



سال چهاردهم، شماره ۵۵  
پاییز ۱۴۰۲، صفحات ۵۷-۴۹

دانشگاه آزاد اسلامی واحد اهر  
فصلنامه‌ی کاربرد شیمی در محیط زیست

## تعیین شرایط بهینه‌ی حذف مغناطیسی مالا شیت سبز از محلول‌های آبی توسط نانو مگنت با پوشش دی تیو کاربامات به روش طراحی آزمایش

نسیم ضیایی فر \*

گروه شیمی، واحد مراغه، دانشگاه آزاد اسلامی، مراغه، ایران

Email:nz1659@gmail.com

صابر خدایی آشان

گروه آمار، واحد مراغه، دانشگاه آزاد اسلامی، مراغه، ایران

دریافت: ۱۴۰۲/۰۷/۲۷ پذیرش: ۱۴۰۲/۱۰/۱۲

### چکیده

یکی از مشکلات عمده امروز بشر آلودگی منابع آب است، از جمله منابع آلاینده آب، رنگ‌ها می‌باشند که از خطرناک‌ترین گروه‌های ترکیبات شیمیایی یافت شده می‌باشند. مالا شیت سبز در اثر واکنش‌های گوناگون مواد جانی سمی تولید می‌کند. به دلیل سمیت بالای آن به لحاظ زیست محیطی اهمیت زیادی دارد. یکی از بهترین روش‌های حذف این مواد استفاده از فرایند جذب سطحی با استفاده از فناوری نانو می‌باشد. نانو ذرات آهن به دلیل فراوانی، ارزانی، غیر سمی بودن، واکنش سریع، توانایی و بازده بالا در تجزیه آلاینده‌ها و حذف رنگ‌ها از آب‌های آلوده چنین ویژگی را دارند. در این تحقیق سنتز نانو مگنت پوشش داده شده با دی تیو کاربامات و ارزیابی عملکرد آن در حذف مالا شیت سبز از محلول‌های آبی انجام یافت. ویژگی‌ها و ساختار نانو مگنت با پوشش دی تیو کاربامات توسط FTIR, XRD, SEM بررسی شد. عوامل تجربی شامل مقدار جاذب، مقدار آلاینده، زمان تماس و pH در سیستم ناپیوسته مورد مطالعه قرار گرفت. برای بررسی تعیین شرایط بهینه هر یک از این پارامترها روش تاگوچی مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد بیش‌ترین تاثیر، گرم جاذب و کم‌ترین تأثیر مربوط به زمان تماس است.

**کلید واژه:** مالا شیت سبز، نانو مگنت، محلول‌های آبی، تاگوچی.

می‌شود. بنابراین حفاظت با یک لایه غیر قابل نفوذ ضروری است. پوشش دار کردن نانو ذرات اکسید آهن با دی تیو کاربامات روش جدیدی است که می‌تواند بر این مشکلات غلبه کند [۵]. همانند تمام واکنش‌های شیمیایی، جذب سطحی نیز تحت تأثیر شرایط فیزیکی و شیمیایی فرایند قرار دارد. مانند؛ مساحت سطح جاذب، ماهیت ماده‌ی جاذب شونده، pH، غلظت اولیه‌ی جاذب شونده، گرم جاذب، زمان تماس، دما و ... با استفاده از طراحی آزمایش امکان حذف فاکتورهای غیر ضروری، محاسبه درصد اهمیت هر متغیر، تعیین میزان خطا و تعیین شرایط بهینه صورت می‌گیرد. انواع روش‌های طراحی آزمایش را می‌توان به صورت زیر طبقه‌بندی نمود: ۱- یک فاکتور در یک زمان ۲- چند فاکتور در یک زمان ۳- طراحی فاکتوریل کامل ۴- طراحی فاکتوریل جزئی برخی از زیر مجموعه‌های مورد چهارم عبارتند از: ۱- طراحی تاگوچی ۲- روش رویه پاسخ ۳- طراحی مخلوط

در روش تاگوچی با استفاده از آرایه‌های متعامد تعداد آزمایش‌ها بسیار کاهش می‌یابد. در این زمینه می‌توان به این کارهای تحقیقی اشاره کرد: ذولقرنین و همکارانش در یک کار تحقیقی با استفاده از برگ‌های درخت اوجا به عنوان جاذب، توانستند TI را از محیط‌های آبی حذف کنند. این محققان طراحی ترکیب مرکزی (CCD) را جهت بهینه‌سازی فرایند جذب زیستی مورد استفاده قرار دادند [۶]. ضیایی فر و همکارانش در پروژه‌ی خود روش RSM و تاگوچی را به منظور بررسی تأثیرات شرایط عملیاتی با استفاده از فرآیند جذب سطحی به کار بردند. آن‌ها از نانو ذره اکسید نیکل به عنوان جاذب در این کار استفاده کردند [۷].

