

بررسی کارآیی کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن در حذف مس (II) از محلول‌های آبی

صالحه صالح‌نیا^۱، بهنام باریک‌بین^۲، حدیقه درّی^۳

چکیده

زمینه و هدف: یون‌های مس می‌توانند به واسطه تشکیل کمپلکس با ترکیبات آلی و معدنی، اثرات نگران‌کننده‌ای بر سلامتی و محیط زیست داشته باشد. در این مطالعه، اثر کربن فعال پودری مغناطیسی شده توسط نانوذرات اکسید آهن بر حذف یون مس (II) از محلول‌های آبی، مورد بررسی قرار گرفت.

روش تحقیق: این مطالعه تجربی، در مقیاس آزمایشگاهی و در رژیم جریان ناپیوسته با هدف بررسی اثر پارامترهای مختلفی از جمله: pH، زمان تماس، دوز جاذب و غلظت اولیه بر فرآیند جذب مس (II) توسط کربن فعال پودری مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن، انجام شد. برای بررسی خصوصیات جاذب سنتز شده، از عکس‌ها و طیف‌های SEM، TGA، FT-IR استفاده شد. غلظت باقیمانده مس (II)، توسط دستگاه جذب اتمی شعله‌ای در طول موج ۳۲۴/۸ نانومتر قرائت گردید. داده‌های به‌دست آمده، با استفاده از مدل‌های ایزوترمی فروندلیچ و لانگمویر تشریح شد.

یافته‌ها: یافته‌های این مطالعه نشان داد که نانوذرات سنتز شده می‌توانند بیش از ۹۶٪ درصد از یون‌های مس را در $pH=10$ و مدت‌زمان ۲ دقیقه، با دوز جاذب یک‌گرم در لیتر حذف کنند. همچنین نتایج این مطالعه نشان داد که الگوی جذب مس (II)، با مدل لانگمویر انطباق بیشتری دارد.

نتیجه‌گیری: بر اساس یافته‌ها، نانوذرات سنتز شده مغناطیسی پوشیده شده با کربن فعال، در محیط آبی به‌صورت پراکنده بوده و به‌راحتی توسط میدان مغناطیسی خارجی قابل جداسازی هستند. از طرفی به‌دلیل وجود کربن فعال و سایت‌های فعال جاذب موجود در ساختار اکسید آهن، قابلیت جذب سطحی افزایش یافته و این نانوذرات کارایی بالایی در حذف آلاینده مس از محیط‌های آبی از خود نشان می‌دهند.

واژه‌های کلیدی: کربن فعال، نانوذرات مغناطیسی، مس، اکسید آهن

مجله علمی دانشگاه علوم پزشکی بیرجند. ۱۳۹۵؛ دوره ۲۳ (۱): .

پذیرش: ۱۳۹۴/۱۰/۱۶

دریافت: ۱۳۹۴/۰۵/۱۲

^۱ دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، عضو کمیته تحقیقات دانشجویی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی بیرجند، بیرجند، ایران.

^۲ نویسنده مسؤول؛ دانشیار، عضو مرکز تحقیقات عوامل اجتماعی موثر بر سلامت، دانشگاه علوم پزشکی بیرجند، بیرجند، ایران.

آدرس: بیرجند- خیابان غفاری- دانشگاه علوم پزشکی بیرجند- دانشکده بهداشت

تلفن: ۰۵۶۳۳۳۸۱۶۵۴ پست الکترونیکی: b_barikbin@yahoo.com

^۳ کارشناس ارشد شیمی تجزیه، آزمایشگاه شیمی محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی بیرجند، بیرجند، ایران.

مقدمه

امروزه یکی از نگرانی‌های زیست‌محیطی، وجود فلزات سنگین در آب‌های زیرزمینی و فاضلاب‌های صنعتی است. با توجه به اینکه مقادیر ناچیز این یون‌ها، با مواد آلی طبیعی تشکیل کمپلکس داده و حتی مقادیر کم آنها دارای اثرات سمی می‌باشد؛ بنابراین حذف آنها از آب آشامیدنی ضروری است (۱).

مس یکی از این فلزات سنگین است که به‌طور وسیعی در تعداد زیادی از صنایع مثل: آبکاری، رنگ‌آمیزی، برق، کود، تولید چوب، رنگدانه (۱)، کارخانجات تولید مقوّا و خمیر کاغذ (۲) و صنایع نساجی و ساخت باتری (۳) به‌کار می‌رود. گسترش سریع این صنایع منجر به تجمع مس (II) در محیط زیست می‌گردد (۱). یون فلزی مس برخلاف آلایندگی‌های آلی، غیرقابل تجزیه بیولوژیکی می‌باشد؛ در غلظت بالا سمی است و می‌تواند مشکلات جدی زیست‌محیطی و بهداشت عمومی از جمله عوارضی مثل: کم‌خونی (۴)، تغییرات در استخوان‌ها، افزایش کلسترول، سبز رنگ‌شدن موها (۵)، ناراحتی‌های معده و روده (۴)، مشکلات تنفسی، کبدی و کلیوی (۳)، استفراغ، گرفتگی عضلات، تشنج و حتی مرگ را ایجاد نماید (۶، ۷)؛ همچنین احتمال ابتلا به سرطان ریه را افزایش می‌دهد (۴). در بین انواع یون‌های مس، یون مس (II) اثرات نگران‌کننده‌ای بر محلول‌های آبی دارد (۸).

فناوری‌هایی که بیشتر برای حذف یون مس (II) از فاضلاب صنعتی، توسعه یافته‌اند شامل: ترسیب شیمیایی، تبادل یونی، انعقاد، الکترولیز، اسمز معکوس و جذب هستند (۹). امروزه استفاده از روش جذب برای تصفیه فاضلاب‌های غنی از مس، مورد توجه زیادی قرار گرفته است (۱). اما مشکل اساسی برای استفاده انواع مختلف جاذب‌ها، جداسازی جاذب‌ها بعد از جذب آلایندگی است. در سال‌های اخیر فناوری جذب مغناطیسی، با توجه به راندمان بالا و سهولت جداسازی بعد از تصفیه، به یکی از فناوری‌های نوظهور در حل مشکلات زیست‌محیطی تبدیل شده است (۱۰). این فناوری

در زمینه تصفیه آب، توجه زیادی را به‌خود جلب کرده است. بعد از استفاده از جاذب مغناطیسی، می‌توان آن را به آسانی از طریق نیروی مغناطیسی، جداسازی نمود.

