

## کارایی حذف رنگ نساجی ریمازول بلک بی (RBB) به وسیله جاذب کیتوزان از محلول های آبی

محمد کامرانی فر<sup>۱</sup>، ابودر رضایی<sup>۲</sup>، انسیه طاهری<sup>۳</sup>، نظام الدین منگلی زاده<sup>۴</sup>، حمیدرضا پورزمانی<sup>۵</sup>

دریافت مقاله: ۹۵/۳/۸ ارسال مقاله به نویسنده جهت اصلاح: ۹۵/۲/۴ دریافت اصلاحیه از نویسنده: ۹۵/۱۰/۱ پذیرش مقاله: ۹۵/۱۰/۵

### چکیده

زمینه و هدف: در سال های اخیر، تصفیه فاضلاب صنایع نساجی به دلیل داشتن پتانسیل سمیت، فعالیت سرطان زایی و جهش زایی از اهمیت ویژه ای برخوردار شده است. هدف از این مطالعه، ارزیابی حذف رنگ نساجی ریمازول بلک بی (RBB) از محلول های آبی با استفاده از کیتوزان است.

مواد و روش ها: این مطالعه آزمایشگاهی بر روی فاضلاب سنتتیک جهت بررسی تأثیر متغیرهایی شامل pH (۱۰-۴)، زمان تماس (۱۸۶-۲ دقیقه)، دوز جاذب (۱-۲۵/۰ گرم بر لیتر) و غلظت رنگ (۶۰-۳۰ میلی گرم بر لیتر) بر حذف رنگ RBB انجام گرفت. در نهایت، جهت تجزیه و تحلیل داده ها و همچنین ایزوترم های جذب به ترتیب از نرم افزارهای Excel 2007 و ISOFIT (ISOtherm Fitting Tool) استفاده شد.

یافته ها: نتایج نشان داد که با افزایش pH کارایی حذف رنگ کاهش می یابد و بیشترین مقدار حذف رنگ (۸۳ درصد) در pH=۴ به دست آمده است. در غلظت اولیه ۳۰ میلی گرم بر لیتر، با افزایش زمان تماس از ۲ تا ۶۶ دقیقه بازدهی حذف رنگ از ۴۳ درصد به ۸۵ درصد افزایش می یابد و پس از آن تقریباً به یک مقدار تقریبی ثابت می رسد. مشخص شد که با افزایش دوز جاذب کارایی حذف افزایش و با افزایش غلظت رنگ، راندمان حذف کاهش می یابد. نتایج داده های ایزوترم جذب نشان داد که داده ها، با مدل GLF (Generalized Langmuir-Freundlich) تطابق بهتری دارد.

نتیجه گیری: بر اساس نتایج حاصله، کیتوزان می تواند به عنوان یک جاذب مؤثر در حذف رنگ RBB از فاضلاب های صنعت نساجی و یا منابع آبی آلوده به این رنگ مورد استفاده قرار گیرد.

واژه های کلیدی: کیتوزان، حذف رنگ، ریمازول بلک بی (RBB)، محلول های آبی

- ۱- دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، کمیته تحقیقات دانشجویی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی بیرجند، بیرجند، ایران
  - ۲- دانشجوی کارشناسی مهندسی بهداشت محیط، کمیته تحقیقات دانشجویی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران
  - ۳- دانشجوی دکتری مهندسی بهداشت محیط، کمیته تحقیقات دانشجویی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران
  - ۴- دانشیار، مرکز تحقیقات محیط زیست، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران
  - ۵- نویسنده مسئول) دانشیار، مرکز تحقیقات محیط زیست، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران
- تلفن: ۰۳۱-۳۷۹۲۳۲۸۱، دورنگار: ۰۳۱-۳۶۶۹۵۸۴۹، پست الکترونیکی: Pourzamani@hlth.mui.ac.ir

## مقدمه

امروزه صنایع بسیاری همچون نساجی، کاغذسازی، چاپ، چرم، دباغی، جوهر، مواد آرایشی-بهداشتی و غیره حجم وسیعی از پساب‌های رنگی را وارد محیط زیست می‌کنند [۱]. گزارش شده است که بیش از ۷۰۰ هزار تن و ۱۰ هزار نوع رنگ تجاری در سراسر جهان تولید می‌شود که به علت عدم تثبیت مناسب مولکول‌های رنگی بر روی الیاف و عدم کارایی واحدهای رنگرزی، حدود ۲۰ درصد این رنگ‌ها وارد پساب صنایع می‌شوند [۲]. رنگ ریمازول بلک بی (RBB) یکی از انواع رنگ‌های راکتیو می‌باشد. این رنگ‌ها به علت ثبات رنگ عالی، تکنیک‌های کاربردی آسان و مصرف انرژی پایین کاربرد زیادی دارند، به طوری که تقریباً ۴۵٪ از تمام رنگ نساجی تولیدشده در سال متعلق به گروه راکتیو است. رنگ‌های راکتیو به علت حلالیت بالا در آب، نسبت به دیگر انواع رنگ‌ها با غلظت بالاتری در فاضلاب‌های نساجی یافت می‌شوند و به آسانی توسط سیستم‌های متعارف تصفیه حذف نمی‌شوند [۳]. علاوه بر این، رنگ‌ها سبب ممانعت از عبور کامل نور به داخل آب شده و در نتیجه موجب کاهش عمل فتوسنتز و به دنبال آن کاهش اکسیژن محلول و بروز پدیده اوتریفیکاسیون در آب‌های پذیرنده می‌شود [۴]. همچنین مطالعات مختلف نشان داده است که بیشتر رنگ‌ها سمی، آلرژی‌زا، سرطان‌زا و جهش‌زا هستند [۵]. این ترکیبات همچنین از نقطه نظر زیبایی‌شناختی، بر کیفیت آب برای مصارف شرب و سایر مصارف، اثر منفی برجای می‌گذارند [۶]. به همین دلیل، این فاضلاب‌ها به عنوان یکی از مهم‌ترین عوامل تهدیدکننده سلامت عمومی و محیط

زیست در سراسر جهان مورد توجه قرار گرفته‌اند و بایستی قبل از تخلیه به محیط زیست، به نحو مطلوبی تصفیه شوند [۷].