غلامی و ضیایی فر حذف فنول از محلول‌های آبی با استفاده از نانو ذرات مغناطیسی اکسید گرافن اصلاح شده با مایعات یونی را بررسی کرده و بالاترین درصد حذف فنول در شرایط بهینه ۹۵٪ گزارش گردید [۸]. در این تحقیق در نظر داریم از روش جدید یعنی نانو مگنت پوشش داده شده برای حذف مالاشیت سبز از محلول‌های آبی استفاده کنیم. از

## مقدمه

مواد رنگزا از جمله آلاینده‌های زیست محیطی هستند که مواجهه انسان با بعضی از آنان از طریق آب و مواد غذایی می‌تواند مسمومیت‌های مزمن و گاهی حاد خطرناکی را ایجاد نمایند. روش‌های مختلفی مانند ترسیب، تعویض یون، فرآیندهای وابسته به غشاء، شناورسازی، استخراج مایع - مایع، اسمز معکوس، فرآیندهای الکتروشیمیایی، فرآیندهای بیولوژیکی و جذب سطحی برای حذف این مواد رنگزا از آب توسعه پیدا کرده‌اند. هرچند برخی از این تکنیک‌ها تنها آلودگی را از یک فاز به فاز دیگر منتقل می‌کنند [۱-۲]. میزان اثر کم به ویژه زمانی که در غلظت‌های پایینی از فلزات سنگین کار می‌شود، ضرورت استفاده از مواد شیمیایی گران بهاء در برخی از این روش‌ها و مشکلاتی از این دست از جمله موانعی هستند که بر سر راه این روش‌های مرسوم قرار دارند. با مقایسه‌ی این روش‌ها می‌توان به برتری روش جذب سطحی برای تصفیه آب نسبت به روش‌های دیگر پی برد، زیرا جذب سطحی روشی است ساده، آسان، محتمل و مقرون به صرفه، به ویژه اگر از جاذب‌های ارزان قیمت استفاده شود. در واقع در این فرآیند، آلاینده بر روی سطح جاذب جامد جذب می‌شود و از این طریق از محیط حذف می‌گردد که مقدار این جذب به نسبت ظرفیت جذبی جاذب شونده بر روی جاذب بستگی دارد. بعلاوه این فرآیند قادر به حذف یا کاهش آلاینده‌های مختلفی از محیط‌های آبی می‌باشد. [۴-۳]. نانو ذرات آهن به دلیل فراوانی، ارزانی، غیر سمی بودن، واکنش سریع و توانایی و بازده بالا در تجزیه آلاینده‌ها و حذف مواد رنگزا از آب‌های آلوده بیش‌تر مورد توجه قرار گرفته است. پایدار نگه داشتن این ذرات برای مدت طولانی بدون توده‌ای شدن یا رسوب کردن یک مسیله مهمی می‌باشد. مشکل اصلی در کاربرد فلزات خالص یا آلیاژها از ناپایداری آن‌ها نسبت به اکسیداسیون در هوا ناشی شده و قابلیت حساسیت به اکسیداسیون برای ذرات کوچک بیش‌تر

به مدت ۱۵ دقیقه تحت حمام آب یخ اولتراسونیک قرار می‌گیرد. پس از آن ۱۲ میلی‌لیتر آمونیاک و ۴۰۰ میکرو لیتر تترا اتیل اورتو سیلیکات به آن اضافه می‌شود. سوسپانسیون به مدت ۲ ساعت تحت حمام آب یخ اولتراسونیک قرار گرفته و سپس نانوذرات با ۳۰ میلی‌لیتر اتانول ۳ مرتبه شسته می‌شود و به وسیله آهن‌ربا جمع‌آوری می‌گردد و در دمای اتاق خشک می‌شود. به منظور سنتز نانوذرات آهن پوشش‌دار شده با دی‌تیوکاربامات حاصل از ۳-آمینو تری اتوکسی سیلان (APTES) و کربن دی سولفید، ابتدا سطح نانوذرات با ترکیب ۳-آمینو پروپیل تری اتوکسی سیلان مورد واکنش قرار داده می‌شود. به این منظور ۱۵۰ میلی‌گرم از نانوذرات مغناطیسی پوشش‌دار شده با دی اکسید سیلیس به ۵۰ میلی‌لیتر محلول ۲ درصد وزنی حجمی APTES در اتانول افزوده شد. مخلوط واکنش به مدت ۳ ساعت در دمای ۴۰ درجه سانتی‌گراد بهم زده شد. پس از آن ذرات آهن پوشش‌دار شده با ترکیب آمینی توسط اتانول شسته شده و به صورت مغناطیسی جمع‌آوری شدند. در مرحله آخر جهت تشکیل گروه دی تیو کاربامات، نانوذرات مغناطیسی پوشش‌دار شده با ترکیب آمینی ۶/۳ میلی‌گرم به مخلوط واکنش که شامل ۲۰ میلی‌لیتر سود ۰/۱ مولار، ۴ میلی‌لیتر ۲ پروپانل و ۰/۳ میلی‌لیتر کربن دی سولفید بود، اضافه گردید. سوسپانسیون حاصله برای مدت زمان ۶ ساعت بهم زده شد. ذرات پودر حاصله از سوسپانسیون تشکیل شده توسط مگنت خارجی جمع‌آوری گردیده و با ۲- پروپانل شسته شده و در دمای آزمایشگاه خشک گردیدند [۹].