اکسید آهن به‌صورت موفقیت‌آمیزی به‌عنوان مواد کامپوزیت با مواد میزبان (انواع جاذب‌ها)، در ساخت جاذب مغناطیسی استفاده می‌شود (۱۰-۱۲). مزایای اصلی استفاده از اکسید آهن در ترکیب با جاذب‌های مختلف؛ تخلخل بالا، خاصیت مغناطیسی و گاهی اوقات ته‌نشینی خوب می‌باشد. زئولیت، آلزینات، کیتوزان، خاک رس و کربن فعال، قابلیت استفاده به‌عنوان بستر جاذب را دارند (۱۰). از میان این جاذب‌ها، کربن فعال مغناطیسی (Magnetic Activated Carbon) دارای خاصیت منحصر به فردی است؛ به‌طوری‌که نانوذرات مغناطیسی پوشیده‌شده با کربن فعال (ACMNP's)، به‌آسانی با یک میدان مغناطیسی خارجی قابل جداسازی بوده و مواد مضر همراه با ذرات مغناطیسی، به کمک این میدان مغناطیسی، از محیط جدا می‌شوند. بعد از جداسازی مغناطیسی، ترکیبات مضر به‌آسانی از ذرات مغناطیسی حذف شده و ذرات مغناطیسی بازیابی‌شده، قابل استفاده مجدد خواهند بود (۱۳)؛ ضمن اینکه وجود کربن فعال، خود نیز می‌تواند عمل جذب را افزایش دهد.

عادل و همکاران (۲۰۱۲) برای حذف مس، نیکل و روی از نمونه فاضلاب ایران خودرو، از سدیم دو دسیل سولفات پوشیده‌شده با نانوذرات مغناطیسی استفاده نمودند که نتیجه کاربرد این ترکیب برای حذف یون‌های فلزی، رضایت‌بخش بود (۱۴). Ozmen و همکاران (۲۰۱۰) نیز برای جذب مس (II) از محلول‌های آبی، از نانوذرات مغناطیسی Fe_3O_4 اصلاح‌شده استفاده نمودند. نتایج مطالعه آنها نشان داد، ماکزیمم حذف مس (II)، در pH بین ۴ تا ۵/۳ رخ داد (۱۵). Hao و همکاران (۲۰۱۰)، نانوذرات مغناطیسی عامل‌دار آمینی $(MNP-NH_2)$ را برای حذف مؤثر یون $Cu(II)$ از محلول‌های آبی مورد استفاده قرار دادند. مطابق ایزوترم

¹ Activated Carbon magnetic nano particles

قرار گرفت. در این مرحله، تزریق گاز ازت که از طریق مجرای بالن دو دهانه انجام می‌شد، متوقف گردید. در مرحله آخر، مواد به دست آمده که دارای pH قلیایی بود، توسط آب مقطر شستشو داده شد؛ تا حدی که pH آن در محدوده خنثی قرار گرفت.

همه مواد مورد استفاده در آزمایش، ساخت شرکت Merek آلمان بود. دستگاه‌های مورد استفاده شامل: دستگاه جذب اتمی شعله‌ای مدل VARIAN AA240 ساخت کشور استرالیا، دستگاه pH متر مدل Knick 765 ساخت آلمان و دستگاه شیکر مدل IKA KS260 ساخت ایتالیا، بودند.

جذب مس (II) به وسیله کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن از محلول‌های آبی:

آزمایش‌های جذب در یک سیستم ناپیوسته (Batch) در دمای آزمایشگاه و با دوبار تکرار بر روی نمونه‌های سنتتیک انجام گرفت. تأثیر پارامترهای pH در دامنه ۲ تا ۱۲، دوز جذب در محدوده ۰/۱، ۰/۳، ۰/۵، ۱، ۳، و ۵ گرم در لیتر، زمان واکنش در محدوده ۲-۵-۱۰-۱۵-۳۰-۶۰ و ۱۲۰ دقیقه، غلظت‌های اولیه مس با توجه به میزان حضور و آلودگی آن در محیط‌های آبی برابر ۱، ۳، ۵، ۷ و ۱۰ میلی‌گرم در لیتر بر کارایی حذف و ظرفیت جذب مس (II) توسط کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن مورد بررسی قرار گرفت. متغیرهای مورد نظر در هر مرحله بهینه گردید که با توجه به آزمایشات انجام شده، بهترین کارایی حذف مس توسط این جاذب در محلول‌های آبی در شرایط بهینه به دست آمد. در هر مرحله، جاذب به کاررفته توسط آهنربای مغناطیسی N42 جدا شده و غلظت باقیمانده مس در محلول، توسط دستگاه جذب اتمی در طول موج ۳۲۴/۸ نانومتر بر اساس کتاب استاندارد آزمایش‌های آب و فاضلاب، سنجش شد. در نهایت مقدار مس جذب شده در حالت تعادل و راندمان حذف، توسط معادله‌های ۱ و ۲ تعیین شد (۱۷).

لانگمویر، در مطالعه آنها حداکثر ظرفیت جذب $25/77 \text{mgg}^{-1}$ در $\text{pH}=6$ و 298K بود (۱). احرام‌پوش و همکاران (۱۳۹۱) از نانوذرات آهن اکسید برای حذف نیکل از آب خنک‌کننده مصنوعی نیروگاه اتمی، استفاده نمودند. نتایج مطالعه آنها نشان داد، با افزایش pH در محیط قلیایی، راندمان حذف افزایش می‌یابد؛ زیرا وقتی که pH محلول، بالای نقطه ایزوالکتریک باشد، سطح اکسید به طور منفی شارژ می‌شود و می‌تواند با کاتیون (مثلاً یون‌های فلزی) تشکیل کمپلکس‌های سطحی دهد (۱۶). با توجه به مطالب ذکر شده، در مطالعه حاضر به بررسی نقش کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن در حذف مس (II) از محلول‌های آبی پرداخته شد.

