



دانشگاه آزاد اسلامی واحد تبریز  
فصلنامه آلودگی‌های محیطی و توسعه پایدار شهری

دوره ۱، شماره ۲، پیاپی ۲  
تابستان ۱۴۰۳، صفحات ۹۷-۱۰۷

## "مقاله پژوهشی"

# سنتز آهن صفر ظرفیتی بارگذاری شده بر روی نانولوله‌های کربنی و بررسی کارایی آن در حذف یک آلاینده رنگزا

زهره قاضی طباطبایی\*

استادیار گروه شیمی، واحد اهر، دانشگاه آزاد اسلامی، اهر، ایران

\* نویسنده مسئول مکاتبات: zghazi@iaau.ac.ir

(دریافت مقاله: ۱۴۰۳/۰۵/۲۴، پذیرش نهایی: ۱۴۰۳/۰۶/۱۰)

## چکیده

در این مطالعه آهن صفر ظرفیتی بارگذاری شده بر روی نانولوله‌های کربنی به عنوان یک نانوجاذب سنتز شد و مورفولوژی آن با میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مورد بررسی قرار گرفت. کارایی نانوجاذب برای رنگ‌زدایی و حذف آلاینده رنگ راکتیو نارنجی ۱۲۲ مورد بررسی قرار گرفت. بهینه‌سازی متغیرهای عملیاتی مانند مقدار نانوجاذب، غلظت اولیه رنگ و pH به روش طراحی آزمایش بر پایه سطح پاسخ و روش باکس-بنکن انجام شد. حداکثر راندمان حذف در شرایط بهینه ۸۶/۱۶٪ بدست آمد. با استفاده از روش تحلیل واریانس موثرترین پارامتر شناسایی گردید. برای پیش‌بینی میزان حذف، مدلی با استفاده از آنالیز رگرسیون چند متغیره ارائه گردید.

**واژه‌های کلیدی:** نانولوله‌های کربنی، روش باکس-بنکن، آهن صفر ظرفیتی، راکتیو نارنجی ۱۲۲

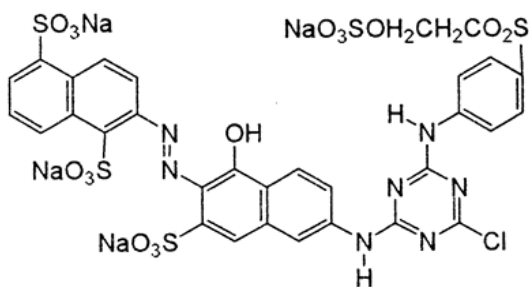
## مقدمه

با افزایش چشمگیر جمعیت و توسعه سریع فعالیت‌های صنعتی، آلودگی آب و ارتباط آن با بیماری‌های انسانی، مهم‌ترین مسئله زیست‌محیطی پیش روی جوامع انسانی می‌باشد (۱). پساب‌های صنعتی حاوی ترکیبات رنگی یکی از عمده‌ترین آلاینده‌های محیط زیست به شمار می‌روند، زیرا صنایع نساجی به دلیل استفاده گسترده از ترکیبات رنگی، طیف متنوعی از آلاینده‌های پایدار تولید می‌کنند (۲). متداول‌ترین گونه‌های رنگی مورد استفاده از رنگ‌های گروه آزو<sup>۱</sup> است که معمولاً به دلیل ارزان بودن، رنگرزی ساده و ... به طور گسترده‌ای برای رنگرزی الیاف یا در صنایع غذایی و دارویی مورد استفاده قرار می‌گیرند (۳-۴). این گونه ترکیبات رنگی سمی بوده و معمولاً به سختی تجزیه می‌شوند و به علت تجزیه طولانی مدت آن‌ها فاضلاب این صنایع نباید بدون تصفیه در محیط زیست رها گردد در غیر این صورت می‌تواند صدمات جبران‌ناپذیری به محیط زیست وارد کنند. روش‌های متداول مورد استفاده برای تصفیه فاضلاب‌های صنعتی رنگی شامل روش‌های بیولوژیکی (۵)، فرایندهای غشایی (۶)، جذب سطحی (۷)، انعقاد (۸) و فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته (۹) می‌باشند. رنگ‌های راکتیو معمولاً کروموفورهای بر پایه آزو هستند که با انواع مختلفی از گروه‌های راکتیو ترکیب می‌شوند و برای رنگرزی ابریشم و نخ بکار می‌روند (۱۰). جذب این مواد بر روی توده‌های بیولوژیکی ضعیف بوده و تحت شرایط هوای تجزیه نمی‌شوند (۱۱). در این رابطه، کاربرد فرایندهای شیمیایی نظیر انعقاد و لخته‌سازی به دلیل محدودیت