برای رنگ‌دایی صنایع نساجی روش‌های مختلفی وجود دارد که می‌توان به انعقاد و لخته‌سازی، اکسیداسیون شیمیایی، تصفیه بیولوژیکی، تکنیک الکتروشیمیایی، تعویض یونی، جذب سطحی و فرایندهای ترکیبی شامل ازن‌زنی و انعقاد یا انعقاد و تعویض یونی اشاره کرد [۸]. جذب از مهم‌ترین تکنیک‌های قابل قبول جهت کاهش غلظت رنگ‌های حل‌شده از محلول‌های آبی است [۹]. مزایای این فرایند در مقایسه با دیگر فرایندهای جداسازی، سادگی در بهره‌برداری و ارزان بودن آنها است [۱۰]. رایج‌ترین ماده جاذب، کربن فعال است که کارایی زیادی دارد ولی گران بودن و هزینه‌بر بودن احیای آن، باعث شده است که تمایل زیادی برای استفاده از آن نباشد [۱۱]. علاوه بر این، جاذب‌های مختلف دیگری همچون پوسته تخم مرغ [۱۲]، جاذب معدنی پامیس [۱۳]، بنتونیت [۱۴] و پودر استخوان ماهی [۱۵] برای حذف پساب رنگی مورد استفاده قرار گرفته‌اند. به‌رحال، استفاده از جاذب‌های با قیمت ارزان و با پتانسیل جذب بالا توسط محققین در حال توسعه می‌باشند که با مقدار مصرف کم، قدرت جذب بالایی داشته باشند و به محیط زیست صدمه نزنند. اخیراً بیشتر بررسی‌های محققان بر روی جاذب‌هایی متمرکز شده است که پایه طبیعی داشته و در مقادیر بالایی در طبیعت موجود باشند و برای محیط زیست مضر نباشند. همچنین، مشکلات اقتصادی و بازیابی جاذب‌ها باعث شده است تا محققان بر روی جاذب‌های با قیمت ارزان‌تر متمرکز شوند [۱۶].

رایج‌ترین روش‌های مدرن برای حذف آلاینده‌هایی مثل یون‌های فلزی، پروتئین و مخصوصاً رنگ صنعت نساجی است [۲۳]. این پلیمر طبیعی دارای چند ویژگی ذاتی است که آن را به جاذبی مؤثر برای حذف رنگ تبدیل کرده است. دو دلیل مهمی که باعث گسترش استفاده از کیتوزان به‌عنوان یک بیوجاذب شده است، شامل: اول، قیمت کمتر آن در مقایسه با جاذب‌های تجاری و فراوان‌تر بودن آن در طبیعت (مشتقی از کیتین بوده و کیتین دومین پلی ساکارید طبیعی بعد از سلولز است)، و دوم، رفتار کی‌لیت‌کنندگی (Chelating) عالی آن است که به‌واسطه این رفتار می‌تواند بسیاری از آلاینده‌ها مخصوصاً یون‌های فلزی را حذف کند [۲۲]. از دیگر ویژگی‌های مفید کیتوزان شامل فراوانی، غیرسمی بودن، زیست‌سازگاری، زیست‌تخریب‌پذیری و خاصیت ضدباکتریایی آن اشاره کرد [۲۴]. لذا در این تحقیق قابلیت استفاده از کیتوزان برای حذف رنگ RBB از محیط آبی با بررسی عوامل مؤثر در رنگ‌بری از قبیل pH، زمان تماس، غلظت رنگ و دوز جاذب مورد مطالعه قرار گرفته است. همچنین در نهایت ایزوترم جذب با مدل‌های موجود در نرم‌افزار ISOFIT تطبیق داده شد.

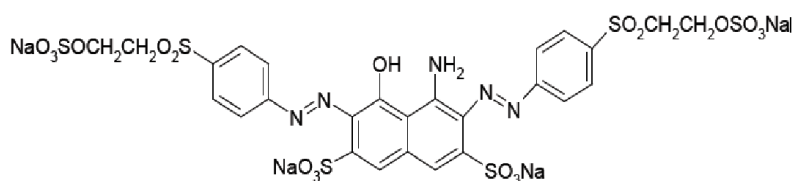
### مواد و روش‌ها

این مطالعه آزمایشگاهی و به‌صورت ناپیوسته در آزمایشگاه مهندسی بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی اصفهان در سال ۱۳۹۴ انجام گردیده است. رنگ مورد استفاده در این تحقیق (RBB) توسط شرکت الوان ثابت ایران تولید می‌شود. فرمول شیمیایی این رنگ به‌صورت  $(C_{26}H_{21}N_5Na_4O_{19}S_6)$  است که در ۲۵

تاکنون مطالعات زیادی در جهان در مورد حذف آلاینده‌های مختلف به‌وسیله کیتوزان انجام شده است. در مطالعه‌ای که با استفاده از کامپوزیت کیتوزان/رس انجام شد، مشخص گردید که این جاذب قادر به حذف مؤثر رنگ Metylen Blue می‌باشد. همچنین نتایج ایزوترم جذب نشان داد که ظرفیت جذب این جاذب ۸۲ میلی‌گرم بر گرم بوده و سینتیک جذب نشان داد که ۵۰ درصد جذب رنگ در ۱۳ دقیقه اول رخ داده است [۱۷]. در تحقیقات دیگری از کیتوزان برای حذف رنگ بازیک ۱۶ انجام شد و مشخص گردید که حذف رنگ به مقدار مناسبی صورت گرفته و جذب رنگ‌زا از ایزوترم فروندلیچ ( $R^2 > 0.99$ ) تبعیت کرده است [۱۸]. در پژوهشی دیگر با استفاده از جاذب کیتوزان در حذف رنگ Acid Blue 92 در شرایط اسیدی، ۹۹ درصد این رنگ حذف گردید [۱۹]. طی تحقیق دیگری برای حذف سرب از کلسیم آلژینات و کلسیم آلژینات اصلاح‌شده با کیتوزان استفاده شد که ظرفیت این جاذب‌ها به ترتیب ۱۰۰/۴ و ۱۰۶/۹ میلی‌گرم بر گرم به دست آمد [۲۰]. نتایج یک مطالعه دیگر با استفاده از بنتونیت اصلاح‌شده با کیتوزان برای حذف رنگ Amido Black 10B و کروم (VI) نشان داد که حداکثر ظرفیت جذب این جاذب با توجه به مدل ایزوترم لانگمویر ۸۴۷/۵ میلی‌گرم بر گرم برای AB10B و ۶۶/۶ میلی‌گرم بر گرم برای کروم (VI) است [۲۱]. خوانندگان علاقه‌مند به بحث مفصل در مورد کیتوزان می‌توانند به بررسی جامع و عالی Crini و همکاران در این زمینه مراجعه نمایند [۲۲].