روش تحقیق

مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی در مقیاس آزمایشگاهی است که در سیستم جریان ناپیوسته در محیط آزمایشگاهی انجام شد. در این مطالعه، سنتز و آماده‌سازی نانوذرات، با استفاده از روش هم‌رسوبی شیمیایی، با افزودن نمک‌های آهن دو ظرفیتی و سه ظرفیتی، در محیط قلیایی و با دمیده شدن گاز ازت به منظور اکسیژن زدایی انجام گردید. برای سنتز و آماده‌سازی جاذب مورد استفاده، به طریق زیر عمل شد: (۱۵)

- ابتدا یک گرم کربن فعال پودری، با ۱۰۰ میلی‌لیتر سدیم‌هیدروکسید به مدت ۲ ساعت روی شیکر با دور 300rpm همزده شد.
- در مرحله دوم، ۳۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر داخل بالن دو دهانه ریخته و بر روی میکسر به مدت ۳۰ دقیقه در حضور گاز ازت به دمای ۶۰ تا ۷۰ درجه سانتی‌گراد رسانده شد.
- در مرحله سوم به آب مقطر روی میکسر ۴/۱ گرم نمک آهن (II) و ۶/۲ گرم نمک آهن (III) اضافه گردید.
- در مرحله چهارم، مواد آماده شده در مرحله اول به مواد روی میکسر اضافه شد و در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد و دور ۱۰۰۰ دور در دقیقه، به مدت یک ساعت روی میکسر

اکسید آهن پایین‌تر از 600cm^{-1} مربوط به پیوندهای $\text{Fe}^{2+} \leftrightarrow \text{O}$ و $\text{Fe}^{3+} \leftrightarrow \text{O}$ بود که نشان‌دهنده تشکیل نانوساختارهای Fe_2O_4 یا Fe_3O_4 است. وجود پیک‌ها در بازه 1000 تا 1300cm^{-1} و 2000 تا 3000cm^{-1} مربوط به وجود گروه‌های $\text{C}=\text{H}$ و $\text{C}-\text{O}$ کششی بوده و بالاتر از 3000cm^{-1} مربوط به وجود گروه‌های $\text{O}-\text{H}$ ارتعاشی در ترکیب بود که همگی تأییدکننده وجود گروه‌های عاملی در ساختار نانوذره است. این تغییرات در طیف IR نشان داد که نانوذرات موردنظر، با موفقیت سنتز شدند.

آنالیز تست TGA مربوط به ACMNPs:

مطابق شکل ۲، نانوذره از دمای صفر تا 700 درجه ماده، با یک شیب (مقدار شیب نانوذره به‌وسیله خط مماس بر آن، که محور ایکس‌ها را قطع می‌کند، مشخص می‌شود که به نظر 45 درجه می‌باشد) شروع به از دست‌دادن جرم کرد که این جرم معمولاً مربوط به مواد عالی می‌باشد. در دمای بالاتر از 700 ، از دست‌دادن جرم تقریباً متوقف شد که نشان داد مواد عالی مثل پلیمر در ماده وجود نداشت و تنها مواد معدنی باقی ماندند.

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{m} \quad \text{معادله (۱)}$$

$$R = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad \text{معادله (۲)}$$

در معادله یک، V حجم محلول (لیتر)، C_0 و C_e غلظت اولیه و تعادلی در فاز مایع (میلی‌گرم در لیتر) و m مقدار جاذب مورد استفاده (گرم) است. در معادله ۲، R راندمان حذف (%) است. برای بررسی مدل‌های جذب از مدل ایزوترم‌های لانگمویر و فروندلیچ استفاده گردید.

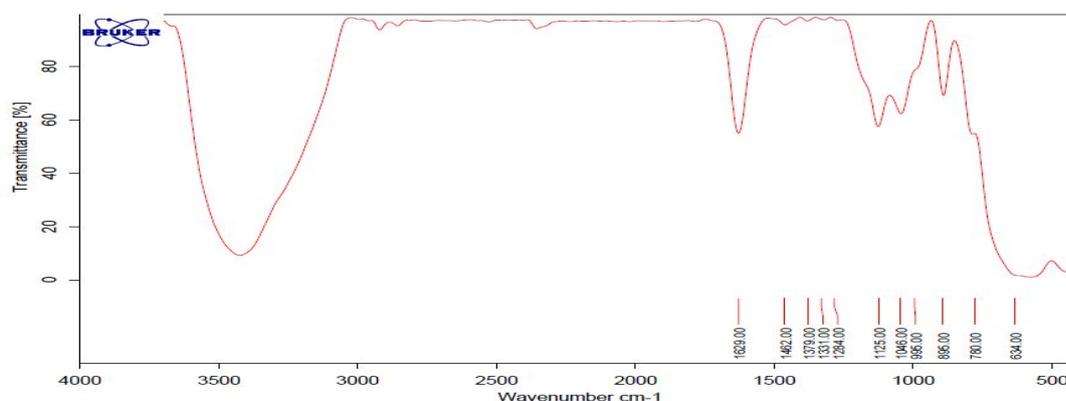
یافته‌ها

بررسی ساختار نانوذرات اکسید آهن:

در شکل‌های ۱، ۲ و ۳ ساختار نانوذرات اکسید آهن نشان داده شده است. برای شناسایی گروه‌های عاملی موجود در ساختار مولکولی نانوذرات تولیدشده، از آزمایش FTIR با طول موج بین 400 cm^{-1} تا 4000 cm^{-1} استفاده شد. همچنین آنالیز گرما وزن‌سنجی (TGA)، برای اندازه‌گیری جرم نمونه به‌عنوان تابعی از دما به‌کار رفت.

آنالیز طیف FT-IR مربوط به ACMNPs:

در بررسی طیفی FT-IR، وجود پیک نوار جذبی نانوذرات



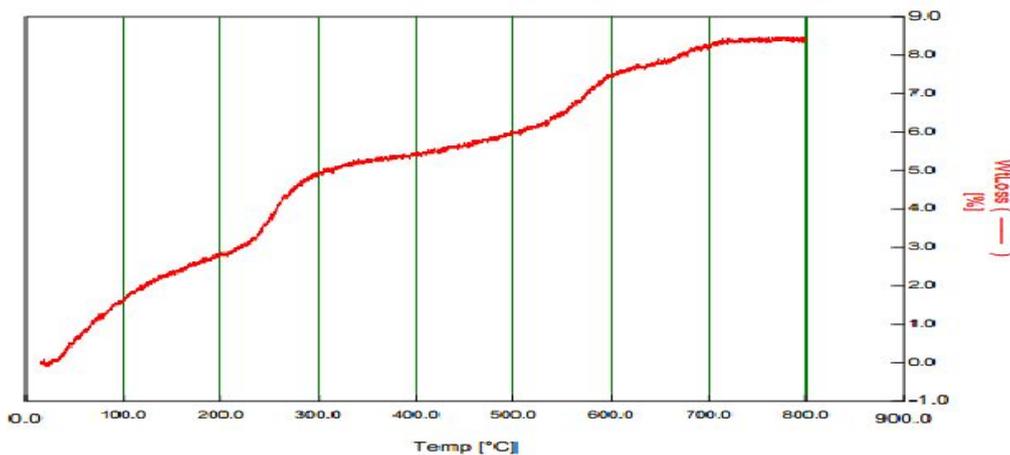
شکل ۱- طیف FT-IR مربوط به نانوذرات Fe_3O_4