کاربرد و تولید لجن و یا فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته با توجه به هزینه بالا و کارایی کم در حذف رنگ‌های دیسپرس و پیگمنت با مشکلاتی مواجه است. از میان فرایندهای مورد استفاده در حذف رنگ، فرایند جذب سطحی از نظر هزینه اولیه، سادگی طراحی، بهره‌برداری آسان و حساس نبودن به مواد شیمیایی و سمی، مقبولیت زیادی دارد (۱۲). فرایند جذب سطحی، فرایند انتقال مولکول‌های رنگ از فاز محلول به سطح مشترک بین دو فاز جامد و مایع می‌باشد. با توجه به پیشرفت‌های علمی انجام شده در زمینه نانوذرات، در سال‌های اخیر تحقیقات بسیاری برای تهیه نانوجاذب‌های جدید با کارایی و طول عمر بیشتر صورت گرفته است. امروزه استفاده از نانوذرات آهن صفر ظرفیتی (nZVI)<sup>۲</sup> به دلیل فراوانی، ارزان بودن، عدم ایجاد سمیت و حذف آسان از محیط بسیار مورد توجه قرار گرفته است (۱۳). آهن صفر ظرفیتی یک عامل کاهش‌دهنده زیستی قوی است که به آسانی قابل دسترس است و به طور موثر آلاینده‌ها را تجزیه نموده، ضایعات بسیار کم تولید می‌کند (۱۴). با توجه به ماهیت مغناطیسی نانوجاذب‌های مغناطیسی و امکان استفاده از میدان مغناطیسی خارجی جهت جداسازی آلاینده‌های جذب سطحی شده و همچنین امکان بازیافت و استفاده مجدد از جاذب، سبب گردیده ترکیبات مذکور بسیار مقرون به صرفه باشند. تجمع نانوذرات مغناطیسی به صورت خوشه‌های بزرگ سبب کاهش انرژی سطح شده و مراحل سنتز را معمولاً به تاخیر می‌اندازد، بنابراین اصلاح سطح این نانوذرات راه حلی برای جلوگیری از این پدیده است. از سوی دیگر، استحکام و انعطاف‌پذیری نانولوله‌های کربنی از

<sup>2</sup> Nanoscale zero-valent iron<sup>1</sup> Azo

جمله ویژگی هایی است که نقش این نانوساختارها را در مهندسی فناوری نانو پررنگ تر می کند. خواص ویژه و منحصر به فرد نانولوله های کربنی از جمله مدول یانگ بالا و استحکام کششی خوب از یک طرف و طبیعت کربنی آن ها (به این دلیل که کربن ماده ای است کم وزن، بسیار پایدار و ساده برای انجام فرایندها با هزینه تولید ارزاتر نسبت به فلزها)، باعث شده که در دو دهه گذشته شاهد پژوهش های مهمی در به کارگیری نانولوله های کربنی در زمینه های گوناگون باشیم (۱۵ و ۷). این پژوهش ها نشان داده اند ویژگی های ذاتی نانولوله های کربنی را حتی می توان با اصلاح سطحی و یا ساختاری به طور گسترده ای بهبود بخشید و آن ها را برای دستیابی به راندمان بالا برای کاربردهای خاص بکار گرفت (۱۶).



شکل (۱): ساختار مولکولی RO122

#### - دستگاه ها

بنابراین در این مطالعه، به منظور افزایش کارایی جاذب، جلوگیری از تجمع نانوذرات آهن و نیز افزایش طول عمر آن ها از روش بارگذاری آهن صفر ظرفیتی بر روی نانولوله های کربنی استفاده شد. هم چنین برای ارزیابی نقش متغیرهای عملیاتی و بهینه سازی فرآیند حذف رنگ راکتیو نارنجی ۱۲۲ (RO122) از محلول آبی از طراحی آزمایش به روش سطح پاسخ<sup>۲</sup> استفاده شد.

مطالعه مورفولوژی با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مجهز به طیف سنج نشر انرژی پرتو ایکس (EDX<sup>۳</sup>) شرکت ZEISS مدل Sigma VP انجام شد. غلظت رنگ راکتیو نارنجی ۱۲۲ و درصد حذف با استفاده از اسپکتروفوتومتر UV-Visible مدل DR5000 شرکت HACH آمریکا اندازه گیری شد. pH متر مدل Metrohm-691 مورد استفاده قرار گرفت. سانتیفریوژ ROTINA-380 برای جداسازی نانوذرات استفاده شد.

#### - روش ها

اکسید کردن نانولوله های کربنی تک دیواره (swCNTs) سطح خارجی نانولوله های کربنی از طریق روش های عامل دار کردن کووالانسی و غیر کووالانسی

بنابراین در این مطالعه، به منظور افزایش کارایی جاذب، جلوگیری از تجمع نانوذرات آهن و نیز افزایش طول عمر آن ها از روش بارگذاری آهن صفر ظرفیتی بر روی نانولوله های کربنی استفاده شد. هم چنین برای ارزیابی نقش متغیرهای عملیاتی و بهینه سازی فرآیند حذف رنگ راکتیو نارنجی ۱۲۲ (RO122) از محلول آبی از طراحی آزمایش به روش سطح پاسخ<sup>۲</sup> استفاده شد.

