

مطالعه ایزوترم و عوامل مؤثر بر رنگ بری متیلن بلو با استفاده از پودر کربن فعال تهیه شده از برگ درخت انگور

سید علیرضا موسوی^{*}، مریم خشیح^۱، پرستو شهبازی^۱

۱. گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی کرمانشاه، کرمانشاه، ایران

چکیده:

سابقه و هدف: یکی از تکنولوژی‌های مؤثر برای تصفیه فاضلاب‌های رنگی، استفاده از جاذب‌های طبیعی است. فرایند جذب سطحی به دلایلی از جمله هزینه پایین و توانایی اجرای آسان تر و عدم حساسیت نسبت به مواد سمی نسبت به سایر روش‌ها در اولویت قرار دارد. لذا هدف مطالعه حاضر بررسی ایزوترم و عوامل مؤثر بر رنگ بری متیلن بلو با استفاده از پودر کربن فعال تهیه شده از برگ درخت انگور است.

روش بررسی: مطالعه حاضر به صورت تجربی و در مقیاس آزمایشگاهی پارامترهایی از قبیل غلظت اولیه ماده رنگی، دوز ماده جاذب و زمان تماس در یک سیستم ناپیوسته مورد بررسی قرار گرفت.

یافته‌ها: نتایج مطالعه حاضر کارایی حذف ۱۰۰٪ رنگ را در دو غلظت ۱۰ و ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر با دوز جاذب ۲ گرم در لیتر و زمان تماس ۹۰ و ۷۰ دقیقه در pH برابر با ۷ را نشان داد. فرایند جذب رنگ متیلن بلو از ایزوترم‌های فروندلیچ ($R^2=0/994$) و لانگمویر ($R^2=0/984$) پیروی می‌کند که با استفاده از مدل فروندلیچ حداکثر ظرفیت جذب این رنگزا ۲۵/۷۷ میلی‌گرم بر گرم ماده جاذب محاسبه گردید.

نتیجه‌گیری: بر اساس نتایج، کربن فعال تهیه شده از برگ درخت انگور از ظرفیت بالایی در جذب رنگ متیلن بلو از محلول‌های آبی برخوردار است.

واژگان کلیدی: فاضلاب، جذب، درخت مو، متیلن بلو

How to cite this article:

Mousavi SA, Khashij M, Shahbazi P. Adsorption Isotherm Study and Factor Affected on Methylene Blue Decolorization using Activated Carbon Powder Prepared Grapevine Leaf. J Saf Promot Inj Prev. 2016; 3(4): 249-56.

مقدمه

از پرمصرف‌ترین رنگ‌ها متیلن بلو است که در صنایع نساجی، پزشکی و علوم آزمایشگاهی و جهت رنگ‌آمیزی پارچه و بافت‌های بیولوژیکی مورد استفاده قرار می‌گیرد (۵). متیلن بلو با یون‌های فلزی تشکیل پیوند داده و باعث تولید ترکیباتی سمی برای آبزیان و میکروارگانیسم‌های موجود در آب می‌کند. از سوی دیگر آلودگی آب توسط رنگزها حتی در غلظت‌های بسیار پایین (حدود یک میلی‌گرم بر لیتر) می‌تواند رنگی با شدت زیاد تولید کرده به گونه‌ای که مصرف آن توسط انسان غیرممکن خواهد بود (۶).

به منظور حفظ سلامت انسان و محیط زیست در کشورهای در حال توسعه بهره‌گیری از روش‌های ارزان قیمت و اقتصادی جهت حذف رنگ از فاضلاب نساجی و کارخانه‌های تولیدکننده رنگ از اهمیت بسزایی برخوردار است. در میان روش‌های مورد استفاده، فرایند جذب سطحی به دلایلی از جمله هزینه پایین و توانایی اجرای

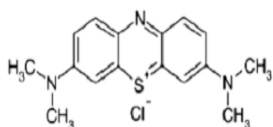
رشد فزاینده جمعیت به همراه گسترش صنایع و کشاورزی مشکلات مربوط به کمبود آب را ایجاد کرده، که نیاز به تصفیه و بازیابی مجدد آب مصرفی را مطرح نموده است (۱-۲). آلودگی آب با فعالیت‌های آنتروپوژنیک به خصوص در صنایع مختلف سبب ایجاد مشکلات زیست‌محیطی و بهداشت عمومی شده که از بین این صنایع، نساجی به عنوان یکی از بزرگ‌ترین و مهم‌ترین صنایع مصرف‌کننده آب و تولیدکننده پساب خطرناک در جهان به شمار می‌آید (۳). ورود پساب‌های صنعتی حاوی مواد رنگزا به داخل آب منجر به کاهش کیفیت آب، اثرات سمی، سرطان‌زایی، جهش‌زایی شده و صدمات جبران‌ناپذیری به محیط زیست می‌گردد (۴). یکی

کربن فعال تهیه شده از برگ درخت انگور به عنوان یک جاذب طبیعی می باشد. طی آمارهای منتشر شده از سوی وزارت جهاد کشاورزی ۲۹۰۰۰۰ هزار هکتار از اراضی کشور را درختان انگور تشکیل می دهد (۲۲). بررسی ها نشان می دهد که میزان پسماند ناشی از هرس این درختان حدود ۵۰۰ کیلوگرم در هکتار است که معادل ۱۵۰۰۰۰ تن ماده لیگنوسلولزی در سال است (۲۳). با توجه به حجم بسیار زیاد ضایعات ناشی از هرس، مشکلات ناشی از جمع آوری و دفع آن ها و از سوی دیگر با توجه به منافذ بسیار ریز (۲۴)، در این مطالعه سعی شده است از برگ درخت انگور جهت تهیه کربن فعال استفاده گردد.

