Evaluation of Single-Walled and Multi-Walled Carbon Nanotubes efficiency for removal of Acetaminophen from Aquatic Solutions: Isotherm and kinetic adsorption study

Aliyeh Hossein Nezhad[1], Maryam Khodadadi[2], Ali Naghizade[3], Negin Nasseh[4], Soheila Chavoshan[1]

[1] *MSc Students of Environmental Health Engineering, Birjand University of Medical Sciences, Birjand, Iran*
[2] ***Corresponding author;*** *Medical Toxicology and Drug abuse Research Center (MTDRC), Department of Environmental Health Engineering, Birjand University of Medical Sciences (BUMS), Birjand, Iran*
Tel: +989155623079 Email: maryam khodadadi@gmail.com
[3] *Medical Toxicology and Drug abuse Research Center (MTDRC), Birjand University of Medical Sciences (BUMS), Birjand, Iran.*
[4] *Social Determinants of Health Research Center, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Birjand University of Medical Sciences, Birjand, Iran*

Citation Hossein Nezhad A, Khodadadi M, Naghizade A, Nasseh N, Chavoshan S. [Evaluation of single-Walled and Multi-Walled Carbon Nanotubes Efficiency for Removal of Acetaminophen removal from Aquatic Solutions: isotherm and kinetic adsorption study]. J Birjand Univ Med Sci. 2019; 26(3): 198-212. [Persian]

DOI http://doi.org/10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102

Received: October 18, 2018 **Accepted:** April 30, 2019

ABSTRACT

Background and Aim: The residuals of drug are belonging to emerging pollutants. Drugs and their metabolites should be removed from water resources due to potential risks and their toxicities for humans and the environment.These materials are not completely eliminated by the conventional methods of water and wastewater treatment. The purpose of this study was to investigate the removal of acetaminophen using single-walled and multi-walled carbon nanotubes from aqueous environments.

Materials and Methods: In this experimental study, the effect of different parameters such as: pH, initial concentration of acetaminophen, adsorbent dose, time of touch and mixing speed were investigated in acetaminophen removal by single-wall and multi-wall carbon nanotubes. The adsorption isotherms of Langmuir, Freundlich, Temkin, Dubinin-Rudeshkuvich and BET and pseudo-first and pseudo-second order adsorption kinetics were also investigated. Acetaminophen concentration was measured by spectrophotometer at (λ max=258 nm).

Results: The result of the experiments showed that single-wall and multi-wall carbone nanotubes could be able to removal 38.59% and 28.24% of acetaminophen at time=45 min , PH=7. With increasing the dose of nanotubes, the removal percentage increased and absorption capacity decreased, Absorption process showed the highest correlation with Langmuir model and pseudo-second kinetics (R^2>0.99).

Conclusion: The results showed that single-walled and multi-walled carbon nanotube adsorbents can be used as an effective adsorbent in the removal of acetaminophen from aqueous environments along with other treatment methods.

Key Words: Acetaminophen; Carbon Nanotubes; Absorption Isotherm; Reaction kinetics; Aqueous Environments

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

مقاله اصیل پژوهشی

بررسی کارآیی نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چند دیواره در حذف داروی استامینوفن از محیط‌های آبی: مطالعه ایزوترم و سینتیک جذب

عالیه حسین‌نژاد[۱]، مریم خدادادی[۲]، علی نقی‌زاده[۳]، نگین ناصح[۴]، سهیلا چاوشان[۱]

چکیده

زمینه و هدف: باقیمانده‌های دارویی در گروه آلاینده‌های نوظهور قرار دارند. داروها و متابولیت‌های آن‌ها، به‌علّت ایجاد خطرات احتمالی و سمیت برای انسان و محیط، بایستی از منابع آبی حذف گردند. این مواد با روش‌های متعارف تصفیه آب و فاضلاب، به‌طور کامل حذف نمی‌شوند. هدف از این مطالعه، بررسی حذف استامینوفن با استفاده از نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چند دیواره از محیط آبی بوده است.