- آزمایش‌های جذب

تمام آزمایش‌های جذب در سیستم ناپیوسته انجام گردید. آزمایشات جذب با اضافه کردن مقادیر متفاوتی از جاذب و آلاینده‌ی رنگرای مالاشیت سبز در دمای  $20 \pm 1^\circ\text{C}$  و pHهای مختلف در زمان‌های مختلف انجام گردید. بعد از صاف کردن نمونه آزمایشی توسط دستگاه اسپکتروفوتومتر جذب نمونه آزمایشی اندازه‌گیری شد. سپس درصد جذب

مزایای این جاذب نسبت به جاذب‌های دیگر می‌توان به سطح ویژه بسیار بالا و سهولت جداسازی از فاز محلول با آهن ربا اشاره کرد. همچنین شرایط بهینه آزمایشی در فرایند جذب سطحی مالاشیت سبز (GM) توسط نانو مگنت پوشش‌دار شده توسط طراحی آزمایش به روش تاگوجی بررسی شده است.

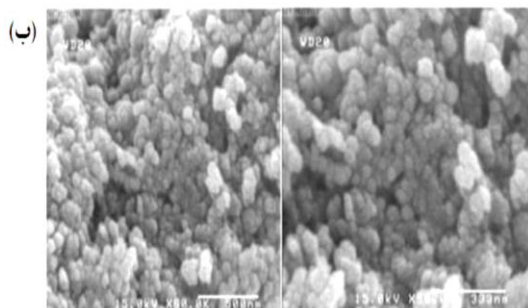
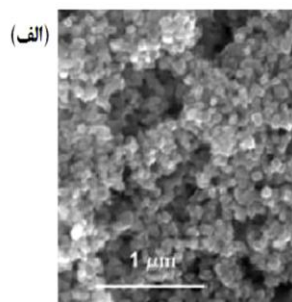
## مواد و روش‌ها

سولفات آهن ۲، پتاسیم نترات، تترا اتیل ارتو سیلیکات، ۳-آمینو پروپیل تری اتوکسی سیلان، سود، پتاس، آمونیاک، اتانول، کربن دی سولفید، ۲- پروپانول و مالاشیت سبز از شرکت مرک آلمان تهیه شد. طیف FTIR نمونه با دستگاه FTIR، مدل Shimadzu گرفته شد. جهت بدست آوردن ساختار کریستالی و اندازه‌ی تقریبی نانوذرات سنتز شده از روش طیف سنجی پراش اشعه‌ی ایکس استفاده شده است. قطر متوسط نانو ذرات از رابطه دمای شرر ۱ محاسبه می‌گردد:

$$n\lambda = 2 d \sin \theta \quad (1)$$

- سنتز نانو مگنت با پوشش دی تیو کاربامات

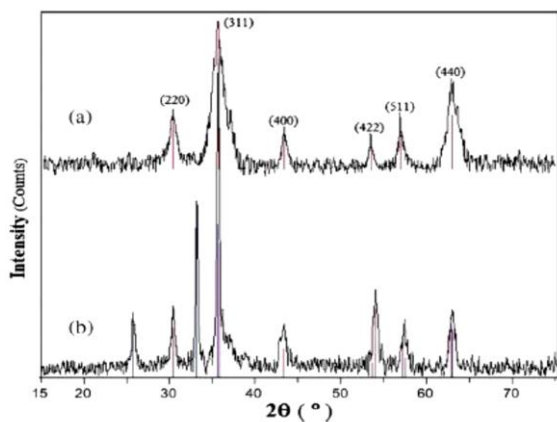
جهت سنتز نانومگنت با پوشش دی تیوکاربامات در یک بالن مجهز به گاز آرگون، ۵ گرم سولفات آهن ۲ اضافه کرده و ۳۵ میلی‌لیتر آب دی‌یونیزه اضافه می‌شود تا به طور کامل سولفات آهن حل شود. با استفاده از هیتر دمای واکنش به ۹۰ درجه سلسیوس می‌رسد و در این دما محلولی شامل ۰/۴۰۵ گرم پتاسیم نترات و ۲/۸ گرم پتاسیم هیدروکسید در ۲۵ میلی‌لیتر آب دی‌یونیزه که قبلاً تهیه شده است را در مدت زمان ۵ دقیقه به محلول سولفات آهن تحت گاز آرگون اضافه می‌شود و به مدت یک ساعت هم زده می‌شود و به مدت یک شبانه روز در دمای اتاق باقی می‌ماند و با آهن‌ربا نانو اکسید آهن را جدا کرده و با آب دی‌یونیزه شسته می‌شود و سپس خشک می‌شود. برای پوشش‌دار کردن نانوذرات اکسید آهن با سیلیکا، ۲۰۰ میلی‌گرم از این ذرات را در ۱۵ میلی‌لیتر اتانول پراکنده ساخته و سپس