با توجه به بررسی‌های که توسط محققان انجام گرفته است، می‌توان پی برد که استفاده از کیتوزان یکی از

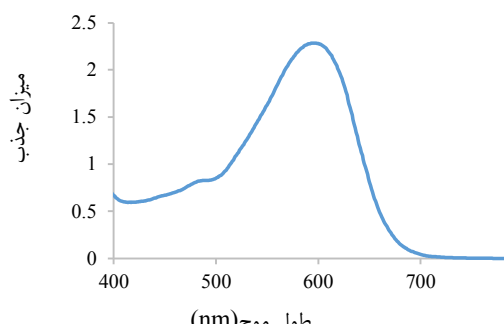
است. همچنین مهم‌ترین خصوصیات جاذب کیتوزان استفاده‌شده در این مطالعه در جدول ۱ نشان داده شده است. جهت تعیین مشخصات ساختاری کیتوزان از تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM یا electron Philips Xi 30, Philips, Made ) (Scanning microscope (in Netherlands استفاده شد. شکل ۱- ساختار شیمیایی رنگ Remazol Black B (RBB) [۲۵]



شکل ۱- ساختار شیمیایی رنگ Remazol Black B (RBB)

به منظور انجام تحقیق حاضر، محلول ۱۰۰۰ میلی‌گرم بر لیتر رنگ به وسیله حل کردن مقدار مناسبی از رنگ RBB در آب دی‌یونیزه تهیه شد. سپس سایر غلظت‌های موردنیاز در آزمایش با رقیق‌سازی مقادیر موردنظر از محلول استوک در آب مقطر حاصل گردید. بعد از تهیه نمونه استوک، آزمایش‌های جذب در سیستم ناپیوسته انجام گرفت و فاکتورهای مؤثر بر انجام فرایند مورد مطالعه شامل pH، زمان تماس، دوز جاذب و غلظت رنگ در مراحل جداگانه به صورت ذیل بررسی شدند. در ابتدا جهت تعیین pH بهینه حذف رنگ، محلول رنگ با غلظت ۴۰ میلی‌گرم بر لیتر و جاذب کیتوزان با دوز ۱ گرم بر لیتر مورد استفاده قرار گرفت. pH محلول پیش از اضافه کردن جاذب با استفاده از HCl و KOH ۰/۱ مولار در مقادیر ۱۰-۴ با استفاده از pHسنج (SCHOTT Model CG824, Germany) تنظیم گردید [۲۶]. سپس محلول‌ها بر روی

درجه سانتی‌گراد ۱۰۰ درصد در آب حل می‌شود و گروه‌های سولفونات این رنگ در آب یونیزان شده که موجب ایجاد بار آنیونی در ساختار رنگ می‌شود. شکل ۱ ساختار شیمیایی این رنگ را نشان می‌دهد. علاوه بر این برای تعیین طول موج حداکثر جذب رنگ RBB از دستگاه اسپکتروفوتومتر (UV/Vis, LANGE, Hatch Co, Made ) (in Germany استفاده شد. همان‌طور که در شکل ۲ نشان داده شده حداکثر طول موج جذب این رنگ ۵۹۸ نانومتر



شکل ۲- طیف جذب رنگ Remazol Black B (RBB)

جدول ۱- ویژگی‌های فیزیکوشیمیایی کیتوزان

ویژگی	کیتوزان تجاری
pH <sub>ZC</sub>	۶/۵
درصد رطوبت	۱/۰۹
درصد خاکستر	۰/۵۹
درصد ظرفیت باند آب (WBC)	۴۹۲
درصد ظرفیت باند چربی (FBC)	۳۸۳
درجه دی‌استیلاسیون (DD)	%۸۵-۷۵
وزن مولکولی (Mw)	۵/۳×۱۰ <sup>۳</sup>

در این معادله  $q_e$  ظرفیت جذب رنگ (میلی گرم بر گرم)،  $C_0$  غلظت اولیه رنگ (میلی گرم بر لیتر) و  $C_e$  غلظت باقی مانده رنگ (میلی گرم بر لیتر)،  $m$  دوز جاذب (گرم) و  $V$  حجم نمونه (لیتر) است [۲۶].

در نهایت برای بررسی ایزوترم جذب رنگ بر روی جاذب کیتوزان، از نرم افزار ISOFIT (ISOtherm Fitting) (Tool, Version 2, Inc, USA) استفاده شد. برنامه‌ای است که پارامترهای ایزوترم را برای یک سری داده‌های آزمایشگاهی از طریق حداقل سازی وزن مجموع مربعات خطا بین داده‌های اندازه‌گیری شده آزمایشگاهی و مقادیر محاسبه شده ایزوترم تطبیق می‌دهد. برای بررسی ایزوترم جذب غلظت‌های ۳۰-۶۰ میلی گرم بر لیتر از رنگ (با فواصل غلظتی ۱۰ میلی گرم بر لیتر) ساخته شد و ایزوترم جذب مورد بررسی قرار گرفت. نرم افزار Isofit ده ایزوترم Freundlich, Brunauer-Emmett-Teller (BET), Freundlich with Linear Partitioning (F-P), Generalized Langmuir-Freundlich (GLF), Langmuir with Linear Partitioning (L- Langmuir, Polanyi with Linear Partitioning (P-P) و Toth محاسبه می‌شود [۲۹-۳۰]. لازم به ذکر است تمام داده‌های آزمایش با استفاده از نرم افزار Microsoft Office Excel 2007 مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفتند و به صورت میانگین و انحراف معیار گزارش شدند.

### نتایج

جهت تعیین مشخصات ساختاری کیتوزان تهیه شده از تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM یا electron

شیکر (Orbital Shaker Model KS260B, Germany) با سرعت اختلاط ۲۵۰ دور در دقیقه قرار گرفته و به مدت ۶۰ دقیقه مخلوط شدند. پس از زمان مذکور نمونه‌ها از کاغذ صافی (Watman number 1-0.45 $\mu$ ) عبور داده شد و غلظت رنگ RBB با دستگاه اسپکتروفوتومتر (UV/Vis, LANGE, Hatch Co, Made in Germany) اندازه‌گیری گردید. پس از تعیین pH بهینه رنگ، به منظور تعیین زمان تماس بهینه جذب رنگ، میزان جذب برای هر یک از غلظت‌های محلول رنگ ۳۰، ۴۰، ۵۰ میلی گرم بر لیتر و با دوز جاذب ۱ گرم بر لیتر در زمان تماس‌های ۱۸۶-۲ دقیقه تعیین شد. پس از طی زمان مذکور، نمونه‌ها از کاغذ صافی رد شده و غلظت رنگ RBB اندازه‌گیری شد. در مرحله بعد، پس از تعیین pH و زمان تماس بهینه جذب و با ثابت نگه داشتن مقادیر آن‌ها، محلول‌های رنگ با غلظت ۳۰-۵۰ میلی گرم بر لیتر تهیه شد و میزان جذب در چهار دوز جاذب ۰/۲۵، ۰/۵، ۰/۷۵، ۱ گرم در لیتر تعیین شد و غلظت رنگ خروجی پس از عبور از صافی مشخص گردید [۲۷-۲۸]. به منظور اطمینان از دقت و صحت نتایج، آزمایش‌ها با دو بار تکرار انجام گردید.

