

## بررسی کارایی و مکانیسم حذف رنگ اسید بلاک ۱ با استفاده از جاذب معدنی پامیس

محمد رضا سمرقندی<sup>۱</sup>، محمد نوری سپهر<sup>۲</sup>، منصور ضرابی<sup>۳</sup>، مهدی نوروزی<sup>۴</sup>، الهام شاهرخی<sup>۵</sup>، فرشته امرائی<sup>۵</sup>  
نویسنده مسئول: همدان، خیابان مهدیه، دانشگاه علوم پزشکی همدان، دانشکده بهداشت، گروه بهداشت محیط [mansor62@gmail.com](mailto:mansor62@gmail.com)

پذیرش: ۸۹/۰۷/۱۷

دریافت: ۸۹/۰۴/۲۳

### چکیده

**زمینه و هدف:** تصفیه فاضلاب های رنگی با استفاده از روش های موثر یکی از مهم ترین چالش های پیش روی مهندسان محیط زیست است. فرایند جذب سطحی یکی از موثرترین روش های حذف آلاینده های آلی از فاضلاب هاست. هدف اصلی این پژوهش بررسی کارایی سنگ آتشفشانی پامیس در حذف رنگ اسید بلاک ۱ از محیط های آبی بوده است.

**روش بررسی:** در این پژوهش از پامیس برای حذف یک نوع رنگ اسیدی از محلول های سنتتیک استفاده شده است. برای افزایش تخلخل جاذب مورد استفاده از اسید کلریدریک یک نرمال استفاده گردیده است. تاثیر غلظت اولیه رنگ،  $pH$  و زمان تماس بروی کارایی حذف رنگ مورد بررسی قرار گرفت.

**یافته ها:** نتایج نشان داد که کارایی حذف رنگ با افزایش زمان تماس و غلظت اولیه رنگ افزایش و با افزایش  $pH$  کاهش می یابد. از مدل های ایزوترمی فروندلیچ و لانگمیر برای محاسبه ثابت های تعادل استفاده گردید. نتایج نشان داد که حذف رنگ اسید بلاک ۱ از مدل ایزوترمی لانگمیر ( $R^2 > 0.98$ ) تبعیت می کند. مدل سازی مکانیسم نفوذ با استفاده از روش مدل نفوذ داخلی ذرات تعیین گردید. نتایج حاصل از این قسمت مشخص ساخت که نفوذ ذرات در داخل جاذب مرحله محدود کننده در جذب سطحی مولکول های رنگ اسید بلاک ۱ با استفاده از پامیس است.

**نتیجه گیری:** نتایج حاصل از پژوهش حاضر مشخص کرد که پامیس کارایی بسیار بالای در حذف رنگ اسید بلاک ۱ از خود نشان می دهد.

**واژگان کلیدی:** جذب سطحی، رنگ های آزو، سیستم ناپیوسته، نفوذ بین ذره ای، پامیس

۱- دکترای بهداشت محیط، استادیار دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان

۲- دکترای بهداشت محیط، استادیار دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی کرج

۳- کارشناس ارشد مهندسی بهداشت محیط، عضو هیات علمی دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی کرج

۴- کارشناس ارشد اپیدمیولوژی، دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی قم

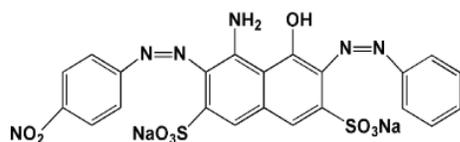
۵- دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی همدان

## مقدمه

پساب های صنعتی معمولا، یکی از عمده ترین صنایع آلاینده محیط زیست به شمار می روند. صنایع نساجی یکی از عمده ترین صنایع پایه هر کشور محسوب می شود و معمولا مشخصه اصلی پساب این نوع صنایع، رنگی بودن آنهاست، که به دلیل استفاده از مواد رنگی در این گونه صنایع می باشد. فاضلاب های رنگی در صنایع مختلفی از جمله صنایع نساجی و رنگرزی، صنایع داروسازی، صنایع غذایی، تولید مواد آرایشی و بهداشتی، کاغذ سازی، چرم سازی و صنایعی از این قبیل تولید می شوند (۱). فرایندهای رنگرزی، در حدود ۱۵ درصد از کل رنگ تولید شده وارد فاضلاب می شود و فاضلاب های رنگی به این صورت تشکیل می گردند (۲). اغلب رنگ های مورد استفاده در این صنایع از نوع رنگ های سنتتیک هستند. معمولا رنگ های سنتتیک به انواع رنگ های اسیدی، رنگ های راکتیو، رنگ های مستقیم، رنگ های بازی و سایر گروه ها تقسیم بندی می شوند (۳). مواد رنگزای مختلفی در صنایع استفاده می شود که معمول ترین آنها رنگ های گروه آزو است. رنگ های آزو یکی از بزرگترین گروه رنگ های سنتتیک را به خود اختصاص داده که دارای یک یا تعداد بیش تری باند آزو -N=N- هستند (۴). تخمین زده می شود که سالانه در حدود ۵۰ درصد رنگ های تولیدی در جهان (۷۰۰۰۰۰ تن) از نوع آزو باشند (۴ و ۵). مواد رنگ زای گروه آزو معمولا دارای یک یا چند پیوند آزو (-N=N-) هستند و به دلیل ارزان بودن، رنگرزی ساده و سمیت کم تر به طور گسترده ای، برای رنگ رزی الیاف مورد استفاده قرار می گیرند (۶ و ۷). عمدتا مواد رنگ زا دارای یک یا چند حلقه بنزنی هستند که به دلیل سمی بودن و دیر تجزیه بودن، چنانچه بدون تصفیه وارد محیط شوند، می توانند صدمات جبران ناپذیری به محیط زیست وارد کنند. بنابراین لازم است که این گونه پساب ها قبل از تخلیه به محیط زیست با استفاده از روش های مناسب مورد تصفیه قرار گیرند. تاکنون روش های مختلفی از جمله روش های بیولوژیک (۸ و ۹)، فرایند های غشایی (۱۰)،