#### روش تحقیق

##### - مواد

نانولوله های کربنی تک دیواره از پژوهشگاه صنعت نفت تهران با خلوص ۸۵ درصد با قطر داخلی ۱۰ تا ۲۰ نانومتر و طول ۱۰ میکرومتر خریداری شد. سدیم بورهیدرید (NaBH<sub>4</sub>)، کلرید آهن ۶ آب

<sup>3</sup> Energy Dispersive X-ray Spectroscopy

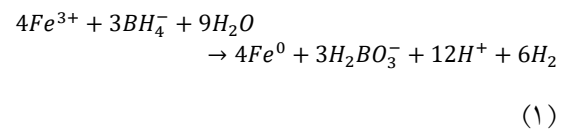
<sup>1</sup> Reactive Orange 122

<sup>2</sup> Response Surface Methodology

با گروه‌های عاملی اکسیژن‌دار اصلاح شدند. به این منظور و نیز برای حذف ناخالصی‌های موجود در نانولوله‌های کربنی و بهبود پراکندگی، فرایند اسیدشویی توسط  $HNO_3$  و  $H_2SO_4$  انتخاب شد. بدین منظور ۱ گرم از نانولوله‌ها به ۱۲۰ میلی‌لیتر اسید، شامل مخلوطی از  $HNO_3$  و  $H_2SO_4$  به نسبت ۱ به ۳، اضافه شد. مخلوط در حمام التراسونیک به مدت یک ساعت قرار گرفت تا نانولوله‌های کربن بطور کامل در آن توزیع شوند. پس از آن به مدت ۴ ساعت بر روی همزن مغناطیسی در دمای ۸۰ تا ۹۰ سانتی‌گراد مخلوط شد. در ادامه، نانولوله‌ها برای جداسازی محصولات ناخواسته در واکنش، رقیق و با آب دیونیزه چندین بار شستشو شدند تا pH نهایی به pH خنثی برسد و در نهایت در دمای ۸۰ سانتی‌گراد به مدت ۲۴ ساعت خشک شد (۷).

#### - تهیه نانوجاذب swCNTs-nZVI

مقدار ۱ گرم swCNTs در ۲۰ میلی‌لیتر محلول ۱ مولار از  $FeCl_3 \cdot 6H_2O$  به مدت ۲ ساعت بر روی همزن مغناطیسی همزده شد. آزمایشات تحت اتمسفر گاز نیتروژن انجام شد. سپس با محلول ۱ به ۱ اتانول و آب به میزان ۵ برابر رقیق شد. در مرحله بعد محلول  $NaBH_4$  (۱۰۰ میلی‌لیتر، ۰/۳ مولار) بصورت قطره‌ای به محلول فوق اضافه شد و تحت همزن مکانیکی به شدت همزده شد. نانوذرات آهن صفر ظرفیتی طبق معادله (۱) در سطح نانولوله‌های کربنی تشکیل گردید:



نانوجاذب تهیه شده صاف شده و با آب دیونیزه شستشو داده شدند و سپس مورد شناسایی قرار گرفتند.

#### - آماده‌سازی محلول

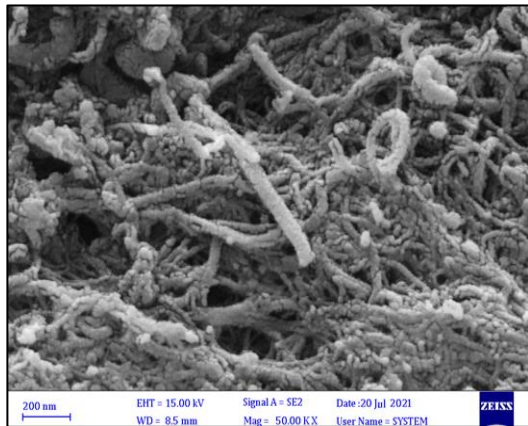
این مطالعه در مقیاس آزمایشگاهی انجام شد و از swCNTs-nZVI برای جذب سطحی و حذف RO122 از آب استفاده گردید. در این مطالعه اثر جرم جاذب، غلظت آلاینده رنگزا و pH مورد بررسی قرار گرفت. محلول  $100 \text{ mg L}^{-1}$  از RO122 در یک ظرف یک لیتری تهیه شد و سپس مقدار مشخص از نانوجاذب با توجه به نسبت جاذب به آلاینده انتخاب گردید. پس از مدت زمان‌های معین، مقدار مناسبی از محلول، نمونه‌برداری شد و پس از عمل سانتریفیوژ، مقدار جذب محلول با استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر تک شعاعی در طول موج جذب حداکثری RO122 (۴۸۵ nm) تعیین شد.