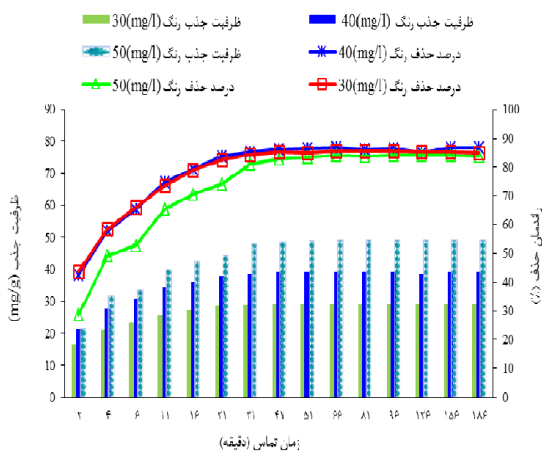
برای تعیین راندمان حذف رنگ از رابطه (۱) و مقدار ظرفیت جذب از رابطه (۲) استفاده شد.

$$(1) R = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100$$

در این معادله R راندمان حذف رنگ (برحسب درصد)،  $C_0$  غلظت اولیه رنگ (میلی گرم بر لیتر) و  $C_e$  غلظت باقی مانده رنگ (میلی گرم بر لیتر) است [۲۶].

$$(2) q_e = \frac{C_0 - C_e}{m} V$$

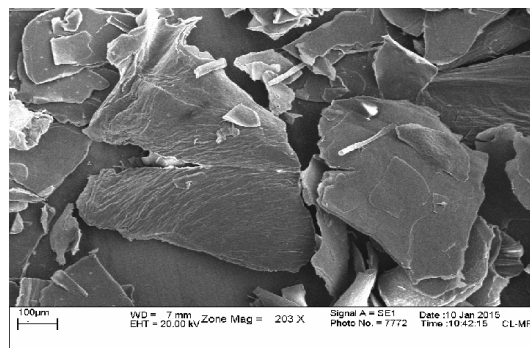
پس از تعیین pH بهینه، تأثیر زمان تماس بر روی کارایی حذف رنگ مورد مطالعه قرار گرفت. در این مرحله راندمان حذف رنگ با تغییر در زمان تماس از ۲ دقیقه به ۱۸۶ دقیقه، در pH=۴ با دوز جاذب ۱ گرم بر لیتر و غلظت‌های رنگ ۵۰، ۴۰، ۳۰ میلی‌گرم بر لیتر بررسی گردید. بر اساس نتایج ارائه‌شده در نمودار ۲، زمان تماس ۶۶ دقیقه به‌عنوان زمان تماس بهینه انتخاب گردید.



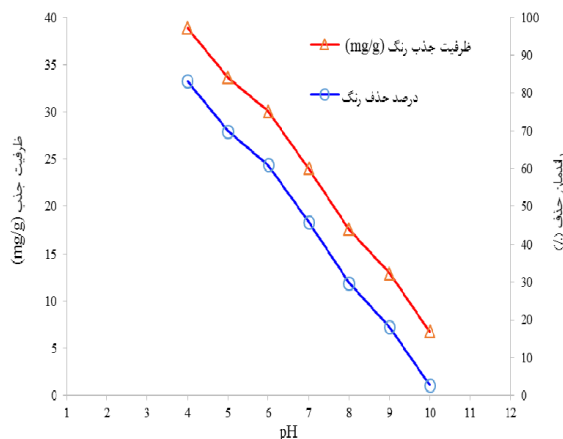
نمودار ۲- تأثیر زمان تماس بر کارایی حذف رنگ RBB توسط کیتوزان از محلول‌های آبی (pH برابر ۴، دوز جاذب: ۱ گرم بر لیتر)

تأثیر غلظت‌های رنگ (۳۰، ۴۰، ۵۰، ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر) و مقدار دوز جاذب (۱، ۰/۷۵، ۰/۵، ۰/۲۵ گرم بر لیتر) بر روی حذف رنگ در pH=۴ و زمان تماس تعادل (۶۶ دقیقه) مورد بررسی قرار گرفت و نتایج آن در نمودار ۳ نشان داده شده است. طبق این نمودار، با افزایش غلظت رنگ، راندمان حذف رنگ کاهش پیدا کرده است، به طوری که بالاترین راندمان حذف در غلظت ۳۰ و کمترین راندمان حذف در غلظت ۶۰ میلی‌گرم در لیتر به دست آمد. همچنین با افزایش دوز جاذب، راندمان حذف رنگ و ظرفیت جذب به ترتیب افزایش و کاهش یافته

(Scanning microscope) ساخت شرکت Philips استفاده گردید که تصاویر مربوط به آن در شکل ۳ نشان داده است. همان‌گونه که قبلاً اشاره شد جهت تعیین pH بهینه، pH های اولیه ۱۰-۴ در غلظت رنگ ۴۰ میلی‌گرم بر لیتر و دوز جاذب ۱ گرم در لیتر با زمان تماس ۶۰ دقیقه بررسی گردید که نتایج حاصل در نمودار ۱ نمایش داده شده است. طبق این نمودار، بیشترین میزان بازدهی حذف رنگ (۸۳ درصد) توسط جاذب در pH=۴ حاصل گردید و در pH های بالاتر از آن، به‌مرور میزان بازدهی حذف کاهش یافت.