فرایند های اکسیداسیون پیشرفته (۱۱-۶) و سایر روش ها برای تصفیه این گونه پساب ها مورد استفاده قرار گرفته است. فرایند جذب سطحی یکی از معمول ترین فرایند مورد استفاده در تصفیه آب و فاضلاب است. معمولا فرایند جذب سطحی روی کربن فعال انجام می گیرد. کربن فعال تجاری معمولا گران قیمت بوده و کاربرد آن نیاز به نیروی متخصص دارد. هم چنین استفاده مجدد از کربن فعال تجاری نیاز به احیای مجدد آن دارد که این امر باعث محدودیت استفاده از آن شده است درحالی که عمده ترین روش برای حذف آلاینده های آلی استفاده از کربن فعال به عنوان یک جاذب می باشد. بنابراین استفاده از جاذب های طبیعی و ارزان قیمت به جای کربن فعال تجاری مورد توجه محققان قرار گرفته است. امروزه محققان مختلفی از جاذب های طبیعی از جمله چیتسون (۱۲)، اکسی هیومیلیت (۱۳)، خاکستر فرار (۱۴) و سایر جاذب ها برای حذف آلاینده های آلی و غیر آلی استفاده می کنند. پوکه معدنی یک نوع سنگ آتشفشانی است که در بیش تر نقاط دنیا یافت می شود. این ماده در ایران اغلب در تمام نقاط به خصوص در منطقه تیکمه داش آذربایجان به وفور یافت می شود. ذرات پامیس متشکل از شبکه های داخلی به هم پیوسته نامنظم است. از آنجایی که بیش تر منافذ داخل پامیس به هم متصل نیست بنابراین دارای نفوذ پذیری کم بوده و عایق بسیار خوبی برای گرما و صداست. ذرات پامیس بسته به نوع مواد اولیه، اندازه ذرات، مدت زمان تماس با آب و تخلخل آن ممکن است بر روی آب شناور شوند. پامیس می تواند دارای خصوصیات اسیدی و یا بازی باشد. مقدار سیلیکای موجود در پامیس بسیار بالا (۷۰-۶۰ درصد  $\text{SiO}_2$ ) است. درجه سختی پامیس ۶-۵ واحد بر طبق درجه موهوس (MohsScale) است. پامیس در مصارف گوناگون از قبیل: به عنوان جاذب، بستر فیلتراسیون، بستر بیوفیلم یا کاتالیست و جاذب آلاینده های هوا، حذف کدورت در فرایند فیلتراسیون شنی تند، حذف فلزات سنگین و حذف پاتوژن ها مورد استفاده قرار گرفته است (۱۵). اهداف اصلی این پژوهش شامل موارد زیر است:

اسپکتروفوتومتر ثبت گردید و سپس با استفاده از نرم افزار Excel منحنی کالیبراسیون تهیه گردید. آزمایش ها در سیستم ناپیوسته و در بشرهای به حجم ۲۵۰ mL انجام گردید. جهت انجام آزمایش ها مقدار مشخصی از جاذب به محلول های رنگ اضافه شد سپس نمونه های رنگ بر روی شیکر قرار داده شده و با دور ۲۰۰ rpm چرخانده شد. برای تعیین میزان حذف رنگ، در زمان های تماس مختلف نمونه برداری گردیده و میزان جذب رنگ ها به روش اسپکتروفوتومتری خوانش شد و غلظت باقی مانده رنگ با استفاده از منحنی کالیبراسیون تعیین گردید. جهت تعیین غلظت باقی مانده رنگ برای هر متغیر دوبار نمونه برداری انجام گردید و متوسط آنها در محاسبات مدنظر قرار گرفت.



شکل ۱: ساختار شیمیایی رنگ Acid Black ۱

#### مطالعه ثابت تعادل

جهت تعیین مدل های ایزوترمی، مقدار ۰/۵ گرم از جاذب به محلول های رنگ با غلظت های ۲۰۰-۹۰ mg/L اضافه شد. در این لحظه مقدار pH نمونه ها برابر ۳/۵ بود. محلول های مورد نظر به مدت ۳ روز روی میکسر با سرعت ۲۰۰ rpm قرار داده شد و بعد از آن غلظت های باقی مانده رنگ به روش اسپکتروفوتومتری تعیین مقدار گردید. ایزوترم های جذب، معادلاتی برای تشریح حالت تعادل بخش جذب شونده بین فاز جامد و سیال است. در این تحقیق داده های تجربی تعادل جذب با مدل های ایزوترم جذب فروندلیچ، لانگمیر و تمکین مورد بررسی قرار گرفت. رابطه غیر خطی معادله لانگمیر به صورت زیر ارائه شده است:

$$q_e = \frac{q_m b C_e}{1 + b C_e} \quad (1)$$

با انتگرال گیری از رابطه بالا، شکل غیر خطی معادله لانگمیر

- بررسی زمان تماس، pH و غلظت اولیه رنگ بر روی کارایی حذف رنگ مورد مطالعه توسط پامیس  
- تعیین بهترین مدل ایزوترمی جذب سطحی رنگ مورد مطالعه بر روی پامیس  
- بررسی مکانیسم نفوذ ذرات رنگ