#### - روش جذب سطحی

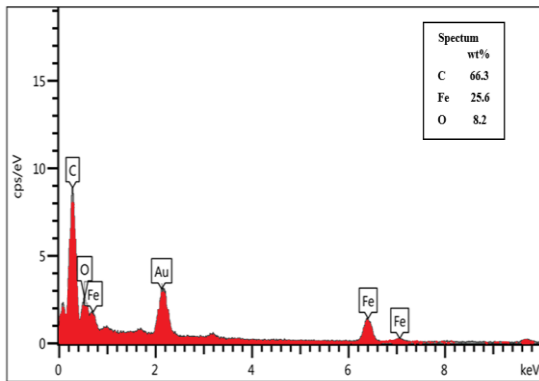
جذب سطحی RO122 بر روی نانوجاذب به روش ناپیوسته انجام شد. بدین منظور مقادیر مختلفی از نانوجاذب (۰/۰۵، ۰/۱ و ۰/۱۵ گرم بر لیتر) به محلول حاوی غلظت‌های مختلفی از RO122 (۱۰، ۲۰ و ۳۰ میلی‌گرم در لیتر) اضافه شد. pH محلول‌ها در ۵، ۷ و ۹ به ترتیب با افزودن کلریدریک اسید و سود ۰/۱ مول بر لیتر تنظیم شد. سپس محلول‌ها به مدت ۴۰ دقیقه بر روی همزن مغناطیسی هم زده شدند. پس از آن، نانوجاذب توسط سانتریفیوژ با سرعت ۳۰۰۰ دور در دقیقه از مخلوط جدا شد و محلول رویی صاف شد و جذب نمونه‌ها اندازه‌گیری شده و در نهایت درصد حذف محاسبه گردید.

#### - طراحی آزمایش

جهت بدست آوردن آثار اصلی و متقابل متغیرهای مستقل تأثیرگذار بر میزان پاسخ در بررسی حذف RO122 توسط فرآیند جذب سطحی از طراحی



شکل (۱): تصویر SEM نانوکامپوزیت swCNTs-nZVI



شکل (۲): الگوی EDX نانوجاذب swCNTs-nZVI

### - بهینه‌سازی به روش سطح پاسخ

طراحی آزمایش و بهینه‌سازی آزمایشات حذف RO122 توسط نانوجاذب swCNTs-nZVI تحت شرایط تعیین شده توسط طراحی روش باکس-بنکن<sup>۱</sup> (BBD) انجام شد. سطوح متغیرهای عملیاتی مطابق جدول (۱) تعیین گردید و آزمایش‌های جذب مطابق جدول (۲) طراحی شد.

آزمایش استفاده شد. آزمایشات مورد نیاز با استفاده از روش سطح پاسخ با نرم افزار DX-7 طراحی گردید. متغیرهای آزمایشی شامل غلظت اولیه رنگ، مقدار جاذب و pH در سه سطح مطابق جدول (۱) می‌باشد. آزمایشات انجام شده به همراه راندمان حذف در جدول (۲) ارایه شده است. بعد از تعیین شرایط بهینه و تحلیل آنالیز واریانس در ادامه مدل رگرسیونی چند متغیره مرتبه دوم برای فرایند حذف ارائه شد (۱۷ و ۱۸).

جدول (۱): متغیرها و سطوح آن‌ها در طراحی آزمایش

متغیر	محدوده و سطوح متغیرها		
	+۱	۰	-۱
[RO122] (mg L <sup>-1</sup> )	۳۰	۲۰	۱۰
[swCNTs-nZVI] (g L <sup>-1</sup> )	۰/۱۵	۰/۱	۰/۰۵
pH	۹	۷	۵

### نتایج و بحث

#### - مشخصه‌یابی swCNTs-nZVI

شکل (۱) تصویر SEM نانوجاذب سنتز شده (swCNTs-nZVI) را نشان می‌دهد. این شکل نشان دهنده نانوذرات آهن صفر ظرفیتی با اندازه‌های متفاوت می‌باشد که سطح نانولوله‌ها را پوشانده است. نتایج آنالیز EDX برای swCNTs-nZVI در شکل (۲) نشان داده شده است که پیک آهن صفر ظرفیتی بر روی نانولوله‌های کربنی مشهود است و نشان‌دهنده تثبیت موفق nZVI بر روی بستر swCNTs می‌باشد.