شکل ۱: تصاویر SEM نانو مگنت خالص (الف) نانو مگنت با پوشش دی تیو کاربامات (ب)

### - طیف XRD

طیف XRD بر روی نمونه‌های تولیدی نانو مگنت و نانو مگنت با پوشش دی تیو کاربامات در شکل ۲ نشان داده شده است. همانطور که می‌بینیم زاویه‌های  $2\theta = 35/44$ ،  $30/8$ ،  $43/08$ ،  $53/54$ ،  $56/98$ ،  $6/68$  بالاترین پیک‌های منحنی هستند که مربوط به نانو مگنت خالص هستند. نانو مگنت پوشش داده شده با دی تیو کاربامات دارای یک سری پیک‌های اضافی است که مربوط به پوشش دی تیو کاربامات می‌باشد.



شکل ۲: طیف XRD نانو مگنت خالص (a) و نانو مگنت با پوشش دی تیو کاربامات (b)

طبق معادله ۲ محاسبه گردید. به طوریکه  $C_0$  و  $C_t$  به ترتیب غلظت اولیه و نهایی مالاشیت سبز می‌باشند.

$$R\% = \frac{(C_0 - C_t)}{C_0} \times 100 \quad (2)$$

- طراحی آزمایش به روش تاگوچی

طراحی آزمایشات تاگوچی، یکی از روش‌های مورد استفاده در مبحث طراحی آزمایشات است که اجرای آن در صنایع مختلف با موفقیت‌های زیادی همراه بوده است. تاگوچی مجموعه ویژه‌ای از طرح‌های کلی برای آزمایشات فاکتوریلی ایجاد کرده است که اغلب کاربردها را پوشش می‌دهد. آرایه‌های ارتوگونال، جزئی از این مجموعه طراحی‌ها می‌باشد.

استفاده از این آرایه‌ها ما را در تعیین کم‌ترین تعداد آزمایشات مورد نیاز برای مجموعه‌ای از فاکتورها یاری می‌کند. چهار متغیر مؤثر در فرآیند حذف مالاشیت سبز، شامل زمان تماس، مقدار جاذب، pH و مقدار آلاینده به عنوان متغیرهای اصلی در نظر گرفته شد که این آرایه با ۴ فاکتور در ۳ سطح تغییر می‌کند. هر سطر از ماتریس نشان دهنده‌ی یک آزمایش می‌باشد. در نتیجه جمعاً ۹ آزمایش با در نظر گرفتن شرایط سطوح برای بهینه‌سازی و تعیین درجه-ی تأثیر هر یک از فاکتورها لازم است. جهت کاهش خطا هر آزمایش ۲ بار تکرار شده است.

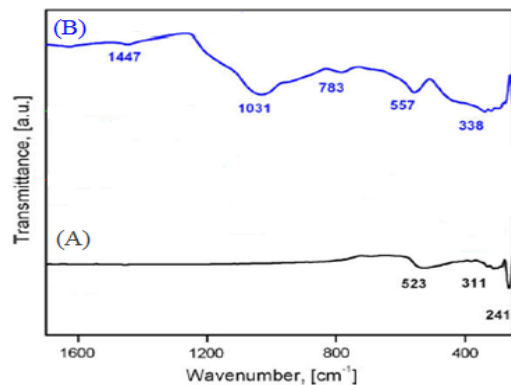
### یافته‌ها و بحث

- تصویر SEM

در شکل ۱ تصاویر SEM نانو مگنت با پوشش دی تیو کاربامات ستر شده نشان داده شده است. سطح این نانوذرات دارای سطحی زیر هستند که می‌تواند مربوط به وجود ذرات مکعبی منفرد پوشش دی تیو کاربامات در ساختار نانو مگنت باشد.

## - طیف FTIR

نتایج طیف FTIR نانو ذرات مگنت خالص و نانو ذرات مگنت پوشش داده شده با دی تیوکاربامات در شکل ۳ نشان داده شده است. همانطور که میبینیم طیف مادون قرمز نانو ذرات مگنت خالص دارای باندهای ارتعاشی در نواحی  $520$  و  $310$   $\text{cm}^{-1}$  مربوط به ارتعاش O-Fe است. طیف مادون قرمز نانو ذرات مگنت پوشش داده شده با دی اکسید گوگرد یک پیک با شدت بالا در ناحیه  $1031$   $\text{cm}^{-1}$  و باند ضعیف در  $783$   $\text{cm}^{-1}$  که به ترتیب مربوط به ارتعاشات کششی Si-SiO و Fe-O-Si است، مشاهده شد [۱۰]. وجود گروه کربن دی سولفید در گروه‌های آمینی یک پیک خیلی ضعیف در  $1447$   $\text{cm}^{-1}$  که مربوط به مد کششی N-C است، نیز ظاهر شد.