#### مواد و روش ها

##### آماده سازی جاذب

جاذب مورد استفاده از منطقه تیکمه داش آذربایجان شرقی تهیه شد. برای زدایش ناخالصی های اولیه، پوکه معدنی چندین بار با آب مقطر شسته شد. به منظور افزایش تخلخل جاذب، پوکه معدنی به مدت ۲۴ ساعت در اسید کلریدریک یک نرمال قرار داده شد. پس از آن پوکه معدنی در آب مقطر دو بار تقطیر چندین بار شسته شد و این کار تا زمانی ادامه یافت که کدورت پساب خروجی آن به کم تر از ۱ NTU برسد. نمونه آماده شده آسیاب گردید و از مش ۲۰ با اندازه موثر ۲ میلی متر به عنوان جاذب استفاده گردید.

##### آزمایشات و مواد شیمیایی مورد استفاده

تمام مواد شیمیایی مورد استفاده از شرکت مرک آلمان تهیه شد. ساختار شیمیایی رنگ Acid Black ۱ در شکل ۱ نشان داده شده است. رنگ مورد نظر دارای فرمول شیمیایی  $C_{21}H_{14}N_6O_4S_{21}Na$  بوده و جرم آن برابر ۶۱۸/۵۴ گرم برمول است. برای تنظیم pH (Sartorius PP-50) از محلول NaOH یا  $H_2SO_4$  یک نرمال استفاده شد. برای اندازه گیری میزان جذب رنگ ها ابتدا حداکثر طول موج جذب رنگ مورد نظر با استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر UV/VIS (Shimadzo-1700, Japan) تعیین گردید. با استفاده از این روش حداکثر طول موج رنگ اسید بلاک ۱ برابر ۶۲۲ نانومتر به دست آمد. بعد از به دست آوردن حداکثر طول موج جذب اقدام به رسم منحنی کالیبراسیون گردید. برای این کار غلظت های مختلفی از محلول رنگ تهیه شد و مقدار جذب آنها در طول موج ۶۲۲ نانومتر با استفاده از دستگاه

به صورت زیر در می آید:

$$\frac{c_e}{q_e} = \frac{1}{q_m b} + \frac{1}{q_m} c_e \quad (2)$$

در این رابطه، مقدار جزو جذب شده در واحد جرم جسم جاذب برحسب میلی گرم بر گرم،  $C_e$  غلظت تعادلی ماده جذب شدنی در محلول بعد از جذب سطحی بر حسب میلی گرم بر لیتر،  $q_m$  نشان دهنده ظرفیت جذب و  $b$  ثابت لانگمیر است که از رسم نمودار  $\frac{c_e}{q_e}$  در مقابل  $C_e$  به دست می آید. معادله غیر خطی ایزوترم جذب فروندلیچ به صورت معادله (۳) است:

$$q_e = K_f C_e^{1/n} \quad (3)$$

با انتگرال گیری از رابطه بالا، شکل خطی معادله (۳) به صورت زیر خواهد بود:

$$\log q_e = \log k_f + \frac{1}{n} \log c_e \quad (4)$$

در این رابطه،  $C_e$  غلظت تعادلی ماده جذب شدنی در محلول بعد از جذب سطحی بر حسب میلی گرم در لیتر،  $q_e$  ظرفیت جذب در زمان تعادل برحسب میلی گرم بر گرم و  $K_f$  و  $n$  ثابت های فروندلیچ است. معادله ایزوترم تمکین یکی دیگر از معادلات مورد استفاده برای جذب هیدروژن مواد به روی سطح جاذب می باشد. شکل غیر خطی معادله تمکین به صورت زیر است:

$$q_e = \frac{RT}{b_1} \ln(k_1 C_e) \quad (5)$$

با انتگرال گیری از رابطه (۵)، شکل خطی معادله تمکین به صورت زیر نشان داده خواهد شد:

$$q_e = B_1 \ln(k_1) + B_1 \ln(C_e) \quad (6)$$

در این رابطه  $B_1 = RT/b_1$  و  $b_1$  نشان دهنده دمای جذب و  $k_1$  نشان دهنده حداکثر انرژی جذب است (۱۶).

### مکانیسم نفوذ

در طراحی فرایند جذب سطحی تعیین مرحله محدودکننده جذب یکی از مهم ترین پارامترهاست. معمولاً در جذب یک آلاینده بروی جاذب چهار مرحله اتفاق می افتد: نفوذ توده ای، نفوذ لایه ای، جذب بروی سطح جاذب و نفوذ بین ذره ای. معمولاً سه مرحله اول به عنوان مرحله نفوذ خارجی نامیده می شوند. نفوذ توده ای و جذب بروی سطح جاذب بسیار سریع اتفاق می افتد و از این رو مرحله تعیین کننده در جذب سطحی نیستند. بنابراین لازم است که برای مشخص کردن مکانیسم جذب آلاینده بروی جاذب از مدل نفوذ بین ذره ای استفاده گردد. معادله نفوذ بین ذره ای به صورت زیر بیان می شود:

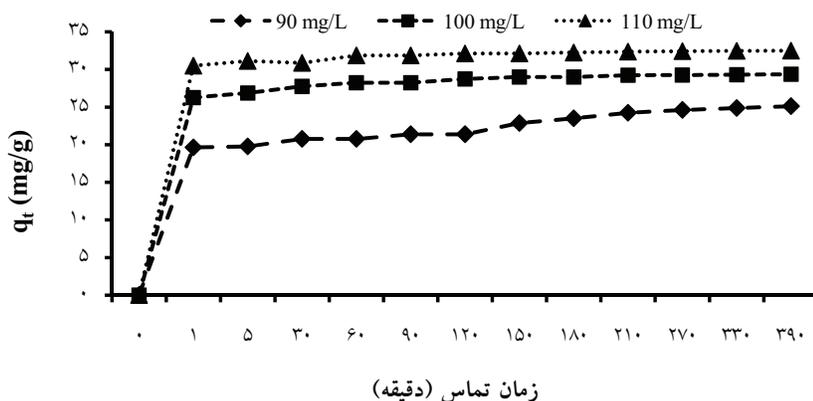
$$q_t = k_t t^{0.5} + c \quad (4)$$

در این رابطه،  $k_t$  نشان دهنده ثابت سرعت نفوذ بین ذره ای و  $q_t$  نشان دهنده مقدار غلظت رنگ در حالت تعادل در زمان های مختلف می باشد.  $k_t$  از رسم مقدار  $q_t$  در مقابل  $t^{1/2}$  به دست می آید. اگر این منحنی از مرکز نمودار عبور کند مدل نفوذ بین ذره ای مرحله تعیین کننده سرعت جذب است.

### یافته ها

#### بررسی تاثیر زمان تماس بروی کارایی حذف رنگ مورد مطالعه

تاثیر زمان تماس در فواصل زمانی ۳۹۰-۱ دقیقه و غلظت اولیه رنگ ۹۰، ۱۰۰ و ۱۱۰ mg/L بررسی شد. تاثیر زمان تماس در حذف رنگ در شکل ۲ نشان داده شده است. همان طور که در شکل ۲ مشخص است با افزایش زمان تماس راندامان حذف افزایش می یابد و در زمان تماس ۳۹۰ دقیقه به تعادل می رسد.



شکل ۲: تاثیر زمان تماس بروی کارایی حذف رنگ (زمان تماس ۳۹۰ دقیقه، pH=۳/۵)

### تاثیر غلظت اولیه رنگ

جهت بررسی تاثیر غلظت اولیه رنگ محلول های رنگ با غلظت رنگ ۲۰۰-۵۰ mg/L از محلول مادر ساخته شد. نتایج حاصل از تاثیر غلظت اولیه رنگ در شکل ۳ نشان داده شده است. همان طور که در شکل ۳ مشخص است با افزایش غلظت اولیه رنگ راندمان حذف هر دو نوع رنگ افزایش می یابد. هم چنین با توجه به شکل ۳ می توان مشاهده کرد که سرعت جذب رنگ با افزایش غلظت اولیه رنگ کاهش می یابد.

### بررسی تاثیر pH

جهت بررسی تاثیر pH، محلول رنگ با غلظت اولیه ۹۵ mg/L در pH های ۳-۱۱ تهیه گردیده و سپس ۰/۵ گرم از پامیس به محلول رنگ اضافه شد و بعد از زمان تماس ۳۹۰ دقیقه غلظت باقی مانده رنگ بروش اسپکتروفتومتری تعیین مقدار گردید.

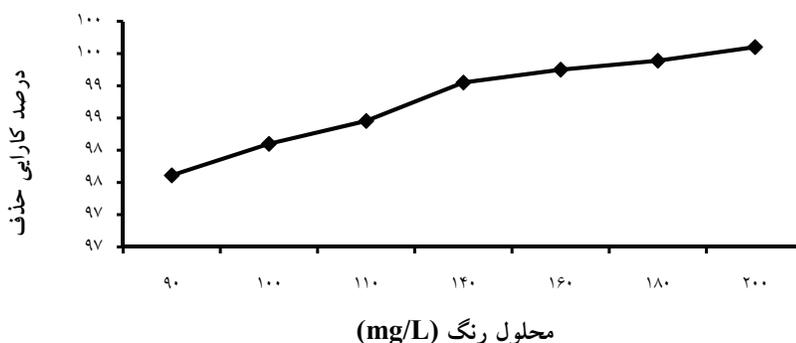
نتایج حاصل از تاثیر pH در شکل ۴ نشان داده شده است. با توجه به شکل ۴ مشخص می گردد که با کاهش pH کارایی حذف رنگ افزایش می یابد.

### مطالعه ثابت تعادل

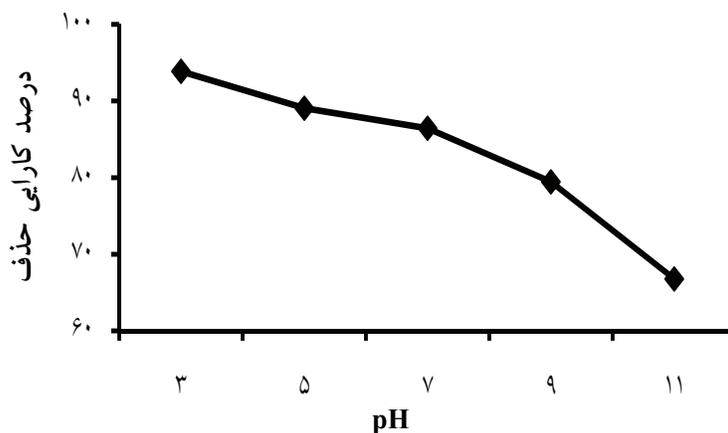
نتایج حاصل از مطالعات ایزوترمی در شکل ۴ نشان داده شده است. پارامترهای محاسبه شده از روی معادلات ایزوترمی در جدول ۲ نشان داده شده است.