<sup>1</sup>Box-Behnken Design

جدول (۲): نتایج طراحی آزمایش‌های انجام شده مطابق روش BBD برای حذف RO122

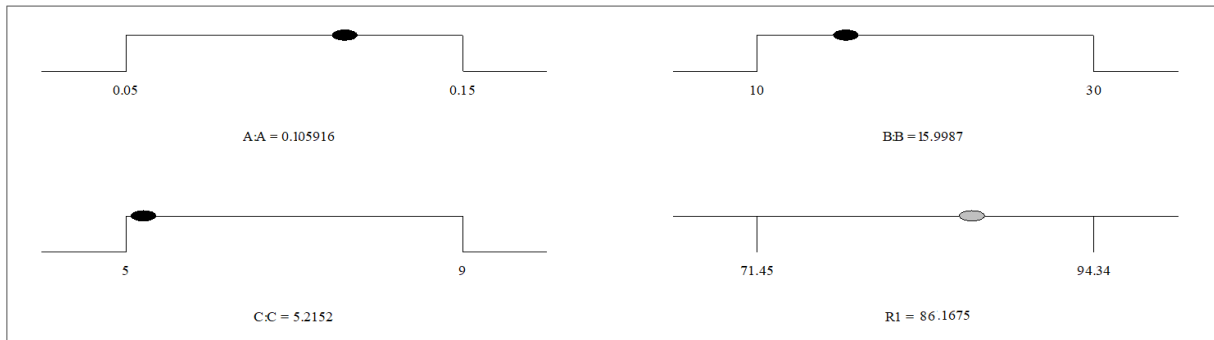
شماره آزمایش	پارامترهای عملیاتی			راندمان حذف (%)	
	[swCNTs-nZVI] (g L <sup>-1</sup> )	[RO122] (mg L <sup>-1</sup> )	pH	تجربی	پیش‌بینی شده
۱	۰/۱۵	۱۰	۷	۹۰/۲۱	۸۸/۹۳
۲	۰/۱۵	۲۰	۵	۹۲/۲۳	۹۱/۱۹
۳	۰/۱	۳۰	۵	۷۷/۴۷	۷۷/۶۴
۴	۰/۱	۱۰	۹	۷۳/۴۳	۷۳/۰۵
۵	۰/۱۵	۲۰	۹	۷۴/۳۲	۷۵/۷۸
۶	۰/۱۵	۳۰	۷	۷۷/۳۴	۷۸/۲۰
۷	۰/۰۵	۲۰	۵	۸۱/۴۳	۷۹/۹۸
۸	۰/۱	۲۰	۷	۸۶/۳۳	۸۶/۳۲
۹	۰/۱	۲۰	۷	۸۶/۳۲	۸۶/۳۲
۱۰	۰/۱	۱۰	۵	۹۴/۳۴	۹۶/۶۵
۱۱	۰/۰۵	۲۰	۹	۷۱/۴۸	۷۲/۴۸
۱۲	۰/۱	۲۰	۷	۸۶/۳۲	۸۶/۳۲
۱۳	۰/۰۵	۱۰	۷	۷۸/۶۷	۷۷/۸۰
۱۴	۰/۱	۲۰	۷	۸۶/۳۲	۸۶/۳۲
۱۵	۰/۰۵	۳۰	۷	۷۳/۵۴	۷۴/۸۴
۱۶	۰/۱	۳۰	۹	۸۰/۶۸	۷۸/۳۳
۱۷	۰/۱	۲۰	۷	۸۶/۳۲	۸۶/۳۲

تعداد ۱۷ آزمایش انجام شد که معادله چندجمله‌ای مرتبه دوم برای پیش‌بینی فرایند حذف RO122 پیشنهاد شد که در معادله (۳) ارائه شده است.

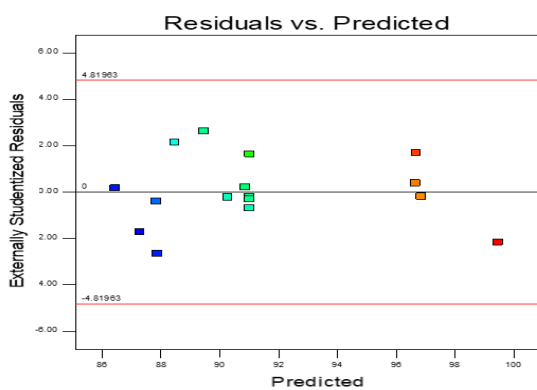
$$R (\%) = 124,25 - 11,02x_1 + 169,35x_2 - 0,18x_3 - 1,67x_1x_2 + 0,06x_1x_3 - 3,8x_2x_3 + 0,81x_1^2 - 536,7x_2^2 - 2,17 \times 10^{-3}x_3^2 \quad (3)$$

در این رابطه،  $x_1$  مقدار نانوجاذب،  $x_2$  مقدار غلظت اولیه RO122 و  $x_3$  مقدار pH می‌باشد.

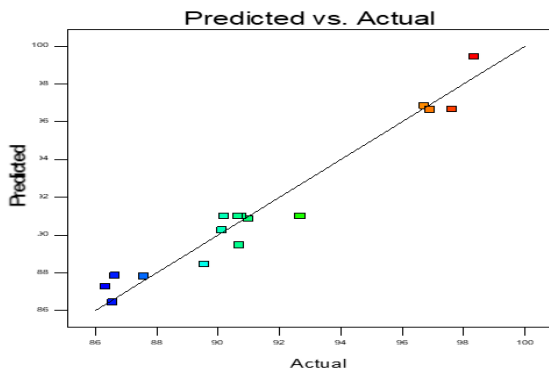
با توجه به نتایج بهینه‌سازی فرایند در شکل (۳) بیشترین راندمان حذف RO122 تحت شرایط بهینه  $pH = 5/2$ ، مقدار نانوجاذب برابر  $0/1 \text{ g L}^{-1}$  و میزان غلظت RO122 برابر  $16 \text{ mg L}^{-1}$  برابر با  $86/16\%$  بدست آمد. انجام آزمایش تجربی تحت شرایط بهینه نیز نشان داد که راندمان حذف  $87/25\%$  می‌باشد. با محاسبه میزان درصد خطا، می‌توان اعتبار مدل ارائه شده در معادله (۳) را در پیش‌بینی رفتار پارامترهای عملیاتی مشخص نمود.