مواد و روش ها

مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی در مقیاس آزمایشگاهی است. از میان پارامترهای مؤثر بر کارایی فرایند جذب سه متغیر اصلی شامل غلظت آلاینده، دوز جاذب و زمان تماس در pH ثابت برابر ۷ در دمای محیط آزمایشگاه (۱۷±۲ سانتی گراد) مورد بررسی قرار گرفت. این مطالعه در ۵ مرحله شامل بررسی کامل مطالعات گذشته به منظور دامنه یابی متغیرهای اصلی، تهیه کربن فعال با استفاده از ضایعات درخت انگور، طراحی آزمایشات به روش فاکتوریل، انجام آزمایشات در سیستم بسته و در مرحله نهایی تجزیه و تحلیل داده ها با استفاده از نرم افزار اکسل انجام شد.

تمامی مواد شیمیایی (اسید فسفریک، اسیدسولفوریک، سود، رنگ متیلن بلو و ...) از شرکت مرک آلمان تهیه شد. متیلن بلو مطابق با شکل ۱، رنگی شیمیایی دارای سه حلقه آروماتیک از گروه رنگ های کاتیونی است که به عنوان رنگ شاخص در زمینه حذف رنگ های آزو از آن استفاده می شود (۲۵). رنگ متیلن بلو با اختصار MB و فرمول شیمیایی $C_{16}H_{18}N_3Cl$ دارای وزن مولکولی ۳۱۹/۸۵ و طول موج حداکثر ۶۶۵ نانومتر است. تجهیزات به کاررفته شده در این مطالعه شامل اسپکتروفتومتر (مدل: Jenway6305)، pH متر (مدل Naberthermcontroller 537)، کوره الکتریکی (مدل: Memmert141)، سانتریفیوژ (مدل CE148) 527، فور (مدل: Memmert141)، سانتریفیوژ (مدل CE148) 527، ترازوی دیجیتالی، الک آزمایشگاهی با مش ۵۰ و همزن مغناطیسی می باشد.



شکل ۱. ساختار شیمیایی رنگ متیلن بلو

به منظور حذف سموم و غبار ابتدا برگ ها چندین بار با آب شستشو و در هوای آزاد خشک گردیدند. سپس ضایعات به مدت ۲ ساعت

آسان تر و عدم حساسیت نسبت به مواد سمی نسبت به سایر روش ها در اولویت قرار دارد به گونه ای که در شرایط سمیت که بازدارنده تصفیه بیولوژیک می باشد جذب سطحی کاهش نیافته و متوقف نمی گردد. از میان روش های حذف و تصفیه فاضلاب های رنگی، جذب با استفاده از جاذب های طبیعی مانند ذرت (۷)، کانی های طبیعی (۸)، خاک رس (۹) و ... کاربرد چشمگیری یافته (۱۰) و نکته بسیار مهم این است که میزان و کیفیت سطح تماس، دما، غلظت و نوع آلاینده، زمان تماس، مقدار ماده جاذب، سرعت اختلاط و pH بر کارایی این فرایند، از ضروریات می باشد (۱۱).

با استفاده از مواد زائد کشاورزی به منظور حذف رنگ از محلول های آبی، کارایی حذف رنگ و پیگمان های رنگی مورد سنجش قرار گرفته و ماکزیمم حذف رنگ های اسیدی در pH برابر با ۸ به دست آمده است. به علاوه استفاده از جاذب های طبیعی به عنوان یک فرایند دوستدار زیست محیطی و کارآمد در دستیابی به راندمان مناسب مطرح گردیده است (۱۲).

کربن به عنوان رایج ترین و کارآمدترین جاذب شناخته شده، به دلایلی از قبیل هزینه بالای تولید و احیای فرم تجاری آن در کشورهای در حال توسعه نمی تواند به عنوان روشی مناسب مورد استفاده قرار گیرد از این رو تولید آن از مواد اولیه ارزان قیمت و در دسترس در این کشورها می تواند گویای توجیه اقتصادی آن باشد (۱۳).

جذب با کربن فعال به عنوان یکی از فناوری های قابل کنترل موجود پذیرفته شده است که امروزه به طور گسترده برای اکثر آلاینده ها مورد استفاده قرار می گیرد (۱۴). لذا به منظور کاهش هزینه های آماده سازی استفاده از مواد ارزان قیمت (نظیر زائدات کشاورزی و صنعتی) جهت تولید کربن فعال به عنوان گزینه ای بالقوه همواره مدنظر محققان می باشد (۱۵-۱۶). علاوه بر کاهش هزینه ها، استفاده از زائدات کشاورزی جهت تولید کربن مزایایی از قبیل محتوای پایین خاکستر و ساختاری بسیار متخلخل را دارا می باشد (۱۷).

تولید کربن فعال با استفاده از مواد آلی مختلف در بسیاری از مطالعات مورد بررسی قرار گرفته است از جمله این مطالعات می توان به تولید کربن فعال با استفاده از پوسته بادام زمینی (۱۸)، مواد زائد صنعتی (۱۹)، پوسته نارگیل (۲۰) و گیاه بامبو (۲۱) اشاره کرد. نتایج این تحقیقات حاکی از این است که کربن فعال توانسته است به نحو مطلوبی و با توانایی جذب فوق العاده در حذف آلاینده ها مورد استفاده قرار گیرد.