### مکانسیم نفوذ

مدل نفوذ بین ذره ای برای مطالعه حاضر در شکل ۵ نشان داده شده است. همان طوری که در شکل ۵ نشان داده شده است منحنی مقدار  $q_t$  در مقابل  $t^{1/2}$  از مرکز نمودار عبور نکرده است پس می توان این طور نتیجه گیری کرد که نفوذ بین ذره ای مرحله محدود کننده جذب نیست. از روی شکل ۵، در مراحل



شکل ۳: تاثیر غلظت اولیه رنگ بروی کارایی حذف رنگ (زمان تماس ۳۹۰ دقیقه، pH=۳/۵)



شکل ۴: تاثیر pH اولیه محلول به روی کارایی حذف رنگ (زمان تماس ۳۹۰ دقیقه)

جدول ۱: پارامترهای محاسبه شده برای مدل های ایزوترمی

|          | $q_m(\text{mg/g})$ | $b(\text{L/mg})$ | $K_f$ | $n$  | $b_1$ | $k_t$ | $R^2$ |
|----------|--------------------|------------------|-------|------|-------|-------|-------|
| فروندلیچ |                    |                  | ۵۳/۷  | ۱/۱۱ |       |       | ۰/۹۷  |
| لانگمیر  | ۱۸/۸۷              | ۱/۵              |       |      |       |       | ۰/۹۸  |
| تمکین    |                    |                  |       |      | ۶۷/۶  | ۴/۳۳  | ۰/۹۷  |

نبوده و هم چنین کارایی حذف آلاینده بسیار کم خواهد بود. در پژوهش حاضر کارایی حذف رنگ مورد مطالعه در سه غلظت ۹۰، ۱۰۰ و ۱۱۰ mg/L در زمان تماس ۱ تا ۳۹۰ دقیقه مورد بررسی قرار گرفته است. در زمان تماس ۱ دقیقه، ۷۳٪، ۸۸٪ و ۹۳٪ از حذف رنگ به ترتیب برای غلظت های ۹۰، ۱۰۰ و ۱۱۰ mg/L به دست آمد در حالی که در فاصله زمانی ۱ تا ۳۹۰ دقیقه، کارایی حذف به ترتیب برابر ۷۴٪، ۸۴٪ و ۵۶٪ بود. بنابراین می توان این طور نتیجه گیری کرد که زمان بهینه برای موارد کاربردی می تواند در حد ۱ دقیقه باشد ولی برای مطالعه ثابت های تعادل لازم است که زمان تعادل محاسبه گردد. زمان تعادل به زمانی اطلاق می شود که حذف آلاینده با گذشت زمان کم تر از ۵ الی ۱۰ درصد مقادیر حذف در زمان های اولیه باشد. بنابراین در مطالعه حاضر دلیل افزایش زمان تماس تا ۳۹۰ دقیقه، دستیابی به زمان تعادل برای محاسبه ثابت های تعادل می باشد. لازم به ذکر است که زمان تماس لازم برای محاسبه ثابت های تعادل بسیار بیش تر و در

اولیه (از لحظه صفر تا ۱ دقیقه)، جذب سریع اتفاق می افتد که مربوط به جذب به روی سطح خارجی جاذب است. از دقیقه ۱ تا  $19/8^{1/2}$  نمودار به صورت خط تقریباً مایل است (کادر موجود در شکل ۵) که نشان دهنده رسیدن به حالت تعادل و کاهش سرعت جذب است. این قسمت از نمودار دارای سه مرحله و هر مرحله دارای ضریب سرعت جذب اختصاصی است. ضریب  $k_1$ ،  $k_2$  و  $k_3$  به ترتیب برابر ۰/۶۱، ۰/۱۵ و ۰/۰۴۱۱ ( $\text{mg/g min}^{-0.5}$ ) به دست آمد. بنابراین مشخص می گردد که با ادامه روند جذب، پارامتر سرعت جذب کاهش می یابد (۱۷ و ۱۸).

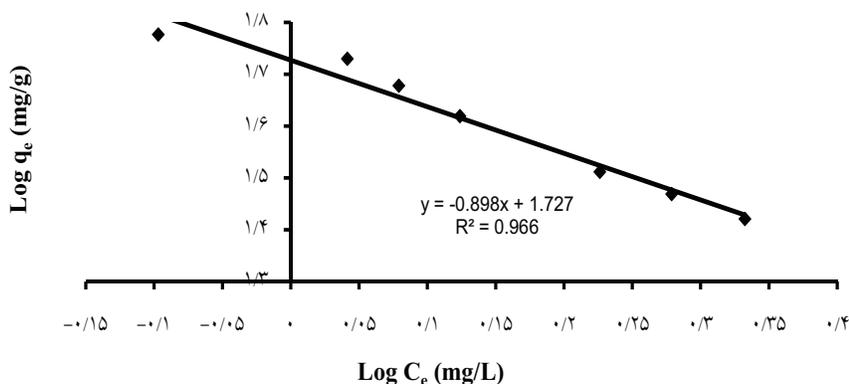
### بحث

اصولاً در مهندسی شیمی و محیط زیست زمان بهینه برای حذف آلاینده و دستیابی به مقادیر استاندارد از اهمیت ویژه ای برخوردار است. معمولاً زمان بهینه به زمانی اطلاق می شود که آلاینده در حد مطلوبی حذف گردد و چنان چه زمان واکنش از این حد فراتر رود فرایند از لحاظ کاربردی مقرون به صرفه