آنالیز تصویر SEM مربوط به ACMNPs:

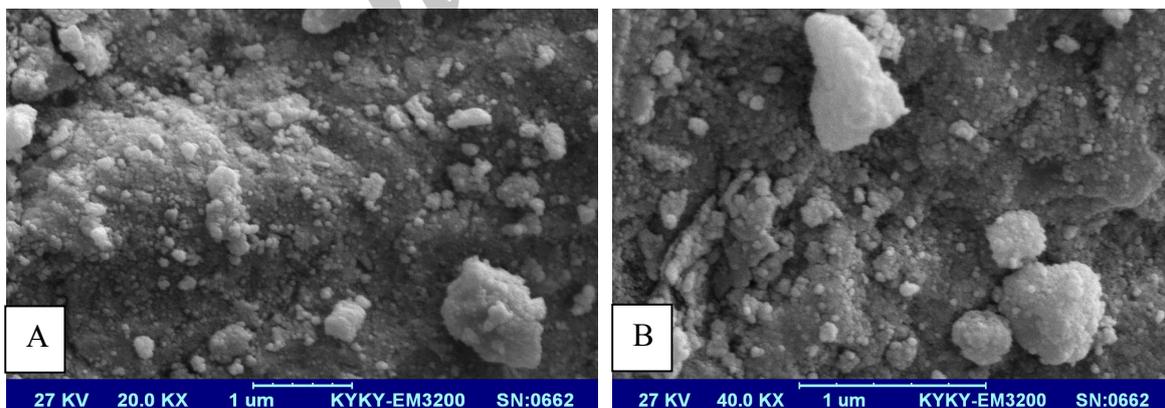
محیط هنگام خشک شدن آنها باشد. همان طور که مشاهده می‌گردد، اندازه نانوذرات سنتز شده، در محدوده $37/3-49/7\text{nm}$ می‌باشد.

از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) به صورت گسترده، برای تعیین مورفولوژی، شکل و تخمین اندازه ذرات در ابعاد میکرو و نانو استفاده می‌شود. شکل ۳، نشان‌دهنده تشکیل ساختارهای نانومقیاس بوده (با توجه به ابعاد نشان داده شده در روی شکل) که دارای شکل کروی می‌باشند.

شکل و اندازه نانوذرات، توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی تعیین شد. شکل ۳ تصاویر SEM مربوط به این نانوذرات را قبل و بعد از فرآیند جذب نشان می‌دهد که دارای ذرات کروی چسبیده به سطح ذرات با دانسیته بالا هستند. مطابق تصویر، مواد تشکیل شده دارای اندازه یکنواخت بوده و توزیع یکسانی داشتند که می‌تواند بیان‌کننده دمای مناسب در ساخت آنها باشد. در بعضی مناطق، ذرات حالت کلوخه‌ای شده‌ای دارند که شاید به دلیل یکسان نبودن دمای



شکل ۲- تست TGA مربوط به نانوذرات Fe_3O_4



شکل ۳- عکس SEM مربوط به نانوذرات Fe_3O_4 . (A) قبل از فرآیند جذب مس، (B) بعد از فرآیند جذب مس

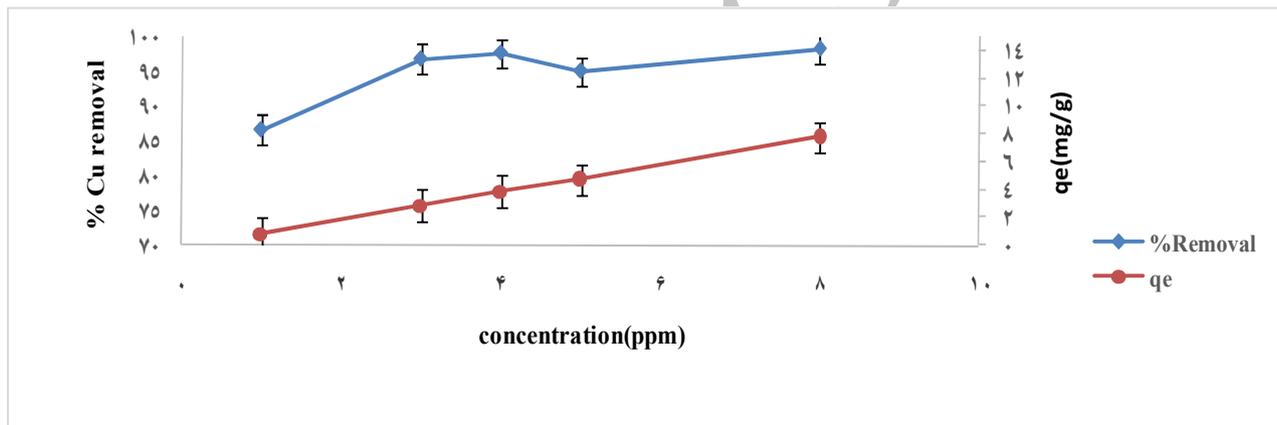
بررسی pH بهینه برای حذف مس:

نتیجه مطالعه نشان داد که با افزایش pH تا محدوده ۸ تا ۱۰، قابلیت حذف آلاینده افزایش می‌یابد. بالاترین میزان حذف در pH=۱۰ مشاهده گردید. در pHهای بالاتر از ۱۰، یون مس به صورت هیدروکسید رسوب می‌کند؛ در نتیجه در pHهای بالاتر ۱۰، فرآیند جذب سیر کاهشی پیدا می‌کند. در نمودار ۱، اثر متغیر pH بر میزان حذف یون مس II توسط کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن، نشان داده شده است.