به همین دلیل انتخاب یک جاذب مناسب جهت عملیات جداسازی یک فرایند مهم بوده و در این راستا، ویژگی علمی که جاذب ها را از یکدیگر متفاوت می سازد ایزوترم تعادلی جذب است که بسته به نوع جاذب و جذب شونده و شرایط عملیات متفاوت می باشد. مطالعه حاضر در رابطه با حذف رنگ متیلن بلو از فاضلاب نساجی با استفاده از

$$\% \text{Removal} = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \cdot 100 \quad (2)$$

C_0 و C_t به ترتیب غلظت اولیه و نهایی رنگ (پس از جذب) می‌باشند. **ایزوترم های جذب:** جهت تشریح حالت تعادل جزء جذب‌شونده بین فاز جامد و سیال، داده‌های تجربی تعادل جذب توسط مدل‌های ایزوترم جذب لانگمویر (معادله ۴ و ۳) و فروندلیچ (معادله ۵) مورد مطالعه قرار گرفت (۵).

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{q_{mb}} + \frac{1}{q_m} \times C_e \quad (3)$$

$$RL = \frac{1}{1 + bc} \quad (4)$$

که در آن q_e مقدار جزء جذب‌شده در واحد جرم جسم جاذب برحسب میلی‌گرم بر گرم، C_e غلظت تعادلی ماده جذب‌شده در محلول بعد از جذب سطحی برحسب میلی‌گرم بر لیتر، C_0 غلظت اولیه ماده جذب‌شونده در محلول برحسب میلی‌گرم بر لیتر، q_m نشان‌دهنده ظرفیت جذب و b ثابت لانگمویر است که از رسم نمودار C_e/q_e در مقابل C_e به دست می‌آید.

یکی از خصوصیات معادله لانگمویر که با استفاده از آن، نوع فرایند جذب را می‌توان تعیین کرد، پارامتر بدون بعد ضریب جداسازی RL (معادله ۴) است که اگر $RL < 1$ نوع جذب غیر مطلوب، $RL = 1$ نوع جذب خطی، $RL > 1$ جذب مطلوب و $RL = 0$ جذب برگشت‌ناپذیر است (۲۷). زمانی که سایت‌های جذب یکسان و سطح یکنواخت باشد رابطه لانگمویر با آزمایشات تجربی سازگار است ولی در صورت ناهمگن بودن سطح، رابطه فروندلیچ که با اندازه‌گیری مقدار ماده جذب‌شده سطحی در فشارهای مختلف به‌دست آمده است، توصیف بهتری از داده‌ها ارائه می‌دهد.

$$\log q_e = \log K_f + \frac{1}{n} (\log C_e) \quad (5)$$

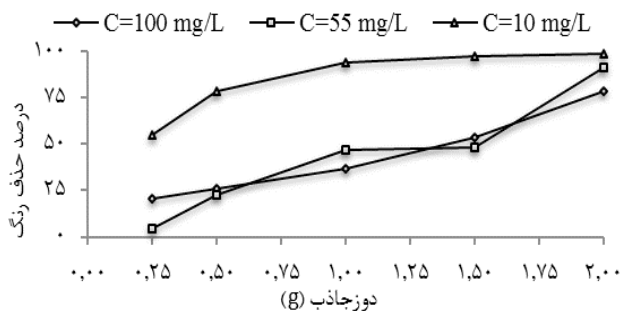
C_e غلظت تعادلی برحسب میلی‌گرم بر لیتر، q_e ظرفیت جذب در زمان تعادل برحسب میلی‌گرم بر گرم و K_f و n ثابت‌های جذب فروندلیچ مربوط به ظرفیت و شدت جذب می‌باشند. K_f (عرض از مبدأ منحنی حاصل و $1/n$ شیب خط می‌باشد) که با رسم نمودار $\log q_e$ در مقابل $\log C_e$ به دست می‌آیند (۲۷).

در ظرف آب مقطر قرار داده شدند و بعد از این زمان آبکشی شده و به مدت ۲۴ ساعت در محیط آزمایشگاه خشک شدن مقدماتی انجام گرفت. سپس به‌منظور خشک شدن کامل، برگ‌ها به مدت ۳ ساعت در دمای ۵۰ درجه سانتی‌گراد در فور قرار داده شدند. در مرحله بعد برگ‌ها با دستگاه پودر کن، پودر گردیدند و از الک عبور داده شدند. در مرحله فعال‌سازی پودر برگ‌ها را به اسید فسفریک (به‌عنوان ماده فعال‌کننده) با نسبت جرمی ۱ به ۱۰ آغشته و در داخل کوزه‌های بدون لعاب قرار داده شدند. دهانه کوزه‌ها با گل کوزه‌گری پوشانده و در دهانه آن، منفذی جهت خروج بخار تعبیه گردید. سپس کوزه در داخل کوره الکتریکی با دمای ۷۰۰ درجه به مدت ۲ ساعت قرار گرفت. سپس کربن فعال‌شده از کوره خارج و با هاون کوبیده و از الک با مش ۵۰ گذرانیده شد. پودر به‌دست‌آمده چندین بار با آب مقطر شستشو گردید و به‌منظور آبیگری از کاغذ صافی عبور داده شد. pH محلول آماده‌شده با استفاده از اسیدسولفوریک و سود یک نرمال در محدوده خنثی (۷) و با توجه به دامنه یابی متغیرهای اصلی تنظیم گردید. در انتها به‌منظور آبیگری کامل در چندین مرحله ۴ ساعته در داخل فور در دمای ۱۴۰ درجه قرار داده شد (۲۶).