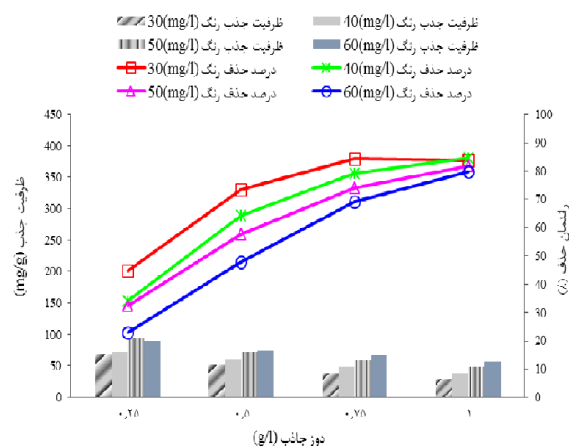
شکل ۳- تصاویر SEM (Scanning electron microscope) مربوط به کیتوزان



نمودار ۱- تأثیر pH بر کارایی حذف رنگ RBB توسط کیتوزان از محلول‌های آبی (زمان تماس: ۶۰ دقیقه، دوز جاذب: ۱ گرم بر لیتر، غلظت رنگ: ۴۰ میلی‌گرم بر لیتر)

بر اساس نتایج محاسبه پارامترهای هرکدام از ایزوترمها و محاسبات آماری که توسط برنامه Isofit انجام شد، ایزوترمها براساس مناسبترین آنها رتبه‌بندی گردید. جدول ۲ رده‌بندی ایزوترمها بر اساس مناسبترین آنها برای جذب رنگ توسط کیتوزان در شرایط بهینه با غلظت‌های اولیه ۶۰-۳۰ میلی‌گرم بر لیتر ارائه داده است. طبق این جدول مناسبترین ایزوترم، ایزوترم GLF (Generalized Langmuir-Freundlich) با کمترین مقدار AICc برای تحلیل داده‌های جذب رنگ به‌وسیله کیتوزان می‌باشد.

است. بیشترین ظرفیت جذب مربوط به دوز جاذب ۰/۲۵ و کمترین آن مربوط به دوز جاذب ۱ گرم بر لیتر بوده است.



نمودار ۳- تأثیر دوز جاذب و غلظت رنگ بر میزان حذف رنگ

RBB توسط کیتوزان از محلول‌های آبی (pH برابر ۴، زمان تماس:

۶۶ دقیقه)

جدول ۲- خلاصه‌ای از پارامترهای تشخیصی انتخاب‌شده برای جذب رنگ توسط کیتوزان

ایزوترم	رتبه‌بندی مدل چندگانه (AICc)	همبستگی بین باقی‌مانده و نرمال بودن ( $R_{adj}^2$ )	اندازه‌گیری شرایط غیر خطی linssen (M2)	ارزیابی خطی بودن
BET	۳۵/۲	۰/۹۵۱	$7/3 \times 10^{-1}$	غیر خطی
Linear	۲۳/۴۴	۰/۹۴۶	$7/9 \times 10^{-9}$	خطی
Langmuir	۲۸/۶	۰/۹۶۰	$4/3 \times 10^{-9}$	غیر خطی
F-P	۱۹/۷	۰/۹۱۲	۸/۳۲	غیر خطی
L-P	۲۸/۶	۰/۹۵۹	$4/3 \times 10^{-1}$	غیر خطی
Freundlich	۲۸/۷	۰/۹۱۰	$4/2 \times 10^1$	غیر خطی
GLF	۱۸/۶	۰/۹۷۴	۲/۷۵	غیر خطی
Toth	۲۰/۶	۰/۹۴۱	$4/6 \times 10^{-3}$	غیر خطی
Polanyi	۲۵/۱	۰/۸۹۴	$5/5 \times 10^4$	غیر خطی

میزان جذب رنگ کاهش می‌یابد (نمودار ۱). رنگ RBB دارای گروه عاملی سولفونات است که در آب یونیزه شده و موجب ایجاد بار آنیونی در ساختار رنگ می‌شود. در pH بالاتر، جذب کمتر رنگ ممکن است به دلیل فراوانی یون‌های  $OH^-$  و ایجاد نیروی دافعه بین سطح دارای بار

## بحث

pH یکی از پارامترهای مهم کیفی فاضلاب است که از طریق اثر بر درجه یونیزاسیون ویژگی‌های سطح جاذب، می‌تواند بر ظرفیت جذب تأثیر بگذارد [۳۱]. طبق نتایج به‌دست‌آمده از این تحقیق مشخص شد که با افزایش pH

منفی و مولکول‌های آنیونی رنگ باشد. در این زمینه نتایج مشابهی توسط Nateghi و همکاران به دست آمده است. در این مطالعه از نانوذرات اکسید نیکل برای حذف رنگ از پساب‌های سنتتیک استفاده گردید و مشخص شد که با افزایش pH کارایی حذف رنگ کاهش یافته است و مناسب‌ترین pH برای رنگ‌زا، pH برابر ۳ می‌باشد. در این pH، نانوذرات اکسید نیکل بیشترین ظرفیت جذب را داشته است. آنها دلیل این امر را وجود پروتون‌های بیشتر در pHهای اسیدی دانسته‌اند که موجب جاذبه الکترواستاتیک بیشتر مولکول‌های رنگ با بار منفی و جاذب‌های با بار مثبت می‌شود [۳۲]. همچنین طی تحقیق Aksu و همکاران برای حذف رنگ Remazol Black B به وسیله لجن فعال زنده و تصفیه‌شده، مشخص شد که راندمان حذف این رنگ در pH اسیدی بیشتر است [۳۳]. نتایج مطالعات یادشده با این تحقیق همخوانی دارد. در مطالعه حاضر با افزایش زمان تماس، میزان جذب افزایش یافت که دلیل آن افزایش احتمال برخورد مولکول‌های رنگ با سطح جاذب می‌باشد. همان‌طور که در نمودار ۲ مشاهده می‌شود، با افزایش زمان تماس، در ابتدا مقدار جذب بسیار سریع بوده است و پس‌از آن، میزان جذب به یک حد ثابت رسید و در آن افزایشی مشاهده نشد. این امر می‌تواند به دلیل کاهش غلظت رنگ و کاهش نقاط فعال جاذب باشد. با گذشت زمان تعداد این محل‌ها کاهش می‌یابد و با اشغال تدریجی این محل‌ها توسط مولکول‌های رنگ، نیروی دافعه بین مولکول‌های ماده جذب‌شونده بیشتر می‌شود و میزان حذف یا همان جذب رنگ کاهش می‌یابد [۳۴]. نتایج مشابهی توسط Bhattacharyya و همکاران در زمینه حذف رنگ‌های قرمز

کنگو و متیل بنفش توسط نانورس به دست آمده است. در تحقیق مذکور بیشترین میزان حذف رنگ در دقایق اولیه صورت گرفته و در غلظت‌های بالا، جذب رنگ پس از ۱۰۰ دقیقه به یک مقدار تقریبی ثابت رسیده است [۱]. تحقیق دیگری که توسط Ai و همکاران بر روی حذف رنگ متیلن بلو توسط نانولوله‌های کربنی چنددیواره مغناطیسی‌شده انجام شد، مشخص گردید که با افزایش زمان، میزان جذب رنگ افزایش می‌یابد و رفته‌رفته پس از گذشت ۱۲۰ دقیقه به تعادل می‌رسد. آن‌ها جهت توجیه علت این امر، بیان کردند که در مراحل اولیه، جاذب سایت‌های خالی در دسترس بیشتری دارد و پس از گذشت زمان، این سایت‌ها اشغال شده و همچنین دستیابی به سایت‌های خالی باقی‌مانده به علت نیروی دافعه بین مولکول‌های محلول رنگ دشوار می‌شود [۳۵].