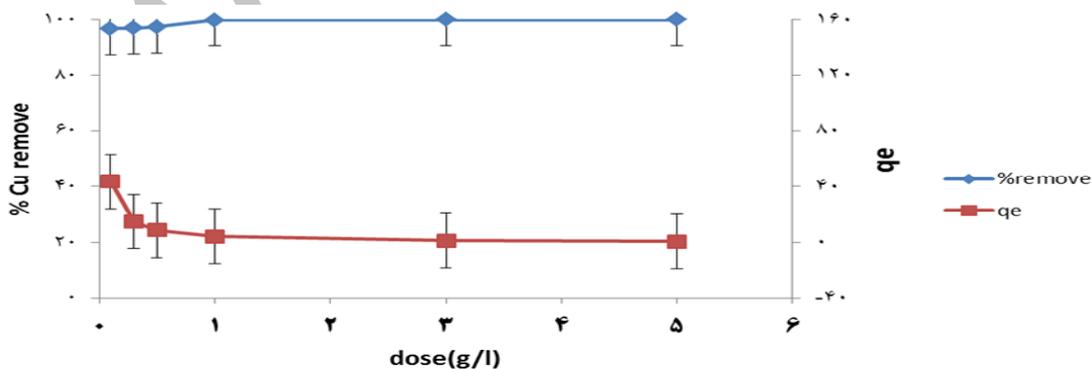
نداشت؛ چون سایت‌های فعال موجود در جاذب، زیاد بوده و با افزایش دوز جاذب، تعداد سایت‌های فعال بیشتری در اختیار یون‌های فلزی است؛ بنابراین تعداد یون‌های فلزی به‌دام‌افتاده در فاز جاذب، افزایش می‌یابد. میزان دوز جاذب بهینه در محدوده ۰/۱ تا یک گرم در لیتر بود. از آنجایی که کمترین مقدار جاذب با بالاترین کارایی حذف به‌عنوان دوز بهینه انتخاب می‌گردد، در مراحل بعدی مقدار یک گرم در لیتر جاذب مورد استفاده قرار گرفت. در نمودار ۲، اثر میزان دوز جاذب بر راندمان حذف یون مس II توسط کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن، نشان داده شده است.

تأثیر دوز جاذب:

افزایش میزان دوز جاذب، تأثیر چندانی بر کارایی حذف



نمودار ۱- تأثیر تغییرات pH بر کارایی حذف یون مس از محلول‌های آبی با استفاده از ACMNPs با دوز جاذب معادل یک گرم در لیتر و مدت زمان ۲ دقیقه



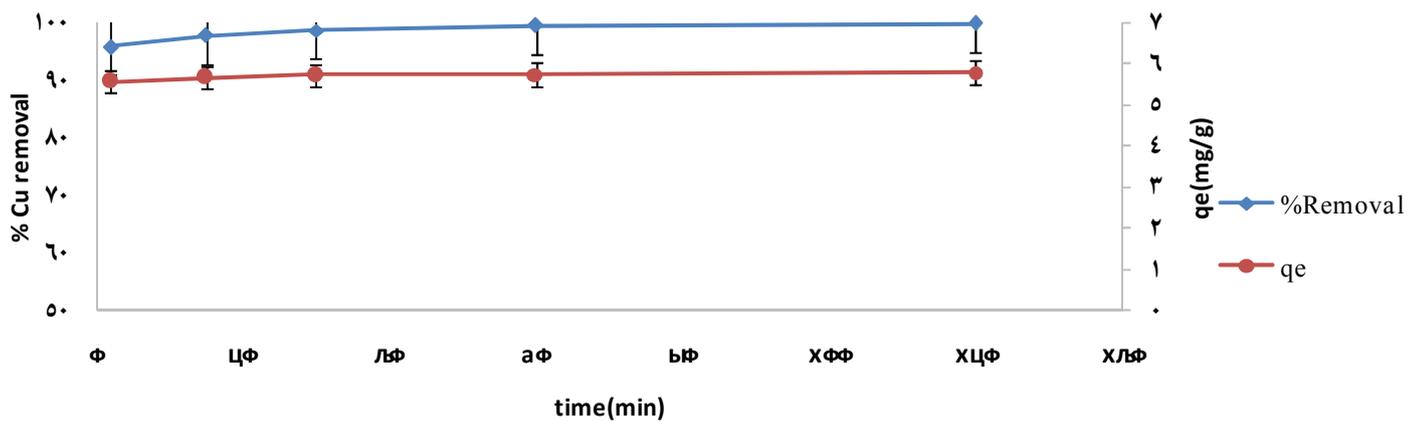
نمودار ۲- تأثیر تغییرات دوز جاذب بر کارایی حذف یون مس از محلول‌های آبی با استفاده از ACMNPs در pH معادل ۱۰ و مدت زمان ۲ دقیقه.

تعیین زمان بهینه برای حذف مس:

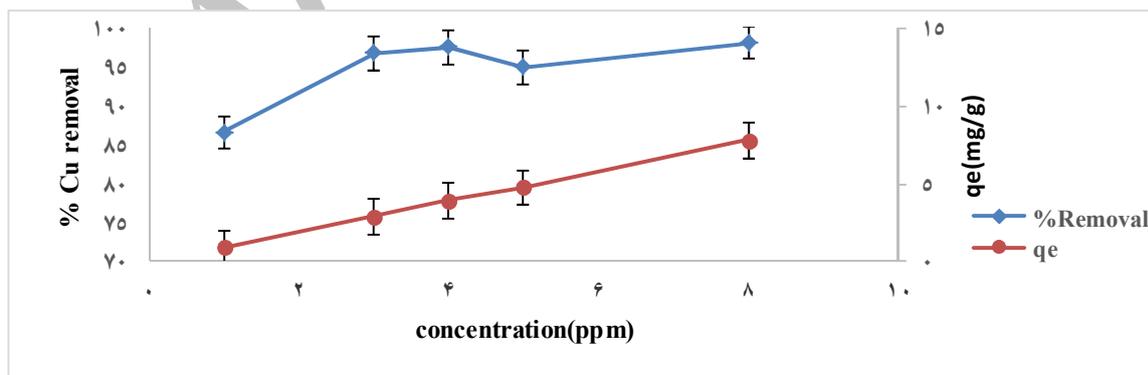
نمودار ۳، زمان بهینه برای حذف یون مس II توسط کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن، در سرعت اختلاط ۴۰۰ دور در دقیقه، دوز جاذب یک گرم در لیتر و $\text{pH}=10$ را نشان می‌دهد. از آنجایی که حتی با گذشت زمان تا ۲ ساعت، همچنان راندمان حذف بالاست و هیچ‌گونه فرآیند واجدبی یون‌های فلزی از روی جاذب در این زمان صورت نمی‌گیرد؛ بنابراین کمترین زمان ممکن برای حذف یون مس II، ۲ دقیقه در نظر گرفته شد که در این مدت‌زمان، راندمان حذف حدود ۹۵/۸٪ می‌باشد.