شکل (۳): شرایط بهینه در حذف RO122



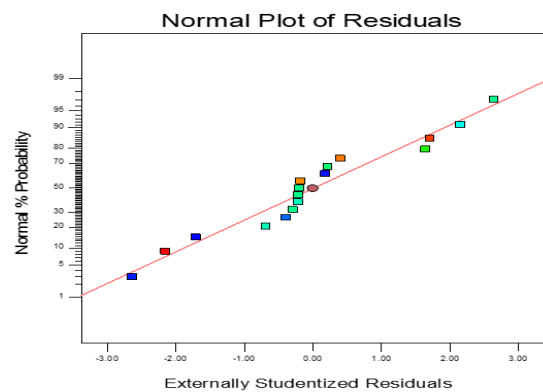
شکل (۵): نمودار مقادیر باقیمانده برحسب پاسخ پیش بینی شده



شکل (۶): نمودار مقادیر تجربی در مقابل مقادیر پیش بینی شده

در مجموع با توجه به تحلیل نمودارهای آماری می توان نتیجه گرفت که مدل پیشنهادی برای تحلیل داده ها مناسب می باشد. در مورد اثر متغیرهای عملیاتی در حذف RO122 همانطوری که در شکل (۷) نشان داده شده است می توان اظهار داشت که درصد حذف

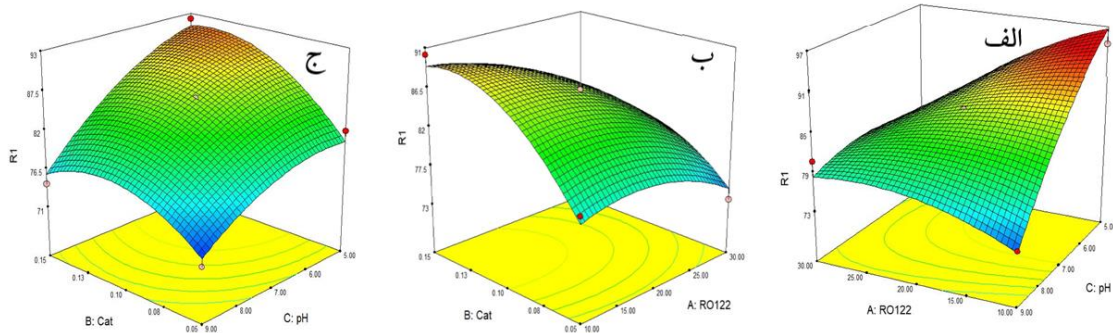
به منظور بررسی کیفی مدل آماری ارائه شده نمودار احتمال نرمال در شکل (۴) آورده شده است. با توجه به اینکه تمام نقاط روی نمودار بر روی یک خط مستقیم قرار دارند، فرض نرمال بودن باقیمانده ها تأیید می شود. شکل (۵) نشان دهنده مقادیر باقیمانده برحسب پاسخ پیش بینی شده است، این نمودار دارای پراکنندگی تصادفی بوده که نشان دهنده یک طیف ثابت از باقی مانده در سراسر نمودار می باشد. شکل (۶) نشان دهنده مقادیر واقعی در مقابل مقادیر پیش بینی شده توسط مدل می باشد که پیشتر در جدول (۲) نتایج آن ذکر گردید.



شکل (۴): نمودار احتمال نرمال

همچنین درصد حذف با افزایش دوز جاذب از ۰/۰۵ به ۰/۱۵ گرم بر لیتر افزایش می‌یابد.

RO122 با افزایش pH از ۵ به ۹ و افزایش غلظت رنگ از ۱۰ به ۳۰ میلی‌گرم بر لیتر کاهش می‌یابد.



شکل (۷): نمودار درصد حذف RO122 برحسب متغیرهای اصلی (دوز جاذب، غلظت اولیه رنگ و pH)

#### - آنالیز واریانس

در جدول (۳) نتایج آنالیز واریانس<sup>۱</sup> (ANOVA) ارائه شده است. از روی مقدار آماره F (F-value) و نیز مقدار p-value گزارش شده می‌توان دریافت که بیشترین تاثیر مربوط به متغیر pH بوده و سپس حاصل ضرب pH در غلظت RO122، دوز نانوجاذب و غلظت RO122 بر روی پاسخ تاثیر بیشتری دارند، در حالی که سایر متغیرها تاثیر قابل توجهی از خود نشان نمی‌دهند. با توجه به مقدار آماره F برای مدل ( $F = 27/41$ )، و نیز مقدار p-value (۰/۰۰۰۱) نشان می‌دهد که مدل به خوبی می‌تواند رفتار آزمایش‌های تجربی را پیش‌بینی نماید. همچنین در کنار آماره‌های F و p به منظور بررسی کیفیت مدل، پارامترهایی مانند ضریب همبستگی ( $R^2$ ) و سایر آماره‌ها نیز در جدول (۴) ارائه شده‌اند. مقدار نزدیک به یک ضریب  $R^2$ ، اختلاف کم‌تر از ۰/۲ مابین ضرایب  $R^2$  و بیش‌تر بودن Adeq Precision از عدد ۴، تاییدی بر اعتبار مدل پیشنهادی هستند.