نتایج مرحله تأثیر مقدار جاذب بر میزان جذب رنگ نشان‌دهنده این است که با افزایش مقدار جاذب، میزان جذب افزایش می‌یابد. دلیل این امر، افزایش مساحت سطح و دسترسی بیشتر مولکول‌های رنگ به نقاط فعال سطح جاذب است [۳۶]. این نتایج با نتایج Liu و همکاران که بر روی جذب رنگ آنیونی آزو با استفاده کیتوزان/ بنتونیت مطالعه شده است، مطابقت می‌کند [۳۷].

با افزایش غلظت اولیه رنگ، میزان جذب رنگ افزایش می‌یابد، این در حالی است که درصد حذف کاهش می‌یابد. این کاهش درصد حذف رنگ ممکن است به دلیل کاهش تعداد سایت‌های فعال جاذب در غلظت‌های بالای رنگ باشد. مطالعه Sreelatha و همکاران نشان می‌دهد که با افزایش غلظت اولیه رنگ راکتیو، راندمان حذف آن توسط کیتوزان کاهش پیدا می‌کند. آن‌ها این کاهش را به این



راندمان بالاتر اصلاح نمود. باوجوداین، به دلیل تأثیر پارامترهایی نظیر درجه حرارت و دور همزن در فرایند جذب، مطالعات تکمیلی در این زمینه توسط دیگر محققان پیشنهاد می‌شود. همچنین از کیتوزان برای حذف سایر رنگ‌ها و به‌کارگیری جاذب‌های دیگر برای حذف این رنگ می‌توان استفاده کرد.

### نتیجه‌گیری

در این مطالعه وضعیت بهینه جهت شناخت کارایی بالای کیتوزان برای جذب رنگ نساجی ریمازول بلک بی (RBB) مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که کیتوزان می‌تواند دارای ظرفیت جذب مناسبی برای رنگ RBB از محلول‌های آبی در وضعیت آزمایشگاهی داشته باشد. همین‌طور مشخص شد که pH محلول و غلظت اولیه رنگ تأثیر زیادی بر بازدهی حذف دارند. با افزایش مقدار کیتوزان به دلیل امکان دسترسی بیشتر مولکول‌های رنگ به سطح آن، مقدار حذف رنگ افزایش می‌یابد. همچنین مدل ایزوترم GLF در مقایسه با دیگر مدل‌های موردبررسی توسط برنامه ISOFIT با داده‌ها همخوانی بیشتری داشت. از این‌رو، به دلیل سطح ویژه بالا، هزینه پایین، غیرسمی بودن و ظرفیت جذب، این جاذب می‌تواند به‌عنوان یک گزینه مؤثر برای حذف رنگ از محلول‌های آبی مورد ملاحظه قرار گیرد.

### تشکر و قدردانی

نویسندگان این مقاله بر خود لازم می‌دانند از کارشناسان محترم آزمایشگاه مهندسی بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی اصفهان که ما را در انجام این تحقیق مساعدت نمودند، قدردانی نمایند.

نسبت دادند که در یک دوز مشخص از کیتوزان، سایت‌های جذب در دسترس ثابت و محدود است [۳۸]. همچنین در تحقیق دیگری مشخص شد که با افزایش غلظت رنگ متیلن اورنج، میزان جذب توسط کیتوزان افزایش یافته است [۳۹]. در مطالعه Saha و همکاران گزارش شده است که با افزایش غلظت اولیه رنگ راکتیو سیاه ۵، بازدهی جذب کیتوزان افزایش پیدا می‌کند. آنها علت افزایش را به نیروی رانشی غلظت گرادپانت در اثر افزایش غلظت اولیه رنگ نسبت داده‌اند [۴۰].

همان‌طور که جدول ۲ نشان می‌دهد، اطلاعات آکائیک اصلاح معیار (AICc) به‌دست‌آمده از طریق نرم‌افزار ISOFIT مشخص می‌کند که ایزوترم GLF با داشتن پایین‌ترین مقدار AICc با داده‌های جذب رنگ متناسب است. ISOFIT به‌وسیله Teixeira و همکاران برای آنالیز ایزوترم جذب پیرن (Pyrene) به‌وسیله خاک‌های برزیل مورد استفاده قرار گرفت. نتایج آنها نشان داد که ISOFIT جهت تعیین ایزوترم متناسب با داده‌های جذب بسیار مفید می‌باشد [۴۱]. همچنین فرایند جذب بنزن روی نانوذرات مگنتیک مورد مطالعه توسط Amin و همکاران نشان داد که ایزوترم جذب غیرخطی و با ایزوترم BET تطبیق داده شد [۴۲].

از جمله محدودیت‌های این تحقیق که ممکن است باعث مشکل شود، می‌توان به وجود ناخالصی‌های رنگ و عدم جداسازی مناسب کیتوزان از محلول اشاره کرد که می‌تواند بر روی جذب نور در اسپکتروفتومتر تأثیر گذاشته و باعث ایجاد خطا شود. در پایان پیشنهاد می‌شود که می‌توان برای راندمان بیشتر حذف رنگ، از دوزهای بالاتر جاذب استفاده کرد و یا کیتوزان مورد استفاده را برای