شکل ۳: طیف FTIR مگنتیت بر پایه نانو ذرات (الف) نانو مگنت خالص (ب) نانو مگنت با پوشش دی تیوکاربامات

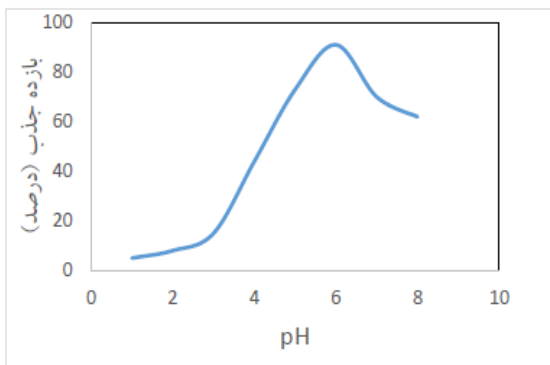
- بررسی متغیرهای تاثیر گذار بر فرایند حذف مالا‌شیت سبز توسط جاذب

به منظور بررسی روند حذف مالا‌شیت سبز از محلول‌های آبی توسط نانو مگنت پوشش داده شده با دی تیوکاربامات پارامترهای تجربی شامل pH، مقدار جاذب، زمان و مقدار آلاینده مورد بررسی قرار می‌گیرد.

- اثر pH محلول در فرایند حذف

اثر pH در کارایی جذب مالا‌شیت سبز در گستره ۱ تا ۸ بررسی شد و در شکل ۴ نشان داده شده است. طبق نتایج بدست آمده مشخص گردید که با افزایش pH محلول،

افزایش قابل توجهی در ظرفیت جذبی نانو ذرات مگنت پوشش داده شده با دی تیوکاربامات مشاهده می‌شود. در pHهای پایین تر از ۸ یون‌های هیدرونیوم در غلظت بالا با یون فلزی مالا‌شیت سبز رقابت می‌کنند و در نتیجه ظرفیت جذب پایین تری در pHهای اسیدی مشاهده شد. زمانی که pH افزایش می‌یابد، غلظت یون هیدرونیوم کاهش می‌یابد و مکان‌های فعال جذب مالا‌شیت سبز اساساً به فرم تفکیک نشده در می‌آید که در نتیجه آن مکان‌های جذبی نانو ذرات مگنت پوشش داده شده با دی تیوکاربامات تمایل بیش تری نسبت به مالا‌شیت سبز از خود نشان می‌دهند. دی تیوکاربامات‌ها در محیط‌هایی با pH کم تر از ۴ شروع به تجزیه شدن می‌نمایند و در pH کم تر از ۲ میزان تجزیه دی تیوکاربامات‌ها به بالاترین حد خود می‌رسد. بر این اساس در pH کم تر از ۴ ظرفیت جذبی نانو ذرات مگنت پوشش داده شده با دی تیوکاربامات پایین است. بیش ترین میزان جذب مالا‌شیت سبز در pH = ۶ صورت می‌گیرد بطوری- که بازده جذب مالا‌شیت سبز به ۹۱ درصد می‌رسد.



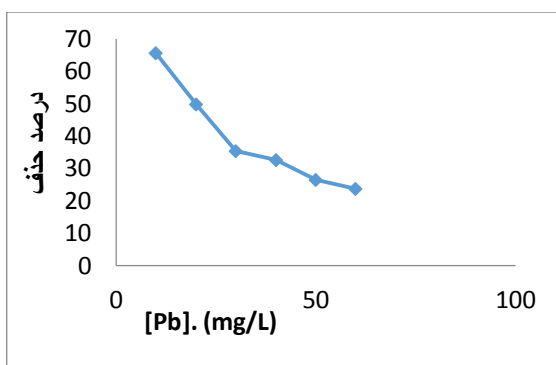
شکل ۴: تاثیر تغییرات pH محلول بر بازده جذب (مقدار جاذب ۰/۱ گرم، غلظت مالا‌شیت سبز ۱۰ mg/L و زمان تماس ۱۲۰ دقیقه)

- اثر زمان در فرایند حذف

شکل ۵ اثر زمان روی کارایی جذب مالا‌شیت سبز در گستره ۰ تا ۶۰ دقیقه را نشان می‌دهد. همان گونه که در شکل مشاهده می‌شود، در زمان‌های اولیه سرعت جذب بسیار بالاست. به طوریکه در ۳ دقیقه اول بیش از ۳۰ درصد و در ۲۰ دقیقه، ۷۰ درصد مالا‌شیت سبز از محلول جدا گردید. نتایج نشان داد که با گذشت زمان، ظرفیت جذب