در این مطالعه از یک رکتور بسته با حجم کل ۲۰۰ میلی‌لیتر و حجم کاری ۱۰۰ میلی‌لیتر از جنس پیرکس که بر روی یک همزن مغناطیسی با دور برابر ۳۰۰ rpm قرار داشت، استفاده گردید. با توجه به نتایج مطالعات قبلی دامنه متغیرها شامل: غلظت اولیه رنگ (۱۰، ۵۵، ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر)، دوز جاذب (۰/۵، ۰/۲۵، ۱، ۱/۵، ۲ گرم بر لیتر) و زمان تماس (۱۰، ۳۰، ۵۰، ۷۰، ۹۰ و ۱۱۰ دقیقه) تعیین گردید. برای تنظیم pH از اسیدسولفوریک و سود یک نرمال استفاده و pH همه نمونه‌ها در محدوده خنثی (۷) تنظیم گردید. بعد از هر مرحله از آزمایشات، نمونه برداشتی به مدت ۱۰ دقیقه در سانتریفیوژ با سرعت ۲۰۰۰ rpm به‌منظور حذف عوامل مداخله‌کننده در تعیین غلظت مجهول قرار داده شد. جذب نمونه توسط دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج ۶۶۵ نانومتر اندازه‌گیری و غلظت نهایی نمونه با استفاده از معادله خط که نتیجه رسم منحنی کالیبراسیون است تعیین مقدار گردید. کارایی سیستم برحسب مقدار جزء جذب‌شده در واحد جرم جسم جاذب برحسب میلی‌گرم بر گرم (q_e) و درصد حذف به ترتیب مطابق معادله ۱ و ۲ محاسبه شد (۵).

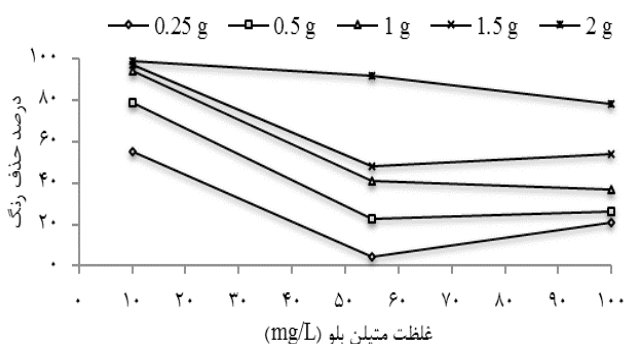
$$q_e = \frac{C_0 - C_e}{M} \cdot V \quad (1)$$

C_0 و C_e غلظت اولیه و تعادلی رنگ در فاز مایع برحسب میلی‌گرم بر لیتر، V حجم محلول برحسب لیتر و M مقدار جاذب برحسب گرم



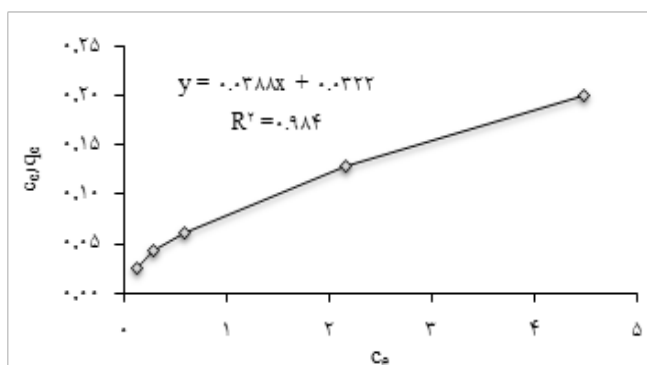
شکل ۴. تأثیر دوز جاذب بر حذف رنگ: زمان ۷۰ دقیقه

نتایج حاصل از تأثیر غلظت اولیه رنگ در شکل ۵ نشان داده شده است. بر اساس این شکل، در غلظت اولیه رنگ برابر ۱۰ میلی‌گرم در لیتر در دوزهای متفاوت ماده جاذب، ۵۵ تا ۱۰۰ درصد از ماده جذب‌شونده حذف گردید.



شکل ۵. تأثیر غلظت اولیه رنگ بر فرایند جذب رنگ: زمان اختلاط ۷۰ دقیقه

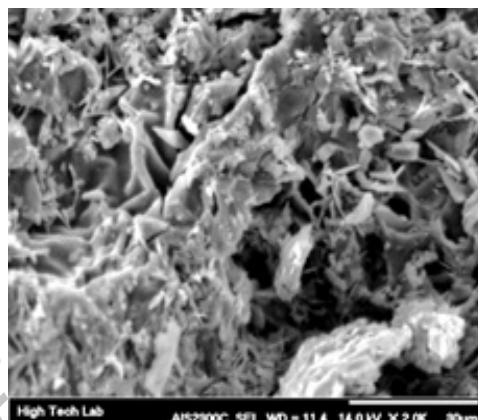
نتایج حاصل از معادلات ایزوترم در جدول ۱ و شکل ۶ و ۷ نشان داده شده است.