## References

- [1] Bhattacharyya R, Ray SK. Removal of congo red and methyl violet from water using nano clay filled composite hydrogels of poly acrylic acid and polyethylene glycol. *Chemi Engine J* 2015; 260: 269-83.
- [2] Jauris IM, Fagan SB, Adebayo MA, Machado FM. Adsorption of acridine orange and methylene blue synthetic dyes and anthracene on single wall carbon nanotubes: A first principle approach. *Compu and Theo Chemi* 2016; 1076: 42-50.
- [3] Tunç Ö, Tanacı H, Aksu Z. Potential use of cotton plant wastes for the removal of Remazol Black B reactive dye. *J Hazard Mater* 2009; 163(1): 187-98.
- [4] Yılmaz AE, Boncukcuoğlu R, Kocakerim M, Karakaş İH. Waste utilization: The removal of textile dye (Bomplex Red CR-L) from aqueous solution on sludge waste from electrocoagulation as adsorbent. *Desalination* 2011; 277(1-3): 156-63.
- [5] Royer B, Cardoso NF, Lima EC, Vagheti JCP, Simon NM, Calvete T, et al. Applications of Brazilian pine-fruit shell in natural and carbonized forms as adsorbents to removal of methylene blue from aqueous solutions—Kinetic and equilibrium study. *J Hazard Mater* 2009; 164(2-3): 1213-22.
- [6] Carneiro PA, Umbuzeiro GA, Oliveira DP, Zanoni MVB. Assessment of water contamination caused by a mutagenic textile effluent/dyehouse effluent bearing disperse dyes. *J Hazard Mater* 2010; 174(1-3): 694-9.
- [7] Elmoubarki R, Mahjoubi F, Tounsadi H, Moustadraf J, Abdennouri M, Zouhri A, et al. Adsorption of textile dyes on raw and decanted Moroccan clays: Kinetics, equilibrium and thermodynamics. *Water Reso & Indust* 2015; 9: 16-29.
- [8] Abo-Farha S. Comparative study of oxidation of some azo dyes by different advanced oxidation processes: Fenton, Fenton-like, photo-Fenton and photo-Fenton-like. *J American Sci* 2010; 6(10): 128-42.
- [9] Aksu Z, Ertuğrul S, Dönmez G. Methylene Blue biosorption by *Rhizopus arrhizus*: Effect of SDS (sodium dodecylsulfate) surfactant on biosorption properties. *Chemi Engine J* 2010; 158(3): 474-81.
- [10] Arami M, Limaee NY, Mahmoodi NM. Evaluation of the adsorption kinetics and equilibrium for the potential removal of acid dyes using a biosorbent. *Chemi Engine J* 2008; 139(1): 2-10.
- [11] Balla W, Essadki AH, Gourich B, Dassaa A, Chenik H, Azzi M. Electrocoagulation/electroflotation of reactive,

- disperse and mixture dyes in an external-loop airlift reactor. *J Hazard Mater* 2010; 184(1-3): 710-6.
- [12] Ghaneian MT, Ghanizadeh G, Gholami M, Ghaderinasab F. Application of Eggshell as a Natural Sorbent for the Removal of Reactive Red 123 Dye from Synthetic Textile Wastewater. *Zahedan J Resear Med Sci* 2009; 11(4): 25-34. [Farsi]
- [13] Samarghandi M, Noori Sepehr M, Zarrabi M, Norouzi M, Amraie F. Mechanism and removal efficiency of CI Acid Blake 1 by pumice stone adsorbent. *Iran J Health Environ* 2011; 3(4): 399-410. [Farsi]
- [14] Zohra B, Aicha K, Fatima S, Nourredine B, Zoubir D. Adsorption of Direct Red 2 on bentonite modified by cetyltrimethylammonium bromide. *Chemi Engine J* 2008; 136(2-3): 295-305.
- [15] Ghaneian M, Ehrampoush M, Dehvary M, Jamshidi B, Amrollahi M. A survey of the efficacy of cuttle fish bone powder in the removal of Reactive Red 198 dye from aqueous solution. *Toloo e behdasht* 2012; 10(3-4): 127-38. [Farsi]
- [16] Sadeghi Kiakhani M, Arami M. Elimination of C.I. basic violet 16 from colored textile effluent using chitosan-ethyl acrylate as a bio-adsorbent. *J Advance Mater Coatings* 2012; 1: 15-26. [Farsi]
- [17] Bée A, Obeid L, Mbolantenaina R, Welschbillig M, Talbot D. Magnetic chitosan/clay beads: A magsorbent for the removal of cationic dye from water. *J Magn Magn Mater* 2017; 421: 59-64.
- [18] Ahmaditabar A, Dehghani MH, Izadpanah F. Removal of basic violet 16 dye from aqueous solutions by using chitosan extracted from shrimp shells. *J Resear Environ Health* 2015; 1(3): 186-92. [Farsi]
- [19] Szyguła A, Guibal E, Palacín MA, Ruiz M, Sastre AM. Removal of an anionic dye (Acid Blue 92) by coagulation-flocculation using chitosan. *J Environ Manag* 2009; 90(10): 2979-86.
- [20] Mousa NE, Simonescu CM, Pătescu R-E, Onose C, Tardei C, Culiță DC, et al. Pb<sup>2+</sup> removal from aqueous synthetic solutions by calcium alginate and chitosan coated calcium alginate. *React Funct Polym* 2016; 109: 137-50.
- [21] Hu P, Wang J, Huang R. Simultaneous removal of Cr(VI) and Amido black 10B (AB10B) from aqueous solutions using quaternized chitosan coated bentonite. *Int J Biol Macromol* 2016; 92: 694-701.
- [22] Crini G, Badot P-M. Application of chitosan, a natural aminopolysaccharide, for dye removal from aqueous solutions by adsorption processes using batch studies: A review of recent literature. *Prog polym sci* 2008; 33(4): 399-447.