تأثیر غلظت اولیه مس:

نمودار ۴، تأثیر غلظت‌های اولیه مس، بر راندمان حذف را نشان می‌دهد. ظرفیت جذب یون‌های فلزی مس با افزایش غلظت افزایش می‌یابد؛ به طوری که بالاترین ظرفیت جذب در حدود 8 mg/g در غلظت 8 ppm حاصل گردید. با افزایش غلظت یون‌های مس، شاهد بالابودن راندمان حذف هستیم؛ این امر نشان‌دهنده بالابودن سایت‌های فعال جذب و کارایی بالای نانوذرات سنتز شده در حذف یون‌های فلزی مس می‌باشد.



نمودار ۳- تأثیر تغییرات زمان بر کارایی حذف یون مس از محلول‌های آبی با استفاده از ACMNPs در pH معادل ۱۰ و دوز جاذب معادل یک گرم در لیتر

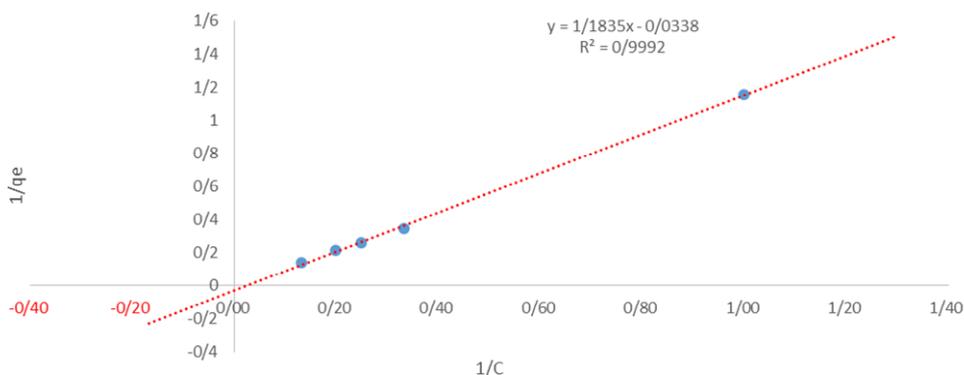


نمودار ۴- تأثیر تغییرات غلظت اولیه مس بر کارایی حذف یون مس از محلول‌های آبی با استفاده از ACMNPs در pH معادل ۱۰، دوز جاذب معادل یک گرم در لیتر و مدت‌زمان ۲ دقیقه

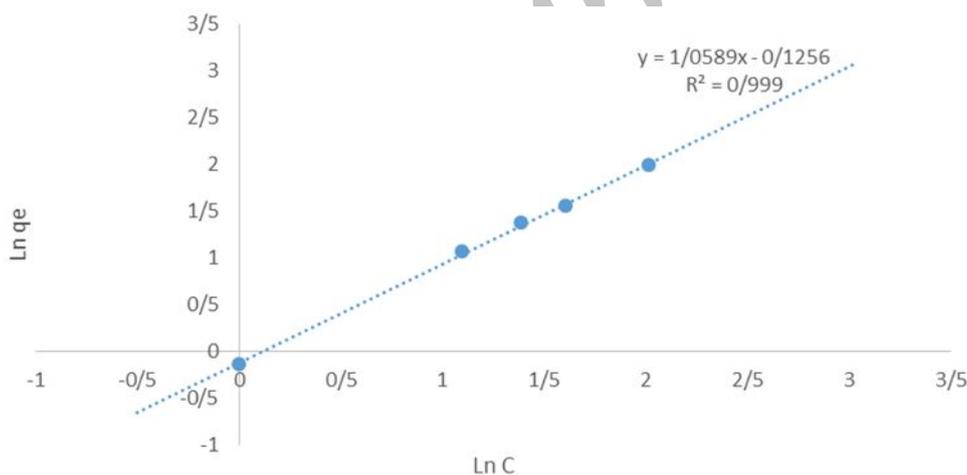
مطالعه ایزوترم‌های جذب

حاصل از مطالعه حاضر، تناسب بیشتری با معادله جذب لانگمویر دارد؛ به نحوی که ضریب رگرسیون (R^2) برای ایزوترم لانگمویر برابر $0/9992$ و برای ایزوترم فروندلیچ برابر $0/999$ می‌باشد.

نتایج حاصل از ترسیم ایزوترم‌های مدل جذب لانگمویر و فروندلیچ در نمودارهای ۵ و ۶ نمایش داده شده است. همچنین ضرایب مربوط به این ایزوترم‌ها در جدول یک ارائه گردیده است. بر این اساس مشاهده می‌شود که داده‌های



نمودار ۵- ایزوترم جذب لانگمویر برای جذب سطحی یون مس (II) بر روی کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن



نمودار ۶- ایزوترم جذب فروندلیچ برای جذب سطحی یون مس (II) بر روی کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن

جدول ۱- پارامترهای ایزوترم جذب برای جذب سطحی یون مس (II) بر روی کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن

ایزوترم لانگمویر			ایزوترم فروندلیچ		
q_m (mg/g)	K_L (L/mg) ^۲	R^2	K_f	N^1	R^2
$0/۸۴۴۹$	$-۳۵/۰۲$	$0/۹۹۹۲$	$-0/۱۲۵۶$	$0/۹۴۴۳$	$0/۹۹۹$

¹ ثابت فروندلیچ

² ثابت لانگمویر

بحث

تعیین زمان بهینه برای حذف مس:

به منظور تعیین زمان بهینه با بالاترین راندمان حذف مس از محیط آبی، مقدار مشخص جاذب (۱ گرم در لیتر) در زمان تماس‌های مختلف، در تماس با محلول قرار گرفت؛ سپس آزمایش‌های جذب برای تعیین زمان به‌طور مجدد تکرار گردید. با توجه به نمودار ۳، زمان بهینه حذف یون مس از محیط آبی به‌روش جذب سطحی روی جاذب، برابر ۲ دقیقه و درصد حذف یون مس در این مدت زمان ۹۵/۸ درصد بود. عادل و همکاران (۲۰۱۲)، در مطالعه خود با عنوان «حذف مس، نیکل و روی به‌وسیله سدیم دو دسیل سولفات پوشیده‌شده با نانوذرات مغناطیسی از نمونه‌های آب و فاضلاب» نشان دادند که استفاده از جاذب مغناطیسی‌شده با نانوذرات مغناطیسی، برای حذف مس و نیکل کارایی بالایی دارد و مدت‌زمان لازم برای جذب یون‌های فلزی بسیار کم و در حد یک دقیقه می‌باشد (۱۴).