شکل ۶: مطالعه ثابت تعادل، مدل ایزوترم لانگمویر

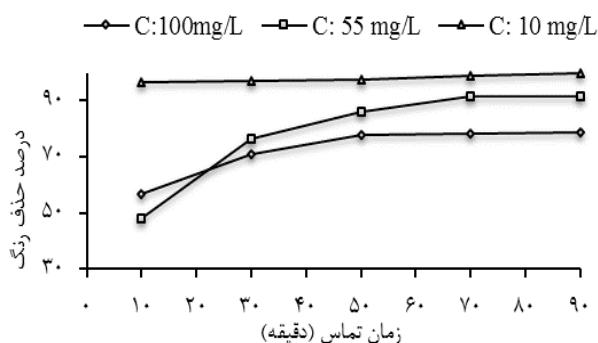
یافته‌ها

نتایج تأثیر جرم جاذب، زمان تماس، غلظت اولیه رنگ و تعیین ایزوترم های جذب در فرایند حذف رنگ با کربن فعال تهیه‌شده از ضایعات درخت انگور به صورت زیر است. تصاویر میکروسکوپ الکترونی کربن فعال تهیه‌شده از برگ درخت انگور با بزرگنمایی ۱۰۰۰۰ از سطح جاذب در شکل ۲ نشان داده شده است.



شکل ۲. تصاویر میکروسکوپ الکترونی کربن فعال تهیه‌شده از برگ درخت انگور

نتایج شکل ۳ گواه تأثیر زمان تماس است که با افزایش زمان تماس از ۱۰ تا ۱۱۰ دقیقه، درصد حذف رنگ افزایش یافته و این افزایش در ۵۰ دقیقه اول بیشترین سرعت را دارا می‌باشد.



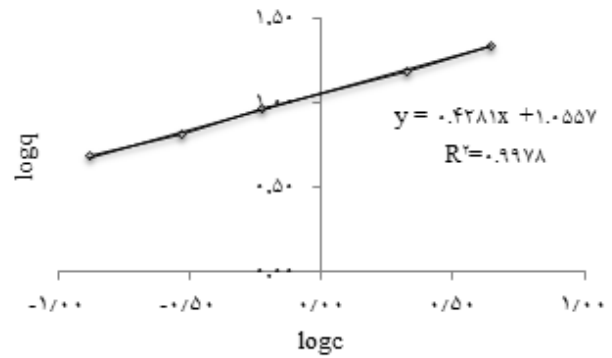
شکل ۳. اثر زمان تماس بر فرایند حذف رنگ: دوز جاذب ۲ گرم، pH ۷ و دما ۱۷±۲ درجه سانتی‌گراد

نتایج به دست آمده در شکل ۴ نشان داد که با افزایش دوز کربن فعال از ۰/۲۵ گرم به ۲ گرم در لیتر میزان حذف رنگ در همه غلظت‌ها

رنگ متیلن بلو در تضاد است که علت آن را می‌توان به متفاوت بودن نوع جاذب مورد مطالعه و فعال‌سازی آن مرتبط دانست که در شرایط ۰/۲۵ گرم در ۲۵ میلی‌لیتر محلول در pH برابر ۴/۵ و دمای ۲۸ درجه سانتی‌گراد، با افزایش زمان تماس به ۲۴۰ دقیقه افزایش درصد جذب رنگ رخ می‌دهد و از ۲۴۰ تا ۴۲۰ دقیقه این روند ثابت می‌ماند (۳۱).

با افزایش تعداد سایت‌های جذبی امکان برخورد بین جاذب و جذب‌شونده بیشتر شده و منجر به افزایش درصد جذب خواهد شد. بیشترین میزان جذب در دقایق اولیه رخ می‌دهد که دلیل آن سرعت جذب بالاتر در زمان‌های ابتدایی است و با گذر زمان و اشغال شدن نقاط فعال سطح جاذب، سرعت جذب کاهش یافت تا اینکه در یک‌زمان مشخص این مقدار ثابت شد که با مطالعات مختلف مطابقت دارد. مطالعه بذرافشان و همکاران نشان داد که با افزایش دوز جاذب (خاکستر ساقه گیاه پرسیکا) از ۰/۲ به ۳ گرم راندمان حذف ماده رنگزا افزایش می‌یابد بطوریکه حداکثر جذب ۹۶/۱۱ درصد بوده که دلیل آن افزایش تعداد سایت جذب با افزایش دوز جاذب عنوان شده است (۳۲) که در تطابق با مطالعه حاضر می‌باشد. این نتایج در مطالعه‌شان هو در جذب متیلن بلو با کربن فعال تهیه‌شده از *Delonix regia* po (۵) و شانتی و ماها لاکشمی (۳۳) در حذف مالاشیت سبز و متیلن بلو از محلول‌های آبی توسط کربن فعال تجاری و پودر هسته آلوجه مورد تأکید بوده است (۳۴). به‌گونه‌ای که با افزایش دوز جاذب در مطالعات ذکرشده به ترتیب از ۲-۲، ۲۵-۲، ۹-۲ و ۰/۲۵-۰/۵ گرم بر لیتر میزان جذب رنگ روند افزایشی را نشان داده است.

