد. قرار گرفتن سدیم دودسیل سولفات در بین لایه‌های هیدروکسید لایه‌ای دوگانه موجب افزایش فاصله بین لایه‌ای و بالابردن ظرفیت جذب شد. بررسی سینتیک و ترمودینامیک واکنش جذب نشان داد افزون‌براینکه داده‌ها از مدل سینتیکی شبه‌درجه دوم پیروی بیشتری دارند، جاذب Ca/Al/SDS-LDH می‌تواند در یک فرایند جذب خودبه‌خودی در تصفیه پساب حاوی رنگ بلور ویولت به کار گرفته شود.



شکل ۶ تأثیر عامل‌های pH و غلظت (الف)، تأثیر عامل‌های pH و زمان (ب) و تأثیر عامل‌های زمان و غلظت (ج) بر فرایند جذب بلور ویولت در حضور جاذب Ca/Al/SDS-LDH

است و لازم است از دانشگاه شهرکرد به دلیل کمک‌های مادی و معنوی برای انجام این مطالعه کمال تشکر و قدردانی را داشته باشیم.

سپاسگزاری

اطلاعات ارائه‌شده از کار پژوهشی صورت‌گرفته در گروه شیمی دانشکده علوم پایه دانشگاه شهرکرد به‌دست آمده

مراجع

- [1] Chaudhary, B.; Violet, T.E.; J. Interdiscipl. Cycle Res. 12, 390–396, 2020.
- [2] Bonin, A.M.; Farquharson, J.B.; Baker, R.S.U.; Mutat. Res. Toxicol. 89, 21–34, 1981.
- [3] Muthukumar, C.; Sivakumar, V.M.; Thirumarimurugan, M.; J. Taiwan Inst. Chem. Eng., 63, 354–362, 2016.
- [4] Brião, G.V.; Jahn, S.L.; Foletto, E.L.; Dotto, G.L.; J. Colloid Interface Sci. 508, 313–322, 2017.
- [5] Elmoubarki, R.; Mahjoubi, F.Z.; Elhalil, A.; Tounsadi, H.; Abdennouri, M.; Sadiq, M.; Qourzal, S.; A, Zouhri, A.; Barka, N.; J. Mater. Res. Technol. 6, 271–283, 2017.
- [6] Dil, E.A.; M, Ghaedi.; Ghaedi, A.; Asfaram, A.; Jamshidi, M.; Purkait, M.K.; J. Taiwan Inst. Chem. Eng. 59, 210–220, 2016.
- [7] Shoukat, S.; Bhatti, H.N.; Iqbal, M.; Noreen, S.; Microporous Mesoporous Mater. 239, 180–189, 2017.
- [8] Fabryanty, R.; J. Environ. Chem. Eng. 5, 5677–5687, 2017.
- [9] AbdEl-Salam, A.H.; Ewais, H.A.; Basaleh, A.S.; J. Mol. Liq. 248, 833–841, 2017.
- [10] Maleki, S.; Falaki, F.; Karimi, M.; J. Nanostructure Chem. 9, 129–139, 2019.
- [11] Sabna, V.; Thampi, S.G.; Chandrakaran, S.; Ecotoxicol. Environ. Saf. 134, 390–397, 2016.
- [12] Tan, X.; J. Environ. Manage. 184, 85–93, 2016.
- [13] George, G.; Saravanakumar, M.P.; Environ. Sci. Pollut. Res. 25, 30236–30254, 2018.
- [14] Khan, S.A.; Khan, S.B.; Asiri, A.M.; RSC Adv. 6, 83196–83208, 2016.
- [15] Foo, K.Y.; Hameed, B.H.; Chem. Eng. J. 156, 2–10, 2010.
- [16] Qiu, H.; Lv, L.; Pan, B.; Zhang, Q.-J.; Zhang, W.; Zhang, Q.-X.; J. Zhejiang Univ. A 10, 716–724, 2009.
- [17] Palapa, N.R.; Taher, T.; Rahayu, B.R.; Mohadi, R.; Rachmat, A.; Lesbani, A.; Bull. Chem. React. Eng. Catal. 15, 525–537, 2020.
- [18] Das, S.; Dash, S.K.; Parida, K.M.; ACS Omega. 3, 2532–2545, 2018.
- [19] Dean, A.; Voss, D.; Draguljić, D.; "Design and Analysis of Experiments", Springer, New York, 1999.
- [20] Puri, C.; Sumana, G.; Appl. Clay Sci. 166, 102–112, 2018.
- [21] Marco-Brown, J.L.; Chem. Eng. J. 333, 495–504, 2018.
- [22] Kulkarni, M.R.; Revanth, T.; Acharya, A.; Bhat, P.; Resour. Technol. 3, 71–77, 2017.

Synthesis of layered double hydroxide nanostructures for adsorption of crystal violet dye from aqueous solutions

Ahmad Raeisi¹, Saeid Asadpour^{2,*}, Narges Sarmast³, Masoumeh Kooravand⁴

1. M.Sc. Student of Analytical Chemistry, Department of Chemistry, Faculty of Science, University of Shahrekord, Shahrekord, Iran.
2. Assistant Prof. of Analytical Chemistry, Department of Chemistry, Faculty of Science, University of Shahrekord, Shahrekord, Iran.
3. PhD of Organic Chemistry, Department of Chemistry, Faculty of Science, University of Shahrekord, Shahrekord, Iran.
4. PhD of Analytical Chemistry, Department of Chemistry, Faculty of Science, University of Shahrekord, Shahrekord, Iran.

Abstract: The presence of crystal violet dye in various industries wastewater causes environmental pollution and various diseases in humans and other organisms. Therefore, research about the elimination or destruction of this pollutant is necessary. In present study, the efficiency of layer double hydroxides modified with sodium dodecyl sulfate (LDH/SDS) as adsorbent was studied to remove this pollutant from wastewater. After synthesis of the adsorbent, it was characterized with instrumental techniques such as X-ray diffraction (XRD), Fourier transformation of infrared spectroscopy (FTIR), and scanning electron microscopy (SEM). The effect of parameters such as pH, contact time, and initial concentration was studied with experimental design. Langmuir, Freundlich, and Tamkin's equations were estimated in order to find the best isotherm model for absorption data. Experimental data were fitted with Pseudo-First-Order, Pseudo-Second-Order, and interparticle diffusion kinetic models, and the best kinetic model was presented. The validity of equation was confirmed with the results of experimental design and their statistical analysis. Analysis of the data showed that the adsorption of crystal violet on LDH/SDS follows Langmuir isotherm model and Pseudo-Second-Order kinetic model.

Keywords: Ca/Al/SDS Layered double hydroxide, Crystal Violet, Experimental design