شکل (۷ الف) نشان می‌دهد که با افزایش غلظت اولیه RO122 درصد حذف کاهش می‌یابد. زیرا به دلیل پوشیده شدن سطح نانوجاذب و خلل و فرج آن، با افزایش غلظت اولیه RO122 جایگاه لازم برای به دام افتادن مولکول‌های RO122 وجود نخواهد داشت. مطابق شکل (۷ ب) راندمان حذف RO122 با افزایش مقدار نانوجاذب swCNTs-nZVI از ۰/۰۵ تا ۰/۱۵ گرم بر لیتر افزایش یافته است. در واقع با افزایش مقدار جاذب در غلظت ثابت آلاینده، میزان سطح جاذب و خلل و فرج جهت بدام انداختن مولکول‌های RO122 بیش‌تر شده و راندمان حذف افزایش می‌یابد. به همین ترتیب هم‌چنین تغییرات راندمان حذف RO122 با pH در شکل (۷ ج) نشان می‌دهد که راندمان حذف در pH اسیدی بیش‌تر از محیط‌های قلیایی یا خنثی می‌باشد. زیرا برهمکنش‌های الکترواستاتیکی مناسبی میان مولکول‌های آنیونی RO122 و سطح با بار مثبت نانوجاذب در محیط اسیدی صورت می‌گیرد که باعث افزایش جذب سطحی مولکول‌های RO122 بر روی سطح نانوجاذب swCNTs-nZVI می‌شود.

<sup>1</sup> Analysis of Variance



جدول (۳): آنالیز ANOVA برای حذف RO122 توسط نانوجاذب

منبع واریانس	مجموع مربعات	درجه آزادی (DF)	میانگین مربعات	F-Value	p-value	سطح معنی داری
مدل	۷۶۹/۳۸	۹	۸۵/۴۹	۲۷/۴۱	۰/۰۰۰۱	معنی دار
دوز نانوجاذب	۱۰۵/۳۴	۱	۱۰۵/۳۴	۳۳/۷۸	۰/۰۰۰۷	
غلظت RO122	۹۴/۱۹	۱	۹۴/۱۹	۳۰/۲۰	۰/۰۰۰۹	
pH	۲۶۲/۲۰	۱	۲۶۲/۲۰	۸۴/۰۸	<۰/۰۰۰۱	
دوز نانو جاذب × غلظت RO122	۱۴/۹۸	۱	۱۴/۹۸	۴/۸۰	۰/۰۶۴۵	
دوز نانو جاذب × pH	۱۵/۶۴	۱	۱۵/۶۴	۵/۰۲	۰/۰۶۰۱	
غلظت RO122 × pH	۱۴۷/۵۴	۱	۱۴۷/۵۴	۴۷/۳۰	۰/۰۰۰۲	
(دوز نانو جاذب) <sup>۲</sup>	۶۶/۳۶	۱	۶۶/۳۶	۲۱/۲۸	۰/۰۰۲۴	
(غلظت RO122) <sup>۲</sup>	۲۴/۴۶	۱	۲۴/۴۶	۷/۸۴	۰/۰۲۶۵	
(pH) <sup>۲</sup>	۲۶/۰۶	۱	۲۶/۰۶	۸/۳۵	۰/۰۲۳۳	

جدول ۴- شاخص های برازش برای مدل ارائه شده در رابطه (۳)

Std. Dev.	۱/۷۷	R-Squared	۰/۹۷۲۴
Mean	۸۲/۱۵	Adj R-Squared	۰/۹۳۶۹
C.V. %	۲/۱۵	Adeq Precision	۱۷/۸۴۲

## نتیجه گیری

در مطالعه حاضر نانوجاذب نانولوله های کربنی بارگذاری شده با آهن صفر ظرفیتی تهیه گردید. کارایی این نانوجاذب در حذف رنگ RO122 به عنوان یک ترکیب مدل از آلاینده های رنگی محیط زیست مورد مطالعه قرار گرفت. برای تعیین شرایط بهینه حذف آلاینده از محلول آبی از روش طراحی آزمایش باکس-بنکن استفاده شد. مدلی برای پیش بینی میزان راندمان حذف RO122 پیشنهاد گردید. مطابق نتایج متغیر pH بیشترین تاثیر را در راندمان حذف RO122 دارد. زیرا در محیط های اسیدی سطح جاذب دارای بار مثبت شده و رنگ مورد نظر که آنیونی است با نیروی الکترواستاتیک قوی تری به سطح جاذب متصل شده و حذف می گردد. پیش بینی راندمان حذف RO122 توسط نانوجاذب با موفقیت با مدل مرتبه دوم انجام شد.

۱۰۵

## تعارض منافع

نویسنده هیچگونه تعارض منافی برای اعلام ندارد.

## منابع

- [1] Bahrami, M., Amiri, M.J., Dehkhodaie, F., 2021, Effect of different thermal activation on hydroxyapatite to eliminate mercury from aqueous solutions in continuous adsorption system. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 101, 2150.
- [2] Lim, L.B.L., Priyantha, N., Fang, X.Y., Mohamad Zaidi, N.A.H., 2017, Artocarpusodoratissimus peel as a potential adsorbent in environmental remediation to remove toxic Rhodamine B dye, *Journal of Materials and Environmental Science*, 8, 494.
- [3] Modirshahla, M., Behnaiady, M.A., Ghazi Tabatabaie, Z., 2006, Kinetic modeling on photooxidative degradation of C.I. Acid Yellow 23 by UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> process, *Journal of Physical & Theoretical Chemistry*, 2, 183.
- [4] Aanchal, Barman, S., Basu, S., 2020, Complete removal of endocrine disrupting compound and toxic dye by visible light active porous g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/H-ZSM-5 nanocomposite, *Chemosphere*, 241, 124981.