- بررسی تأثیر غلظت اولیه‌ی مالاشیت سبز در فرایند حذف

تأثیر غلظت اولیه‌ی مالاشیت سبز بر میزان جذب سطحی آن بر روی نانو مگنت پوشش داده شده مورد بررسی قرار گرفته و نتایج بدست آمده در شکل ۷ قابل مشاهده است. بر طبق این شکل افزایش غلظت اولیه‌ی مالاشیت سبز موجب کاهش درصد حذف می‌گردد، چرا که با افزایش غلظت آلاینده مکان‌های فعال جاذب سریعتر اشغال شده و دیگر جاذب قادر به جذب سطحی بیش‌تری از آلاینده نمی‌باشد. در واقع اشباع شدن سطح جاذب مانع از جذب بیش‌تر می‌گردد. کاهش میزان حذف از ۶۵/۵۸ به ۲۳/۶۹٪ نشان دهنده‌ی این واقعیت است که تعداد مکان‌های فعال جاذب جهت جذب آلاینده محدود می‌باشد.

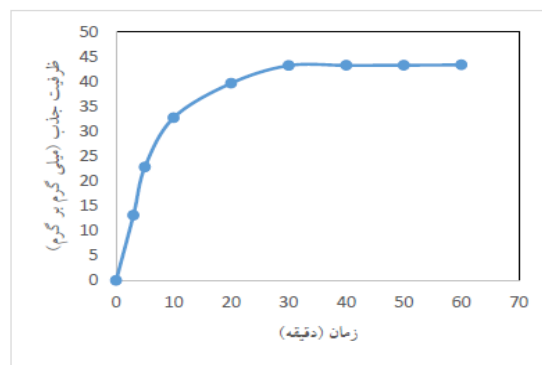


شکل ۷: تأثیر غلظت اولیه‌ی مختلف مالاشیت سبز بر درصد حذف (مقدار جاذب ۰/۱ گرم، غلظت مالاشیت سبز ۱۰ mg/L و pH = ۶)

- طراحی آزمایش حذف مالاشیت سبز از محیط‌های آبی از طریق جاذب نانو مگنت پوشش داده شده با دی

تیو کاربامات براساس خواص آرایه‌های متعامد به منظور کسب اطلاعات بیش‌تر در مورد بهینه سازی فرآیند حذف مالاشیت سبز از محیط‌های آبی از طریق جاذب نانو ذرات مغناطیسی اصلاح شده و تعیین سهم هر یک از پارامترهای مؤثر در فرآیند جذب سطحی از طراحی آزمایش با استفاده از روش تاگوجی بهره برده شده است. برای بدست آوردن تعداد آزمایش‌های لازمه از خاصیت آرایه‌های متعامد استفاده می‌شود. چهار متغیر مؤثر در فرآیند

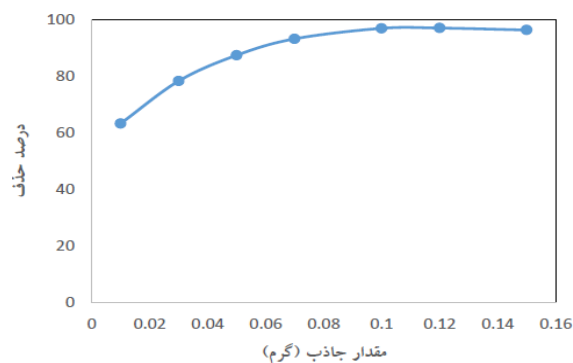
افزایش اما شدت جذب کاهش یافت تا این که بعد از ۳۰ دقیقه زمان تماس، ظرفیت جذب به ۴۳/۲۴ mg/g رسید و پس از آن مقدار جذب تقریباً ثابت ماند. بخاطر اینکه مکاهای فعال جذب مالاشیت سبز بر روی نانو ذرات مگنت پوشش داده شده با دی تیوکاربامات اشباع می‌گردد. بنابراین زمان تعادل جذب ۳۰ دقیقه است.



شکل ۵: تأثیر تغییرات زمان تماس بر ظرفیت جذب (مقدار جاذب ۰/۱ گرم، غلظت مالاشیت سبز ۱۰ mg/L و pH = ۶)

### اثر مقدار جاذب در فرایند حذف

هدف از بررسی این پارامتر، انتخاب کمترین مقدار جاذبی است که بیش‌ترین درصد حذف مالاشیت سبز را داشته باشد. نتایج نشان می‌دهد که با افزایش مقدار جاذب، درصد حذف مالاشیت سبز نیز افزایش می‌یابد. این پدیده را می‌توان به افزایش مکان‌های سطح تماس جاذب و افزایش بیش‌تر دسترسی به مکان‌های جذب توسط مالاشیت سبز نسبت داد. طبق نتایج حاصله مقدار ۰/۱ گرم جاذب به عنوان مقدار بهینه انتخاب گردید.