درصد حذف رنگ با افزایش غلظت اولیه ماده رنگزا تغییر کرد. در غلظت اولیه رنگ ۱۰ میلی‌گرم در لیتر در دوزهای متفاوت ماده جاذب، بین ۵۵ تا ۱۰۰ درصد از ماده آلاینده حذف گردید؛ اما با افزایش غلظت اولیه ماده رنگزا به ۵۵ میلی‌گرم در لیتر کارایی سیستم به‌صورت چشمگیری کاهش یافت. از طرفی افزایش غلظت آلاینده به ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر نشان داد که کارایی سیستم به‌صورت محسوسی نسبت به غلظت ۵۵ میلی‌گرم در لیتر افزایش داشته است که می‌توان دلیل آن را افزایش غلظت بین مولکول‌های جاذب و جذب‌شونده که نتیجه آن برخورد بیشتر است، نسبت داد که طبیعتاً موجب افزایش جذب آلاینده خواهد شد، اما الزاماً این افزایش جذب باعث بهتر شدن راندمان در غلظت‌های بیشتر آلاینده نخواهد شد و می‌توان گفت در غلظت‌های بالاتر آلاینده در حضور مقدار ثابت جاذب همواره راندمان حذف کاهش خواهد یافت. این روند مطابق شکل ۴ در بالاترین غلظت از ماده جذب‌شونده مشاهده نشد که علت آن را با پدیده جذب و واجذب آلاینده و پدیده تبادل یونی ناشی از نیروهای الکتروستاتیکی و پیوندهای موجود در ساختار جاذب مرتبط می‌دانند که با نتایج مطالعات سایر محققین مطابقت دارد.



شکل ۷. مطالعه ثابت تعادل، مدل ایزوترم فروندلیچ

جدول ۱. پارامترهای ایزوترم لانگمویر و فروندلیچ

لانگمویر			فروندلیچ				
R_L	$q_{m(mg/g)}$	$b(mg/L)$	R^2	K_f	n	R^2	پارامتر
۰/۰۷۶	۲۵/۷۷	۱/۲	۰/۹۸۴	۱۱/۳۶	۲/۳۳	۰/۹۹۷	مقدار

بحث

خلل و فرج‌های موجود در سطح کربن فعال با اندازه‌های مختلف و توزیع تقریباً یکنواخت بر اساس تصاویر گرفته‌شده با میکروسکوپ الکترونی روبشی SEM، نشان‌دهندهی سایت‌های تبدالی فراوان در سطح جاذب بود. سطح ویژه جاذب سنتز شده بر اساس تئوری جذب BET محاسبه و برابر با ۲۸۰/۳۲ مترمربع به ازای گرم جاذب تعیین گردید.

با افزایش زمان تماس از ۱۰ تا ۱۱۰ دقیقه درصد حذف رنگ افزایش‌یافته و این افزایش در ۵۰ دقیقه اول بیشترین سرعت را داشت که علت آن وجود مکان‌های خالی در سطح کربن فعال است که باگذشت زمان این مکان‌ها پر شده و ظرفیت جذب کربن به مقدار ثابت و اصطلاحاً حال تعادل و برابری بین مقدار رنگ جذب‌شده با مقدار واجذب می‌رسد (۲۸). بعد از حالت تعادل مقدار جذب کمی افت پیدا کرده که علت آن را می‌توان واجذب عنوان نمود، به‌طوری‌که کربن فعال اشباع‌شده و دیگر قادر به جذب بیشتر آلاینده نیست که با نتایج مطالعه بازافکن در حذف متیلن بلو توسط جاذب پامیس گرانوله مطابقت دارد. درواقع با افزایش زمان تماس کارایی فرایند جذب افزایش‌یافته که این روند به علت وجود نیروهای قوی بین‌مولکولی رنگ و سطح جاذب می‌باشد (۲۹). علاوه بر این در سایر مطالعات چون مطالعه ماند در استفاده از بذر پونه به‌عنوان یک جاذب مؤثر، حداکثر جذب ۵۶/۴۹ میلی‌گرم بر گرم بوده که در تطابق با مطالعه حاضر است (۳۰) اما با مطالعه یاسین در حذف

نتایج جذب متیلن بلو با استفاده از پامیس در میزان جذب همخوانی ندارد (۳۴). حمید و همکاران نیز حذف رنگ متیلن بلو از محلول آبی را با استفاده از کربن فعال تولیدشده با خاکاره چوب خیزران بررسی نمودند (۲۱) که این نتایج نیز مخالف با نتایج به دست آمده در مطالعه حاضر می باشند.

در بررسی ایزوترم های جذب، میزان RL جذب متیلن بلو بر روی جاذب معادل $0/076$ محاسبه شد که نشان دهنده جذب مطلوب رنگ بر روی این جاذب می باشد. ضریب جذب رنگ متیلن بلو با استفاده از کربن فعال برای مدل های ایزوترمی لانگمویر و فروندلیچ به ترتیب برابر با $0/984$ و $0/997$ تعیین شد که با توجه به این مقادیر مشاهده می شود که جذب رنگ متیلن بلو از هر دو ایزوترم پیروی می کرد ولی نتایج تناسب بهتری با مدل فروندلیچ داشت.

مطالعه حاضر نشان می دهد که حذف رنگ تحت تأثیر ۳ عامل دوز جاذب، غلظت اولیه رنگ و زمان تماس می باشد. به طوری که با افزایش زمان تماس و دوز جاذب کارایی حذف رنگ افزایش یافته و با افزایش غلظت اولیه رنگ درصد حذف رنگ کاهش می یابد. بهترین راندمان حذف رنگ (100%) در غلظت 10 میلی گرم در لیتر ماده جذب شونده در 2 گرم ماده جذب شونده رخ داد. حذف رنگ متیلن بلو از هر دو معادله لانگمویر ($R^2=0/984$) و فروندلیچ ($R^2=0/994$) پیروی می کند. بر اساس نتایج حاصل از مطالعه می توان نتیجه گیری نمود که کربن فعال تهیه شده از برگ درخت انگور از ظرفیت بالایی