- Pilipović, D.D., Kerkez, D.V., Rončević, S.D., 2016, Removal of Ni(II) and Cu(II) from aqueous solutions using 'green' zero-valent iron nanoparticles produced by oak and mulberry leaf extracts. *Water Science and Technology*, 74, 2115.
- [14] Ma, F., Zhao, B., Diao, J., Jiang, Y., Zhang, J., 2020, Mechanism of phosphate removal from aqueous solutions by biochar supported nanoscale zero-valent iron, *RSC Advances*, 10, 39217.
- [15] Fallahnejad, Z., Bakeri, G., Ismail A.F., 2021, Thin film polyamide membranes containing modified manganese dioxide nanotubes for removal of sodium and copper ions, *Iranian Journal of Polymer Science and Technology*, 34, 155. (in Persian)
- [16] Lee, H.A., Park E., Lee H., 2020, Polydopamine and its derivative surface chemistry in material science: A focused review for studies at KAIST, *Adv. Mater.*, 32, 1907505.
- [17] Gupta, V.K., Nayak, A., Agarwal, S., Tyagi I., 2014, Potential of activated carbon from waste rubber tire for the adsorption of phenolics: Effect of pre-treatment conditions, *Journal of Colloid and Interface Science*, 417, 420.
- [18] Robati, D., Mirza, B., Rajabi, M., Moradi O., Tyagi I., Agarwal S., Gupta V.K., 2016, Removal of hazardous dyes-BR 12 and methyl orange using graphene oxide as an adsorbent from aqueous phase, *Chemical Engineering Journal*, 284, 687.
- [5] Padervand, M., Lammel, G., Bargahi, A., Mohammad-Shiri, H., 2019, Photochemical degradation of the environmental pollutants over the worm-like  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4\text{-Nd}_2\text{O}_3$  nanostructures, *Nano-Structures & Nano-Objects*, 18, 100258.
- [6] Kumar, A.N., Reddy, C.N., Mohan, S.V., 2015, Biomineralization of azo dye bearing wastewater in periodic discontinuous batch reactor: Effect of microaerophilic conditions on treatment efficiency, *Bioresource Technology*, 188, 56.
- [7] Zahednia, M., Ghazi Tabatabaei, Z., 2018, Investigation of BTEX removal from aqueous solution by single wall carbon nanotubes coated with ZnO, *Journal of Water & Wastewater*, 29, 1. (in Persian)
- [8] Khan, M.A., Ahmad, A., Umar, K., Nabi, S.A., 2015, Synthesis, characterization, and biological applications of nanocomposites for the removal of heavy metals and dyes, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 54, 76.
- [9] Cheikh S'Id, E., Kheribech, A., Degué, M., Hatim, Z., Chourak, R., M'Bareck, C., 2021, Removal of methylene blue from water by polyacrylonitrile co sodium methallylsulfonate copolymer (AN69) and polysulfone (PSF) synthetic membranes, *Progress in Color, Colorants and Coatings*, 14, 89.
- [10] Rezaei, M., Hosseini Shekarabi, F., Varsei, M., Samiee Bayragh, A., 2016, Investigating and comparing removal of Acid Red 37 with electrofenton and electrocoagulation processes. *Environmental Sciences*, 13, 85.
- [11] Adeyemo, A.A., Adeoye, I.O., Bello, O.S., 2017, Adsorption of dyes using different types of clay: A review, *Applied Water Science*, 7, 543
- [12] Kasperchik, V.P., Yaskevich, A.L., Bil'Dyukevich, A.V., 2012, Wastewater treatment for removal of dyes by coagulation and membrane processes, *Petroleum Chemistry*, 52, 545.
- [13] Poguberović, P.P., Krčmar, D.M., Dalmacija, B.D., Maletić, S.P., Tomašević-

**“Research article”**

**Synthesis of zero valent iron loaded on carbon nanotubes and its effectiveness in removing a dye pollutant**

**Zohreh Ghazi Tabatabaei\***

Department of Chemistry, Ahar Branch, Islamic Azad University, Ahar, Iran

\*Corresponding author: zghazi@iau.ac.ir@iaut.ac.ir

**Abstract**

In this study, zero-valent iron loaded onto carbon nanotubes was synthesized as a nano-adsorbent, and its morphology was investigated using a scanning electron microscope (SEM). The effectiveness of the nano-adsorbent for the decolorization and removal of the reactive orange 122 dye pollutant was examined. The optimization of operating variables, including the amount of nano-adsorbent, the initial concentration of the dye, and the pH, was conducted using an experimental design based on response surface methodology (the Box–Behnken method). The maximum removal efficiency under optimal conditions was 86.16%. Through variance analysis, the most influential parameter was identified. A model for predicting the removal efficiency was developed using multivariate regression analysis.

**Keywords:** Carbon nanotubes, Box–Behnken method, Zero valent iron, Reactive Orange 122.

**Conflict of interest:** None declared.