- [23] Wong Y, Szeto Y, Cheung W, McKay G. Equilibrium studies for acid dye adsorption onto chitosan. *Langmuir* 2003; 19(19): 7888-94.
- [24] Chiou M-S, Li H-Y. Equilibrium and kinetic modeling of adsorption of reactive dye on cross-linked chitosan beads. *J Hazard Mater* 2002; 93(2): 233-48.
- [25] Hamzeh Y, Azadeh E, Izadyar S, Karaj I. Removal of reactive Remazol Black B from contaminated water by lignocellulosic waste of canola stalks. *J color sci tecnol* 2011; 5(5): 77-85. [Farsi]
- [26] Nourmoradi H, Zabihollahi S, Pourzamani H. Removal of a common textile dye, navy blue (NB), from aqueous solutions by combined process of coagulation–flocculation followed by adsorption. *Desalin Water Treat* 2015; 57(11): 1-12.
- [27] Mahmoodi NM, Salehi R, Arami M, Bahrami H. Dye removal from colored textile wastewater using chitosan in binary systems. *Desalination* 2011; 267(1): 64-72.
- [28] Yagub MT, Sen TK, Afroze S, Ang HM. Dye and its removal from aqueous solution by adsorption: A review. *Advan Collo Interf Sci* 2014; 209: 172-84.
- [29] Pourzamani H, Hajizadeh Y, Fadaei S. Efficiency enhancement of multi-walled carbon nanotubes by ozone for benzene removal from aqueous solution. *Inter J Environ Heal Engine* 2015; 4(1): 29.
- [30] Pourzamani H, Samani Majd AM, Fadaei S. Benzene removal by hybrid of nanotubes and magnetic nanoparticle from aqueous solution. *Desalin Water Treat* 2015; 57(40): 1-12.
- [31] Song Z, Chen L, Hu J, Richards R. NiO (111) nanosheets as efficient and recyclable adsorbents for dye pollutant removal from wastewater. *J Nanotechnology* 2009; 20(27): 2-10.
- [32] Nateghi R, Bonyadinejad GR, Amin MM, Assadi A. Nickel oxide nanoparticles application as an efficient adsorbent for dye removal from synthetic wastewater treatment. *Health system research* 2010; 6: 1015-21. [Farsi]
- [33] Aksu Z, Akin AB. Comparison of Remazol Black B biosorptive properties of live and treated activated sludge. *Chemi Engin J* 2010; 165(1): 184-93.
- [34] Ghaneian M, Dehvari M, Jourabi Yazdi N, Mootab M, Jamshidi B. Evaluation of efficiency of russian knapweed flower powder in removal of reactive Blue 19 from synthetic textile wastewater. *J Rafsanjan Univ Med Sci* 2013; 12(10): 831-42. [Farsi]
- [35] Ai L, Zhang C, Liao F, Wang Y, Li M, Meng L, et al. Removal of methylene blue from aqueous solution with magnetite loaded multi-wall carbon nanotube: Kinetic, isotherm and mechanism analysis. *J Hazard Mater* 2011; 198: 282-90.

- [36] Vimonses V, Jin B, Chow CWK, Saint C. Enhancing removal efficiency of anionic dye by combination and calcination of clay materials and calcium hydroxide. *J Hazard Mater* 2009; 171(1-3): 941-7.
- [37] Liu Q, Yang B, Zhang L, Huang R. Adsorption of an anionic azo dye by cross-linked chitosan/bentonite composite. *Intern J bio macro* 2015; 72: 1129-35.
- [38] Sreelatha G, Ageetha V, Parmar J, Padmaja P. Equilibrium and kinetic studies on reactive dye adsorption using palm shell powder (an agrowaste) and chitosan. *J Chemi Engin* 2011; 56(1): 35-42.
- [39] Saha TK, Bhoumik NC, Karmaker S, Ahmed MG, Ichikawa H, Fukumori Y. Adsorption of methyl orange onto chitosan from aqueous solution. *J water res & prote* 2010; 2(10): 2969-78.
- [40] Saha TK, Bhoumik NC, Karmaker S, Ahmed MG, Ichikawa H, Fukumori Y. Adsorption characteristics of reactive black 5 from aqueous solution onto chitosan. *clean Soil Air Water* 2011; 39(10): 984-93.
- [41] Teixeira SCG, Marques MRDC, Canela MC, Ziolli RL, Perez DV. Study of pyrene adsorption on brazilian soils. *R Chim* 2009; 60: 583-7.
- [42] Amin MM, Bina B, Majd AMS, Pourzamani H. Benzene removal by nano magnetic particles under continuous condition from aqueous solutions. *Front Environ Sci Eng* 2014; 8(3): 345-56.

## The Removal Efficiency of Remazol Black B (RBB) Textile Dyes by Chitosan Adsorbent from Aqueous Solutions

M. Kamranifar<sup>1</sup>, A. Rezaei<sup>۲</sup>, E. Taheri<sup>۳</sup>, N. Mengelizadeh<sup>۴</sup>, H.R. Pourzamani<sup>5</sup>

Received: 28/05/2016

Sent for Revision: 25/09/2016

Received Revised Manuscript: 21/12/2016

Accepted: 25/12/2016

**Background and Objective:** In recent years, wastewater textile treatment is of special importance due to the potential toxicity, cancer activity, and mutagens. The purpose of this study was evaluation of the removal of Remazol Black B (RBB) dyes from aqueous solution by chitosan.

**Materials and Methods:** This laboratory study carried out on synthetic wastewater to assess the effect of factors such as pH (4- 10), contact time (2-186 min), adsorbent dosage (0.25- 1 g/L) and dye concentration (30- 60 mg/L) on the removal of RBB. Finally, Excel 2007 and ISOFIT (ISOtherm Fitting Tool) software were used to analyze data and adsorption isotherm data, respectively.

**Results:** The results showed that dye removal efficiency decreased with increasing pH, so that the maximum amount of dye removal (83%) was obtained in pH=4. Increasing the contact time of 2 to 66 minutes, dye removal efficiency with initial concentration 30 mg/L from 43% to 85% increases and then reaches an approximate constant value. Our results showed that by increasing the adsorbent dosage, removal efficiency increases and by increasing concentration dye, removal efficiency decreases. Adsorption isotherm data showed that the results of this study match better with GLF (Generalized Langmuir-Freundlich) model.

**Conclusion:** According to the results, chitosan can be used as an effective adsorbent for the removal of RBB dye in the textile industry wastewater or water contaminated with the dye.

**Keywords:** Chitosan, Dye removal, Remazol Black B (RBB), Aqueous solution

**Funding:** This study was funded by research deputy of Isfahan University of Medical Sciences.

**Conflict of interest:** None declared.

**Ethical approval:** The Ethics Committee of Isfahan University of Medical Sciences approval the study.

**How to cite this article:** Kamranifar M, Rezaei A, Taheri E, Mengelizadeh N, Pourzamani HR. The Removal Efficiency of Remazol Black B (RBB) Textile Dyes by Chitosan Adsorbent from Aqueous Solutions. *J Rafsanjan Univ Med Sci* 2017; 15(10): 929-42. [Farsi]

1- MSc Student of Environmental Health Engineering, Student Research Committee, Faculty of Health, Birjand University of Medical Sciences, Birjand, Iran

2- BSc Student of Environment Health Engineering, Student Research Committee, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

3- PhD Student of Environmental Health Engineering, Student Research Committee, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

4- Assistant Prof., Dept. of Environmental Health Engineering, Environment Research Center, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

5- Associate Prof., Dept. of Environmental Health Engineering, Environment Research Center, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

(Corresponding Author) Tel: (031) 37923281, Fax: (031) 36695849, E-mail: Pourzamani@hlth.mui.ac.ir