شکل ۶: تأثیر مقدار جاذب بر درصد حذف (مقدار جاذب ۰/۱ گرم، غلظت مالاشیت سبز ۱۰ mg/L و pH = ۶)

که هر فاکتور دارای درجه‌ی آزادی ۲ می‌باشد، در نتیجه کل درجه‌ی آزادی برابر با ۸ خواهد شد، از این رو آرایه‌ی مناسب، آرایه‌ی  $L_8$  خواهد بود. به منظور تعیین شرایط بهینه و تعیین سهم هر یک از پارامترهای تأثیرگذار در فرآیند حذف، از روش  $S/N$  و رسم نمودارهای مربوط به آن استفاده شده است. مقدار نسبت  $S/N$  با استفاده از معادله ۳ محاسبه شده و در جدول ۲ گزارش شده است.

$$\frac{S}{N} = -10 \log \frac{1}{r} \sum_{i=1}^r \frac{1}{Y_i^2} \quad (3)$$

$r$ : تعداد آزمایش  $y_i$ : نتیجه‌ی آزمایش  $i$ ام برای هر یک از تعداد آزمایش

حذف مالاشیت سبز شامل اثر زمان تماس، مقدار نانو جاذب، pH و غلظت مالاشیت سبز به عنوان متغیرهای اصلی در نظر گرفته شد. هر یک از این فاکتورها نیز در سطح مورد بررسی قرار گرفته که فاکتورهای مورد استفاده و سطوح آن‌ها در جدول ۱ آورده شده است.

جدول ۱- فاکتورها و سطوح آن‌ها برای طراحی آزمایش

فاکتور	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳
مقدار جاذب (gr)	۰/۰۲	۰/۱	۰/۱۴
مقدار آلاینده (mg/L)	۱۰	۳۰	۶۰
زمان تماس (min)	۱۰	۴۰	۵۰
pH	۱	۶	۸

با در نظر گرفتن ۴ فاکتور در ۳ سطح تغییر برای هر کدام، باید آرایه‌ی متعامد مناسب برای آن انتخاب گردد. از آنجایی

جدول ۲- مقدار  $S/N$  برای آزمایش‌های مختلف

شماره آزمایش	۱	۲	۳	۴	۵	۶	۷	۸	۹
پاسخ $S/N$	۲۵/۶۱۹	۲۷/۸۳۴	۲۲/۷۵۷	۲۹/۸۱	۳۰/۲۴۴	۳۸/۶۹۴	۳۴/۷۲۹	۳۶/۹۸۱	۳۱/۱۰۵

در روش تاگوچی برای تعیین اثر هر یک از پارامترهای ورودی و سهم هر کدام از فاکتورها در میزان پاسخ، از آنالیز واریانس (ANOVA) استفاده می‌شود. نتایج آنالیز ANOVA در جدول ۵ گزارش شده است. همانطور که در جدول ۴ و شکل ۸ مشخص است، مقدار جاذب و مقدار آلاینده بیش-ترین تأثیر را در میان فاکتورهای انتخابی دارند. زمان کم-ترین تأثیر را در راندمان فرآیند حذف دارد.

متوسط مقدار  $S/N$  برای هر سطح از پارامترها به عنوان  $S/N$  پاسخ در جدول ۳ گزارش شده است.

جدول ۳- پاسخ آنالیز تاگوچی برای فرآیند جذب سطحی حذف مالاشیت سبز از طریق نانومگنت اصلاح شده

فاکتور	$S/N$ متوسط		
	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳
مقدار جاذب (gr)	۲۵/۴۰۳	۳۲/۹۱۶	۳۴/۶۹۶
زمان تماس (min)	۳۰/۰۵۲	۳۱/۶۸۶	۳۱/۲۷۷
مقدار آلاینده (mg/L)	۳۳/۷۶۵	۳۰/۰۰۸	۲۹/۲۴۳
pH	۲۹/۴۱۴	۳۳/۷۵۲	۲۹/۸۴۹

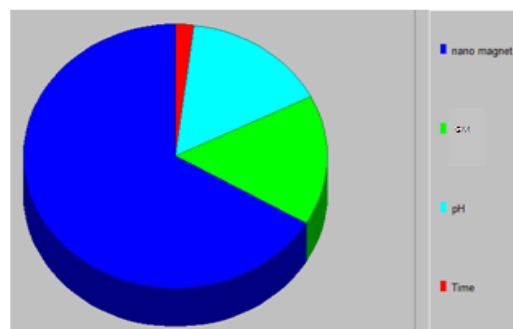
جدول ۵ - نتایج بدست آمده از تحلیل واریانس به منظور تعیین درصد تأثیر فاکتورهای مختلف در فرآیند حذف مالا شیت سبز از محیط‌های آبی به وسیله‌ی نانو مگنت اصلاح شده

فاکتور	DOF (f)	Sum of Squares(S)	Variance (V)	F-Ratio (F)	Pure Sum (S2)	Percent (P%)
مقدار جاذب (gr)	۲	۱۴۵/۹۶۲	۷۲/۹۸۱	-	۱۴۵/۹۶۲	۶۶/۴۴
زمان تماس (min)	۲	۴/۳۳۵	۲/۱۶۷	-	۴/۳۳۵	۱/۹۷۳
مقدار آلاینده (mg/L)	۲	۳۵/۱۴۲	۱۷/۵۷۱	-	۳۵/۱۴۲	۱۵/۹۹۷
pH	۲	۳۴/۲۴۸	۱۷/۱۲۴	-	۳۴/۲۴۸	۱۵/۵۸۶