به طوری که آلزایدین در جذب متیلن بلو توسط Jordanian Tripol نشان داد، با افزایش غلظت متیلن بلو درصد حذف از روند کاهشی تبعیت می نماید (۳۵). از آنجایی که جذب وابسته به غلظت اولیه آلاینده و سایت های تبادل است، لذا افزایش مقدار جاذب و کاهش غلظت رنگ منجر به افزایش میزان جذب رنگ می گردد و این اختلاف را می توان ناشی از این موضوع دانست. در واقع وجود سایت های جذب قابل تبادل و در دسترس به اندازه کافی در غلظت های کم دلیل اصلی بالا بودن راندمان جذب در این شرایط می باشد و در این حالت قابلیت دسترسی سایت های جذب بر غلظت مولکول های MB غلبه می نماید. در حالت عکس، مولکول های MB در محلول هایی با غلظت بالا دارای نیروی رانش بیشتری بوده و بر نیروی مقاومت انتقال جرم بین فاز جامد و محلول غلبه می نماید، بنابراین ظرفیت جذب MB با افزایش غلظت اولیه افزایش می یابد. چنین پدیده ای در یک راکتور ناپیوسته با هر کدام از دز ثابت یا غلظت متغیر اولیه جذب شونده یا بالعکس معمول است که از مطالعه شانتی و ماها لاکشمی در حذف مالاشیت سبز و متیلن بلو توسط کربن فعال تجاری و پودر هسته آلوجه تبعیت می نماید (۳۳). شهااتا نیز جذب متیلن بلو با استخوان حیوانات را مطالعه کرد و به این نتیجه دست یافت که با افزایش غلظت اولیه رنگ راندمان حذف کاهش می یابد (۳۶). سونی و همکاران نیز در حذف رنگ متیلن بلو با استفاده از پودر تهیه شده از ریشه سنبل به نتایجی مشابه با مطالعه حاضر دست یافتند (۳۷). از طرفی، مطالعه حاضر با در جذب رنگ متیلن بلو از محلول های آبی برخوردار است.

References

1. Rezaee-Mofrad MR, Miranzadeh MB, Pourgholi M, Akbari H, Dehghani R. Evaluating the efficiency of advanced oxidation methods on dye removal from textile wastewater. *Feyz Journals of Kashan University of Medical Sciences*. 2013;17(1):12-19 (In Persian).
2. Massoudinejad MR, khashij M, Soltanian M. Survey of Electrocoagulation Process in the Removal of Pathogen Bacteria from wastewater before Discharge in the Acceptor Water. *J Saf Promot Inj Prev*. 2014;2(1):9-14 (In persian).
3. Conceição V, Freire FB, de Carvalho KQ. Treatment of textile effluent containing indigo blue dye by a UASB reactor coupled with pottery clay adsorption-doi: 10.4025/actascitechnol. v35i1. 13091. *Acta Scientiarum Technology*. 2012;35(1):53-8.
4. Bahmani P, et al. Efficiency of fenton oxidation process in removal of remazol black-B from aquous medium. *Journal of health and hygiene* 2013;4(1):57-67 (In persian).
5. Ho Y-S, Malarvizhi R, Sulochana N. Equilibrium isotherm studies of methylene blue adsorption onto activated carbon prepared from Delonix regia pods. *Journal of environmental protection science*. 2009;3(2):111-6.
6. Khan MN, Wahab MF. Characterization of chemically modified corncobs and its application in the removal of

metal ions from aqueous solution. *Journal of hazardous materials*. 2007;141(1):237-44.

7. Umpuch C, Jutarat B. Adsorption of organic dyes from aqueous solution by surfactant modified corn straw. *International journal of chemical engineering and applications*. 2013;4(3):134-139.

8. Maghri I, Amegrissi F, Elkouali M, Kenz A, Tanane O. Comparison of Adsorption of Dye Onto Low-Cost Adsorbents. *Global Journal of Science Frontier Research*. 2012;12(4-B):20-32.

9. Adeyemo AA, Adeoye IO, Bello OS. Adsorption of dyes using different types of clay: a review. *Applied Water Science*. 2015;20(2):1-26.

10. Yang K, Xing B. Adsorption of organic compounds by carbon nanomaterials in aqueous phase: Polanyi theory and its application. *Chemical reviews*. 2010;110(10):5989-6008.

11. Metcalf and Eddy I. *Wastewater Engineering: Treatment, Disposal and Reuse*. "3rd ed. New York: McGraw-Hill. 1995.

12. Adegoke KA, Bello OS. Dye sequestration using agricultural wastes as adsorbents. *Water Resources and Industry*. 2015;12(2):8-24.

13. Azad HS. *Industrial wastewater management handbook*: McGraw-Hill; 1976.

14. Ansari S, Jafari M, Sedghi R, Rezazadeh Azari M, Zendehtdel R. Toluene vapors adsorption in the fixed and fluidized bed by Nano-Zeolite. *J Saf Promot Inj*. 2015;3(3):155-60 (In Persian).

15. Tsai W-T, Hsien K-J, Hsu H-C, Lin C-M, Lin K-Y, Chiu C-H. Utilization of ground eggshell waste as an adsorbent for the removal of dyes from aqueous solution. *Bioresource technology*. 2008;99(6):1623-9.

16. Pavan FA, Mazzocato AC, Gushikem Y. Removal of methylene blue dye from aqueous solutions by adsorption using yellow passion fruit peel as adsorbent. *Bioresource technology*. 2008;99(8):3162-5.

17. Tsui LS, Roy WR, Cole MA. Removal of dissolved textile dyes from wastewater by a compost sorbent. *Coloration Technology*. 2003;119(1):14-8.