تأثیر غلظت اولیه مس:

نمودار ۴، تأثیر غلظت‌های اولیه مس بر راندمان حذف را نشان می‌دهد. ظرفیت جذب یون‌های فلزی مس با افزایش غلظت افزایش می‌یابد؛ به‌طوری‌که بالاترین ظرفیت جذب در حدود ۸mg/g در غلظت حدود ۸mg/l حاصل گردید. با افزایش غلظت یون‌های مس، شاهد بالابودن راندمان حذف هستیم که نشان‌دهنده بالابودن سایت‌های فعال جذب و کارایی بالای نانوذرات سنتز شده در حذف یون‌های فلزی مس می‌باشد. غلظت اولیه، نیروی محرکه مهمی برای غلبه بر مقاومت یون مس II برای انتقال بین فاز آبی و جامد می‌باشد؛ از این رو غلظت اولیه بالاتر از یون مس II می‌تواند باعث افزایش ظرفیت جذب شود (۲۰). Ozmen و همکاران (۲۰۱۰) در مطالعه‌ای با عنوان «جذب مس (II) از محلول‌های آبی با استفاده از نانوذرات مغناطیسی Fe_3O_4 اصلاح‌شده» نیز به نتایج مشابهی دست یافتند (۱۵).

بررسی pH بهینه:

در نمودار ۱، اثر متغیر pH بر میزان حذف یون مس II از محیط آبی توسط کربن فعال مغناطیسی‌شده با نانوذرات اکسید آهن، نشان داده شده است. با بررسی نتایج حاصل از تأثیر pH بر میزان حذف مس و با توجه به شکل، مشخص می‌شود که با ثابت‌بودن غلظت یون مس و تغییر pH از ۲ تا ۱۰، میزان راندمان حذف با افزایش pH تا ۱۰ افزایش یافته و پس از آن کاهش می‌یابد. این نتایج (افزایش راندمان حذف با افزایش pH محیط تا محدوده ۸) همچنین با نتایج مطالعاتی که در رابطه با حذف یون مس توسط جاذب‌های مختلف انجام شده است، همخوانی دارد (۳، ۱۱، ۱۳).

pH یکی از عوامل تأثیرگذار در حذف یون‌های فلزی از محیط‌های آبی می‌باشد. pH مناسب برای جذب یون هر فلزی، به دو عامل خواص شیمیایی فلز در محلول و وضعیت یونیزاسیون گروه‌های عاملی که محل‌های اتصال را تحت تأثیر قرار می‌دهند، بستگی دارد (۱۸، ۱۹).

بررسی تأثیر دوز جاذب:

در نمودار ۲، اثر میزان دوز جاذب بر راندمان حذف یون مس II توسط کربن فعال مغناطیسی‌شده با نانوذرات اکسید آهن، نشان داده شده است. در این مطالعه، افزایش میزان دوز جاذب، تأثیر چندانی بر کارایی حذف نداشت و میزان دوز جاذب بهینه، در محدوده ۰/۱ تا یک گرم در لیتر بود. همچنین از آنجایی که کمترین مقدار جاذب با بالاترین کارایی حذف به‌عنوان دوز بهینه انتخاب می‌گردد، در مراحل بعدی مقدار یک گرم در لیتر جاذب مورد استفاده قرار گرفت. سعیدی و همکاران نیز در مطالعه خود با عنوان «جذب کادمیوم محلول از آب توسط زغال ساخته‌شده از پوست گردو و بادام و مقایسه آن با کربن فعال گرانولی» (۱۳۸۸) به نتایج مشابه دست یافتند (۲۰).

ایزوترم جذب:

محیط‌های آبی، اثرات نامطلوبی بر سلامت و محیط زیست دارد. مطالعه حاضر با هدف بررسی کارایی حذف مس (II) به وسیله کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات اکسید آهن از محلول‌های آبی، انجام شد. این نانوذرات توانستند بیش از ۹۵ درصد از یون‌های مس را در $\text{pH}=10$ و مدت زمان ۲ دقیقه، با دوز جاذب یک گرم در لیتر حذف نمایند و فرآیند جذب نیز از مدل لانگمویر تبعیت نمود. این نتایج نشان‌دهنده کارایی بالای این نانوذرات در حذف این آلاینده از محیط‌های آبی می‌باشد.

با توجه به نتایج حاصل از این مطالعه و ضریب R^2 به دست آمده در محاسبه ایزوترم، مشخص شد فرآیند جذب از مدل لانگمویر تبعیت می‌نماید. احرام‌پوش و همکاران (۲۰۱۲) در مطالعه خود با عنوان «حذف نیکل از آب خنک‌کننده مصنوعی نیروگاه اتمی با استفاده از نانوذرات اکسید آهن» به نتایج مشابهی دست یافتند (۱۶).

نتیجه‌گیری

حضور مس به عنوان یک آلاینده زیست‌محیطی در

منابع:

- 1- Hao YM, Man C, Hu ZB. Effective removal of Cu (II) ions from aqueous solution by amino-functionalized magnetic nanoparticles. *J Hazard Mater.* 2010; 184(1-4): 392-9.
- 2- Dai J, Yan H, Yang H, Cheng R. Simple method for preparation of chitosan/poly (acrylic acid) blending hydrogel beads and adsorption of copper (II) from aqueous solutions, *Chemical Engineering Journal.* 2010; 165(1): 240-9.
- 3- Chen JJ, Ahmad AL, Ooi BS. Poly(N-isopropylacrylamide-co-acrylic acid) hydrogels for copper ion adsorption: Equilibrium isotherms, kinetic and thermodynamic studies. *J Environ Chem Eng.* 2013; 1(3): 339-48.
- 4- Hasfalina CM, Maryam RZ, Luqman CA, Rashid M. Adsorption of Copper (II) From Aqueous Medium In Fixed-Bed Column By Kenaf Fibres. *APCBEE Procedia.* 2012; 3: 255-63.
- 5- Shahryari T, Moashery BN, Sharifzadeh GHR. Concentrations of chromium and copper in the ground water and drinking water distribution network of Birjand, 2009-2010. *J Birjand Univ Med Sci.* 2011; 18(1): 62-7. [Persian]
- 6- Peng Q, Liu Y, Zeng G, Xu W, Yang C, Zhang J. Biosorption of copper(II) by immobilizing *Saccharomyces cerevisiae* on the surface of chitosan-coated magnetic nanoparticles from aqueous solution. *J Hazard Mater.* 2010; 177(1-3): 676-82.
- 7- Ghaee A, Shariaty- Niassar M, Barzin J, Matsuura T. Effects of chitosan membrane morphology on copper ion adsorption. *Chem Eng J.* 2010; 165(1):46-55.
- 8- Wan MW, Kan CC, Rogel BD, Dalida ML. Adsorption of copper (II) and lead (II) ions from aqueous solution on chitosan-coated sand. *Carbohydrate Polymers.* 2010; 80(3): 891-9.
- 9- Al-Qodah Z. Biosorption of heavy metal ions from aqueous solutions by activated sludge. *Desalination.* 2006; 196(1-3): 164-76.
- 10- Lim SF, Zheng YM, Zou SW, Chen JP. Removal of copper by calcium alginate encapsulated magnetic sorbent. *Chem Eng J.* 2009; 152(2-3): 509-13 .
- 11- Oliveira LC, Rios RV, Fabris JD, Sapag K, Garg VK, Lago RM. Clay -iron oxide magnetic composites for the adsorption of contaminants in water. *Applied clay Science.* 2003; 22(4): 169-77.
- 12- Oliveira LCA, Petkowicz DI, Smaniotto A, Pergher SB. Magnetic zeolites: a new adsorbent for removal of metallic contaminants from water. *Water Res.* 2004; 38(17):3699-704.
- 13- Hu J, Lo IMC, Chen G. Comparative study of various magnetic nanoparticles for Cr(VI) removal. *Sep Purif Technol.* 2007; 56(3): 249-56.

- 14- Adeli M, Yamini Y, Faraji M. Removal of copper, nickel and zinc by sodium dodecyl sulphate coated magnetite nanoparticles from water and wastewater samples. *Arabian Journal of Chemistry*; 2012. Available at: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1878535212002419/> Accessed 2013
- 15- Ozmen M, Can K, Arslan G, Tor A, Cengeloglu Y, Ersoz M. Adsorption of Cu(II) from aqueous solution by using modified $F_{e_3O_4}$ magnetic nanoparticles. *Desalination*. 2010; 254(1-3): 162-9.
- 16- Ehrampoush M, salmani M, Aboueian M, Zare M, GHaneian M, Askarshahi M, et al . Nickel removal from synthetic nuclear- power- plant coolant water by Iron Oxide nanoparticles. *Tolooe-e-behdasht*. 2012; 11(1): 1-8. [Persian]
- 17- Heidari A, Younesi H, Mehraban Z. Removal of Ni(II), Cd(II), and Pb(II) from a ternary aqueous solution by amino functionalized mesoporous and nano mesoporous silica. *Chem Eng J*. 2009; 153(1-3): 70-9.
- 18- Ngomsik AF¹, Bee A, Siaugue JM, Talbot D, Cabuil V, Cote G. Co(II) removal by magnetic alginate beads containing Cyanex 272. *J Hazard Mater*. 2009; 166(2-3): 1043-9.
- 19- Özer A, Özer D, Özer A. The adsorption of copper(II) ions on to dehydrated wheat bran (DWB): determination of the equilibrium and thermodynamic parameters. *Process Biochem*. 2004; 39(12): 2183-91.
- 20- Saeedi M, Jamshidi A, Abessi A, Bayat J. Removal of Dissolved Cadmium by Adsorption onto Walnut and Almond Shell Charcoal: Comparison with Granular Activated Carbon (GAC). *Ab va Fazilab*. 2009; 20(2): 16-22. [Persian]

Archive of SID

The efficiency of magnetic carbon activated by iron oxide nanoparticles in removing of Cu (II) from aqueous solutions

Salehe Salehnia¹, Behnam Barikbin², Hadighe Dorri³

Background and Aim: Copper ions, due to forming complexes with organic and mineral compounds, can have worrying effects on health and environment. In the present study, the effect of powdered magnetic carbon activated by iron-oxide nanoparticles in removing of CU (V; II) from aqueous solutions was assessed.

Materials and Methods: This experimental study aimed at determining the effect of powdered magnetic carbon activated by iron-oxide nanoparticles parameters including PH, contact time, absorbing dose, and initial concentration on copper(II) removal .from aqueous solutions; through an indirect current. In order to assess the qualities of the synthesized adsorbent, TGA, FT-IR and SEM tests were applied. Residual concentration of copper was measured at 324nm wavelength by means of atomic absorption spectrometry flame. The obtained data was analyzed using Langmuir and Freundlich isotherm model.

Result: It was found that synthetic nanoparticles(PH=10), with the adsorbent dosage of 1gr/l, can remove more than 96% of copper ions from aqueous solutions at 2 minutes. Also, the results showed that copper absorption pattern is more in accord with Langmuir model.

Conclusion: Based on the current findings , magnetic synthesized nanoparticles coated with carbon. are in sporadic form in aqueous solutions. and can easily be separated using external magnetic environment. Moreover, because of existant active carbon sites absorption in iron oxide structure suferficial absorbtion capacity increases and and these nanoparticles reveal to have a high performance in the removing process of copper pollutants from aqueous solutions.

Key Words: Activated carbon, Magnetic nanoparticles, Copper, Iron oxide.

Journal of Birjand University of Medical Sciences. 2016; 23 (1):

Received: August 3, 2015

Accepted: January 6, 2016

¹Master of Environmental health engineering graduate student, Member of Student Research Committee, School of Public Health, Birjand University of Medical Sciences, Birjand, Iran

²**Corresponding Author;** Associate Professor, Social Determination of Health Research Center, Department of Public Health, School of Health, Birjand University of Medical Sciences, Birjand, Iran. b_barikbin@yahoo.com

³ Master of Chemistry, Environmental chemistry laboratory, School of Public Health, Birjand University of Medical Sciences, Birjand, Iran.