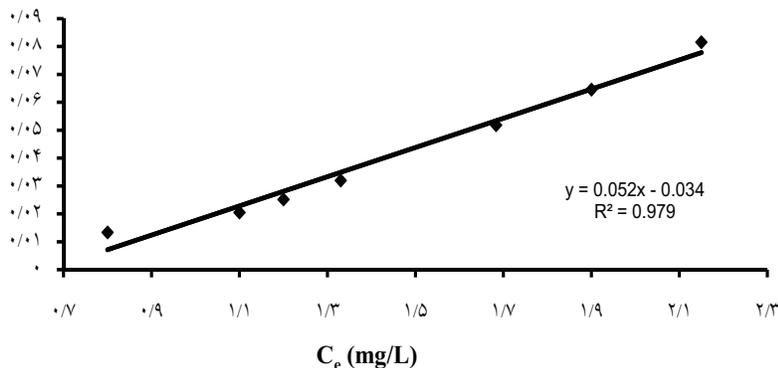
رنگ توسط نانو لوله های کربنی مشاهده گردیده است (۱۷). بنابراین مشخص می گردد که نتایج پژوهش حاضر در مقایسه با کار چیاو و همکاران بسیار مطلوب تر است. در پژوهش دیگری که توسط نویسنده و همکاران انجام گردیده است،

حدود ۲۰ برابر زمان تعادل و در حد روز است. در مطالعه ای که توسط چیاو و همکاران انجام گرفته است، زمان تعادل در ۲۵۰ دقیقه به دست آمده است. هم چنین در این مطالعه در زمان تماس ۵۰ دقیقه بالاترین کارایی حذف (متوسط ۵۰٪)

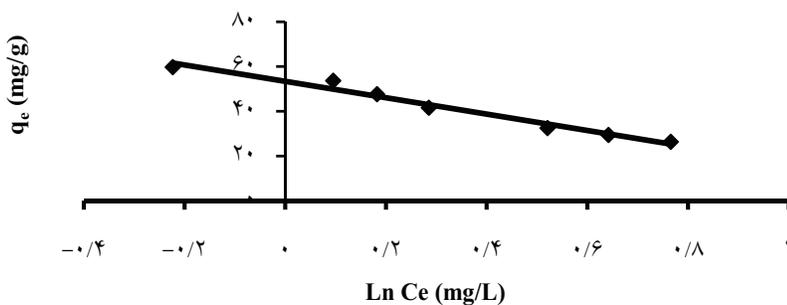
(a)



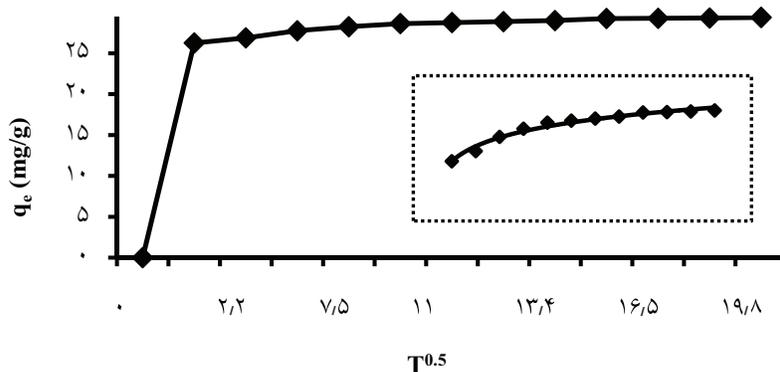
(b)



(c)



شکل ۴: نتایج حاصل از مطالعه ثابت تعادل، (a) مدل ایزوترمی فروندلیچ، (b) مدل ایزوترمی لانگمیر، (c) مدل ایزوترمی تمکین



شکل ۵: مدل نفوذ بین ذره ای برای جذب رنگ Acid Black ۱ به روی پامیس

اولیه محلول مشاهده گردیده است (۲۱). معمولاً با کاهش pH اولیه محلول کارایی فرایند جذب سطحی افزایش می یابد. این امر به دلیل افزایش یون  $H^+$  بروی سطح جاذب است که در محیط های اسیدی اتفاق می افتد (۲۲). نتایج نشان داد که با کاهش pH اولیه محلول کارایی حذف رنگ افزایش می یابد به طوری که با کاهش pH محلول از ۱۱ به ۳ کارایی حذف رنگ ۶۷٪ به ۹۴٪ رسید. دلیل این امر را می توان به استفاده از ساختار شیمیایی جاذب و رنگ مورد مطالعه توضیح داد. از آنجایی که جاذب مورد استفاده دارای مقدار سیلیس بالایی می باشد در محلول های آبی سطح جاذب مورد نظر دارای یون های  $Si^{2+}$  خواهد بود. از طرف دیگر با توجه به ساختار رنگ مورد مطالعه، در محیط های آبی رنگ اسید بلاک ۱ حل شده و گروه سولفونات منفی تشکیل می گردد. بنابراین جذب رنگ با استفاده از باند شدن گروه های سولفونات منفی با گروه های  $Si^{2+}$  صورت خواهد گرفت. در محیط های اسیدی و در حضور یون  $H^+$ ، گروه های  $Si^{2+}$  در سطح جاذب با گرفتن پروتون از  $H^+$  تبدیل به گونه های  $Si^{3+}$  خواهند شد که این امر باعث افزایش تعداد یون های منفی چسبیده شده رنگ بروی سطح جاذب خواهد شد. پاول و همکاران در مطالعه خود نشان داده اند که کارایی حذف رنگ با کاهش pH افزایش می یابد (۱۳). نتایج