18. Song J, Zou W, Bian Y, Su F, Han R. Adsorption characteristics of methylene blue by peanut husk in batch and column modes. *Desalination*. 2011;265(1):119-25.

19. Kadirvelu K, Karthika C, Vennilamani N, Pattabhi S. Activated carbon from industrial solid waste as an adsorbent for the removal of Rhodamine-B from aqueous solution: Kinetic and equilibrium studies. *Chemosphere*. 2005;60(8):1009-17.

20. Namasivayam C, Kavitha D. Removal of Congo Red from water by adsorption onto activated carbon prepared from coir pith, an agricultural solid waste. *Dyes and pigments*. 2002;54(1):47-58.

21. Ahmad A, Hameed B. Fixed-bed adsorption of reactive azo dye onto granular activated carbon prepared from waste. *Journal of hazardous materials*. 2010;175(1):298-303.

22. Ministry of agriculture jihad. "Department of planning and economy statistical office of information technology publication" no82/03page:72-74. <http://www.maj.ir/Portal/Home/>.

23. Kargar far A, Norbakhsh A. The use of lignocellulosic wastes Make Az•hrs grape trees spraye. Particleboard. Natural Resources. 2000; 2(78):1-6.
24. Hejazifar M, Azizian S. Adsorption of cationic and anionic dyes onto the activated carbon prepared from grapevine rhytidome. Journal of Dispersion Science and Technology. 2012;33(6):846-53.
25. Weng C-H, Pan Y-F. Adsorption of a cationic dye (methylene blue) onto spent activated clay. Journal of Hazardous Materials. 2007;144(1-2):355-62.
26. Hameed BH, Din ATM, Ahmad AL. Adsorption of methylene blue onto bamboo-based activated carbon: Kinetics and equilibrium studies. Journal of Hazardous Materials. 2007;141(3):819-25.
27. Mahvi A, Heibati B. Removal efficiency of azo dyes from textile effluent using activated carbon made from walnut wood and determination of isotherms of acid red18. 2011; 1(3): 7-15 (In Persian).
28. Massoudinejad MR, Eslami A, Khashij M. Removal of Mn²⁺ from aqueous solution using Clinoptilolite coated with manganese dioxide. J Saf Promot Inj Prev. 2015;2(4):265-72 (In persian).
29. Ghanizadeh G, Asgari G. Removal of methylene blue dye from synthetic wastewater with bone char. Iranian Journal of Health and Environment. 2009;2(2):104-13.
30. Mundhe K, AB G, Kale A, Deshpande N, Kashalkar R. Polyalthia longifolia (Ashoka) seeds: An effective adsorbent for Methylene Blue removal. 2012;3(1): 180-187.
31. Yasin Y, Hussein MZ, Ahmad FH. Adsorption of methylene blue onto treated activated carbon. The Malaysian journal of analytical sciences. 2007;11(11):400-6.
32. Bazrafshan E, Kord Mostafapour F. Evaluation of color removal of Methylene blue from aqueous solutions using plant stem ash of Persica. J of North Khorasan University of Medical Sciences. 2012;4(3):523-32.
33. Shanthi S, Mahalakshmi T. Studies on the removal of Malachite Green and Methylene Blue dyes from aqueous solutions of their binary mixture by adsorbtion over commercial activated carbon and tamarind kernel powder. International Journal of Research in Pharmacy and Chemistry. 2012;20(2):2231-781.
34. Rehman MSU, Kim I, Han J-I. Adsorption of methylene blue dye from aqueous solution by sugar extracted spent rice biomass. Carbohydrate polymers. 2012;90(3):1314-22.
35. ALzaydien AS. Adsorption of methylene blue from aqueous solution onto a low-cost natural Jordanian Tripoli. American Journal of Applied Sciences. 2009;6(6):197-208.
36. Shehata A. Removal of methylene blue dye from aqueous solutions by using treated animal bone as a cheap natural adsorbent. Int J Emerg Technol Adv Eng. 2013;3(2):1-7.
37. Soni M, Sharma AK, Srivastava JK, Yadav JS. Adsorptive removal of methylene blue dye from an aqueous solution using water hyacinth root powder as a low cost adsorbent. International Journal of Chemical Sciences and Applications. 2012;3(3):338-45.

Adsorption Isotherm Study and Factor Affected on Methylene Blue Decolorization using Activated Carbon Powder Prepared Grapevine Leaf

Mousavi SA^{*1}, Khashij M¹, Shahbazi P¹

Background and Objectives: One of the methods of color removal is adsorption using natural adsorbents. Adsorption process because of lower cost, easy operation and high sensitive to toxic substances than other methods is a priority. So, the aim of present study was to adsorption isotherm and factor affected on Methylene Blue decolorization using activated carbon powder prepared Grapevine Leaf.

Materials and Methods: This experimental study with different parameters such as initial concentration of MB, adsorbent dosage and contact time on the MB adsorption in the batch system were investigated.

Results: Results showed that the adsorption efficiency was achieved to 100% at 10 and 100 mg/L of MB when the amount of adsorbent was 2 g/L with contact time of 90 and 70 min at pH=7. Adsorption process could be follow of both Freundlich ($R^2= 0.994$) and Langmuir (0.984) isotherm which that by Freundlich isotherm, maximum dye adsorption was calculated to 25.77 mg/g.

Conclusion: Based on the obtained results it can be concluded that activated carbon prepared of grapevine leaf has high capacity for Methylene Blue dye from aqueous solution.

Keywords: Wastewater, Adsorption, Grapevine, Methylene Blue