موثر در راندمان حذف مالا شیت سبز، بیشترین تأثیر مربوط به مقدار جاذب و کمترین تأثیر مربوط به زمان می‌باشد. بنابراین روش تاگوچی ابزاری قدرتمند در تعیین شرایط بهینه حذف می‌باشد. پس نانو مگنت پوشش داده شده با دی تیو کاربامات می‌تواند یک جاذب خوب برای حذف مالا شیت سبز از محلول‌های آبی و پساب‌های صنعتی باشد.

#### سپاسگزاری

از دانشگاه آزاد اسلامی واحد مراغه بدلیل حمایت مالی و امکانات آزمایشگاه قدردانی می‌گردد.



شکل ۸: نمودار اهمیت فاکتورهای مؤثر در فرآیند حذف مالا شیت سبز به وسیله‌ی نانو مگنت اصلاح شده

با توجه به اینکه مقدار  $S_0^2$  برای پارامتر زمان تماس کم می‌باشد، می‌توان از این پارامتر در تخمین شرایط بهینه چشم پوشی کرد.

#### نتیجه‌گیری

نتایج حاصل از تحقیق حاضر نشان می‌دهد که نانوذره مگنت پوشش داده شده با دی تیو کاربامات می‌تواند به عنوان جاذب مؤثری جهت حذف مواد رنگ‌زا از منابع آب آلوده استفاده شود. در آزمایش‌های ناپیوسته، بهترین شرایط برای حذف مالا شیت سبز با غلظت ۱۰ mg/L و ۱ g/۰/۱ جاذب نانوذره مگنت پوشش داده شده با دی تیو کاربامات، زمان تعادل برابر ۳۰ دقیقه و pH برابر ۶ به دست آمد. طراحی آزمایش به روش تاگوچی نشان می‌دهد که از پارامترهای

#### منابع

- [1] Cheung, C.W., Porter, J.F. and McKay, G., 2001, Sorption kinetic analysis for the removal of cadmium ions from effluents using bone char. *Water Res.* 35, 605-612.
- [2] Qamar, M., M.A. Gondal and Yamani, Z.H., 2011, Synthesis of nanostructured NiO and its application in laser-induced photocatalytic reduction of Cr(VI) from water. *J. Mol. Catal. A.* 341, 83-88.
- [3] Ozacar, M. and Sengil, I.A., 2005, Adsorption of metal complex dyes from aqueous solutions by pine sawdust. *Bioresour. Technol.* 96, 791-795.
- [4] Mahmood, T., M.T. Saddique, A. Naeem, S. Mustafa, J. Hussain, and Dilara, B., 2011, Cation exchange removal of Zn from aqueous solution by NiO. *J. Non-Cryst. Solids.* 357, 1016-1020.
- [5] Penka, I., L. Girginova, Daniel-da-Silva, Cludia, B., 2010, Lopes, Paula Figueira, Marta Otero, S. Vitor, Amaral, Eduarda Pereira, Tito Trindade. Silica coated magnetite particles for magnetic removal of  $Hg^{2+}$  from water. *Journal of Colloid and Interface Science.* 345, 234-240.
- [6] Zolgharnein, J., N. Asanjarani, and Mousavi Mousavi, S.N., 2011, Optimization and characterization of Tl(I) adsorption onto modified ulmus carpinifolia tree leaves. *Clean - Soil, Air, Water,* 39, 250-258.
- [7] Ziaiefar, N., M. Khosravi, M.A. Behnajady, M.R. Sohrabi, Modirshahla, N., 2015, Optimizing adsorption of Cr(VI) from



aqueous solutions by NiO nanoparticles using Taguchi and response surface methods. *Water science and technology*, 721.

[8] gholami, L., Ziaefar, N., Sheikhoie, H., 2020, Removal of phenol from aqueous solutions by magnetic oxide graphene nanoparticles modified with ionic liquids using the Taguchi optimization approach *Water science and technology*, 81.2. 228-240.

[۹] احمدی، م.ج.، جرفی، س.، نکدستان، الف.، جعفرزاده حقیقی فرد،

ن.الف.، ۱۳۹۴، بررسی کارایی زیولیت طبیعی کلینویتیلولیت در حذف

فلز کادمیوم از محلول آبی و تعیین ایزوترمهای جذب. *مجله علمی و*

پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی ایلام، ۲۲، ۱۰۲، ۹.

[10] Mahmoud, M.E., 1999, Selective Solid Phase Extraction of Mercury (II) by Silica Gelimmobilized-Dithiocarbamate Derivatives. *Anal. Chim. Acta.* 398, 297–304.