کارایی حذف رنگ اسید رد ۱۸ توسط کربن فعال ساخته شده از درخت سرو مورد مطالعه قرار گرفته است. در این پژوهش نیز بالاترین کارایی حذف رنگ در زمان تماس ۱۲۰ دقیقه مشاهده گردیده است (۱۹). با افزایش غلظت اولیه رنگ کارایی حذف رنگ افزایش یافت. با افزایش غلظت اولیه رنگ از ۹۰ mg/L به ۲۰۰ mg/L کارایی حذف رنگ از ۹۸ درصد به بیش از ۹۹/۵ درصد افزایش یافت. علی رغم افزایش کارایی حذف با افزایش غلظت اولیه رنگ، سرعت جذب رنگ بسیار کم می باشد. افزایش راندمان حذف با افزایش غلظت اولیه رنگ را می توان به دلیل افزایش نیروی رانش (Driving Force) با افزایش غلظت اولیه رنگ توضیح داد. و نیز دلیل افزایش اندک سرعت جذب رنگ با افزایش غلظت اولیه رنگ را می توان به اشغال شدن محل ها جذب بروی سطح جاذب نسبت داد. یک وزن مشخص از جاذب دارای محل های مشخصی برای جذب آلاینده است که در لحظات اولیه به سرعت توسط آلاینده اشغال می شود. با گذشت زمان و افزایش غلظت اولیه محلول رنگ، این محل ها اشغال شده و جذب آلاینده در داخل منافذ جاذب صورت می گیرد که در این حل سرعت جذب کاهش خواهد یافت (۲۰). در مطالعه ای که توسط یانگ بروی حذف رنگ با استفاده از فیبر کربن فعال انجام گرفته است، افزایش کارایی حذف رنگ با افزایش غلظت

صورت گرفته است. هم چنین مشخص گردید که مقادیر پایین  $k_p$  و  $k_d$  نشان می دهد که منافذ داخلی جاذب در حد میکرو است که باعث ایجاد مقاومت در برابر نفوذ مولکول های رنگ در بین ذرات جاذب شده است. با توجه به نتایج مکانیسم نفوذ، مشخص می گردد که نفوذ بین ذره ای مرحله محدود کننده در جذب رنگ Acid Black ۱ با استفاده از پامیس می باشد. بنابراین با افزایش میزان تخلخل می توان رنگ بیش تری را در داخل منافذ جاذب به دام انداخت.

مشابهی توسط سایر محققین گزارش شده است (۱۹-۲۳).

### نتیجه گیری

نتایج حاصل از مطالعات ثابت تعادل نشان داد که حذف رنگ Acid Black ۱ از معادله ایزوترمی لانگمیر ( $r^2 > 0.98$ ) تبعیت می کند. با توجه به جدول ۱ مقدار  $n$  برای رابطه فروندلیچ برابر ۱/۱۱ به دست آمد که نشان دهنده جذب مطلوب می باشد. بررسی مکانیسم نفوذ رنگ اسید بلاک ۱ نشان داد که کاهش مقادیر  $k$  با گذشت زمان نشان می دهد که جذب به ترتیب به روی سطح جاذب و سپس در قسمت های داخلی جاذب

## منابع

- Lu CS, Chen CC, Mai FD, Li HK. Identification of the degradation pathways of alkanolamines with TiO<sub>2</sub> photocatalysis. *J Hazard Mater.* 2009;165(1-3):306-16.
- Merzouk B, Gourich B, Sekki A, Madani K, Vial C, Barkaoui M. Studies on the decolorization of textile dye wastewater by continuous electro-coagulation process. *Chem Engin J.* 2009;149(1-3):207-14.
- Ji P, Zhang J, Chen F, Anpo M. Study of adsorption and degradation of acid orange 7 on the surface of CeO<sub>2</sub> under visible light irradiation. *App Cat B: Env.* 2009;85(3-4):148-54.
- Rauf MA, Qadri SM, Ashraf S, Al-Mansoori KM. Adsorption studies of Toluidine Blue from aqueous solutions onto gypsum. *Chem Engin J.* 2009;150(1):90-95.
- Sibel KA, Ozge O, Senol A, Husamettin A. The adsorption kinetics and removal of cationic dye, Toluidine Blue O, from aqueous solution with Turkish zeolite. *J Hazard Mat.* 2008;151:213-20.
- Mok YS, Jo JO, Whitehead JC. Degradation of an azo dye Orange II using a gas phase dielectric barrier discharge reactor submerged in water. *Chem Engin J.* 2008;142(1):56-64.
- Atia AA, Donia AM, Al-Amrani WA. Adsorption/desorption behavior of acid orange 10 on magnetic silica modified with amine groups. *Chem Engin J.* 2009;150(1):55-62.
- Olak F, Atar N, Olgun A. Biosorption of acidic dyes from aqueous solution by *Paenibacillus macerans*: Kinetic, thermodynamic and equilibrium studies. *Chem Engin J.* 2009;150(1):122-30.
- Aksu Z. Reactive dye bioaccumulation by *Saccharomyces cerevisiae*. *Proc Biochem.* 2003;38(10):1437-44.
- Ratana J, Anawat S, Piyanoot L. Performance evaluation of nanofiltration membranes for treatment of effluents containing reactive dye and salt. *Desalination.* 2000;130(2):177-83.
- Rahmani AR, Zarrabi M, Samarghandi MR, Afkhami A, Ghaffari HR. Degradation of Azo Dye Reactive Black 5 and Acid Orange 7. *Iran J Chem Engin.* 2010;7(1):87-94.
- Gregorio C, Pierre-Marie B. Application of chitosan, a natural aminopolysaccharide for dye removal from aqueous solutions by adsorption processes using batch studies: A review of recent literature. *Prog Poly Sci.* 2008;33:399-405.
- Pavel J, Pavel S, Milena R, Sylvie G. Sorption of basic and acid dyes from aqueous solutions onto oxihumolite. *Chemosphere.* 2005;59:881-87.
- Pavel J, Hana B, Milenal R. Sorption of dyes from aqueous solution onto fly ash. *Water Res.* 2003;37:4938-45.
- Mehmet K, Emine K, Nevzat OY, Gokhan C, Ata A. Heterogeneous catalytic degradation of cyanide using copper-impregnated pumice and hydrogen peroxide. *Water Res.* 2005;39:1652-62.
- QU B, Zhou J, Xiang X, Zheng C, Zhao H, Zhou X. Adsorption behavior of Azo Dye C. I. Acid Red 14 in aqueous solution on surface soils. *J Env Sci.* 2008;20:704-11.
- Chao Y, Chung-Hsin W, Jane-Yii W. Adsorption of direct dyes from aqueous solutions by carbon nanotubes: Determination of equilibrium, kinetics and thermodynamics parameters. *J Colloid Inter Sci.* 2008;327:308-15.
- Selvaraj R, Jei-Won Y, Younghun K, Yongju J, Yeong-Keong H, Won-Ho K. Adsorption characteristics of Cu (II) onto ion exchange resins 252H and 1500H: Kinetics, isotherms and error analysis. *J Hazard Mat.* 2007;143:469-77.
- Shokoohi R, Vatanpoor V, Zarrabi M, Vatani A. Adsorption of acid red 18 by activated carbon from poplar wood. *E-J Chem.* 2010;7(1):65-72.
- Pengthamkeerati P, Satapanajaru T, Singchan O. Sorption of reactive dye from aqueous solution on biomass fly ash. *J Hazard Mater.* 2008;153:1149-56.
- Yang Z. Kinetics and mechanism of the adsorption of methylene blue onto ACFs. *J China Uni Min Tech.* 2008;18:437-40.
- Gregorio C. Non-conventional low-cost adsorbents for dye removal: A review. *Bioresour Technol.* 2006;97:1061-85.
- Samadi MT, Rahmani AR, Zarrabi M, Shahabi E, Sameei F. Adsorption of chromium (VI) from

aqueous solution by sugar beet bagasse-based activated charcoal. Env Tech. 2009;30(10):1023-29.

## **Mechanism and Removal Efficiency of C.I. Acid Black 1 by Pumice Stone Adsorbent**

Samarghandi M.R.<sup>1</sup>, Noori Sepehr M.<sup>2</sup>,\*Zarrabi M.<sup>3</sup>, Norouzi M.<sup>3</sup>, Amraie F.<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Science, Hamadan, Iran

<sup>2</sup>Department of Health Engineering, School of Public Health, Tehran University of Medical Science, Alborz, Iran

<sup>3</sup>Department of Health Engineering, School of Public Health, Qom University of Medical Science, Qom, Iran

Received; 14 July 2010 Accepted; 10 October 2010

### **ABSTRACT**

**Backgrounds and Objectives:** Treatment of colored wastewater is one of the important challenges of environmental engineers. Adsorption process is a key option for removal of organic matter from wastewater. The aim of present work was to investigate pumice stone as an adsorbent for removal of Acid Black 1 from aqueous solution.

**Materials and Methods:** Removal of Acid Black 1 by pumice stone was investigated. Acid Hydrochloric (HCL) 1 N was used to increase adsorbent porosity. Various parameters such as pH, initial dye concentration and contact time were studied.

**Results:** Results showed that removal of Acid Black 1 was increased by increasing of contact time and initial dye concentration although it was decreased by increasing of pH. Experimental data was best fitted to Langmuir isotherm model ( $r^2 > 0.98$ ). Study of diffusion model revealed that intra-particle diffusion is rate-controlling step in removal of Acid Black 1 by pumice stone.

**Conclusion:** The results indicated that pumice stone was a dominant adsorbent for Acid Black 1 removal.

**Key words:** Adsorption, Azo Dye, Batch study, Intra-particle diffusion, Pumice

---

\*Corresponding Author: *mansor62@gmail.com*

*Tel:* +98 912 6952302 *Fax:* +98261439188