روش تحقیق: در این مطالعه تجربی، اثر متغیرهای مختلف شامل: pH، غلظت اولیه استامینوفن، دوز جاذب، زمان تماس و سرعت اختلاط در حذف استامینوفن به‌وسیله نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چند دیواره بررسی گردید. همچنین ایزوترم‌های جذب لانگمویر، فروندلیچ، Temkin، Dubinin-Rudeshkuvich و BET و سینتیک جذب شبه درجه اول و شبه درجه دوم نیز بررسی شد. غلظت استامینوفن به‌وسیله اسپکتروفتومتر در طول موج λ max= ۲۵۸nm اندازه‌گیری شد.

یافته‌ها: نتایج آزمایش‌ها نشان داد که نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چند دیواره به‌ترتیب قادر به حذف ۳۸/۵۹ و ۲۸/۲۴ درصد استامینوفن در زمان ۴۵ دقیقه، در pH=۷ هستند. با افزایش دوز نانولوله، درصد حذف افزایش و ظرفیت جذب کاهش یافت و فرآیند جذب بیشترین همبستگی را با مدل لانگمویر و سینتیک شبه درجه دو با R^2>۰/۹۹ نشان داد.

نتیجه‌گیری: براساس نتایج به دست آمده مشخص شد که جاذب‌های نانولوله کربنی تک‌دیواره و چند دیواره به‌عنوان یک جاذب مؤثر در حذف استامینوفن از محلول‌های آبی می‌تواند در کنار روش‌های دیگر تصفیه مورد استفاده قرار گیرد.

واژه‌های کلیدی: استامینوفن؛ نانولوله‌های کربنی؛ ایزوترم جذب؛ سینیتیک واکنش؛ محیط‌های آبی

مجله علمی دانشگاه علوم پزشکی بیرجند. ۱۳۹۸؛ ۲۶ (۳): ۱۹۸-۲۱۲.

دریافت: ۱۳۹۷/۰۷/۲۶ پذیرش: ۱۳۹۸/۰۲/۱۰

[۱] کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، کمیته تحقیقات دانشجویی، دانشگاه علوم پزشکی بیرجند، بیرجند، ایران

[۲] **نویسنده مسؤول؛** مرکز تحقیقات سم شناسی پزشکی و سوء مصرف مواد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی بیرجند، بیرجند، ایران

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

تلفن: ۰۹۸۹۱۵۵۶۲۳۰۷۹+ پست الکترونیکی: maryam khodadadi@gmail.com

[۳] مرکز تحقیقات سم شناسی پزشکی و سوء مصرف مواد، دانشگاه علوم پزشکی بیرجند، بیرجند، ایران

[۴] مرکز تحقیقات عوامل اجتماعی مؤثّر بر سلامت، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی بیرجند، بیرجند، ایران

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

مقدمه

در دهه اخیر، حضور آلاینده‌ها در منابع آبی به‌عنوان تهدیدی جدّی برای محیط زیست مطرح شده است. آلاینده‌های دارویی اغلب در تصفیه‌خانه‌های فاضلاب به‌طور کامل متابولیزه نمی‌شوند و به‌همراه پساب، وارد آب‌های پذیرنده می‌شوند؛ بنابراین قبل از تخلیه فاضلاب به منابع آبی و یا ورود آنها به تصفیه‌خانه آب شرب، آلاینده‌های دارویی بایستی حذف شوند (۱).

تحقیقات زیادی روی داروها به‌عنوان آلاینده‌های دارویی در کشورهای مختلف صورت گرفته و نتایج یکدیگر را مورد تأیید قرار داده‌اند؛ به‌عنوان مثال، داروهای پرمصرف مثل آسپرین و استامینوفن که در حجم بالایی تولید و مصرف می‌شوند، مصرف آن‌ها در برخی کشورهای اروپایی مثل آلمان و انگلستان بیش از ۱۰۰۰ تن در سال و در بعضی کشورهای دیگر از این میزان هم فراتر است (۲). بیش از ۹۰ درصد داروهای مصرفی، بدون تغییر به محیط زیست تخلیه می‌شوند؛ در حالی که طی متابولیسمی که توسط باکتری‌ها صورت می‌گیرد، آنها دوباره به ترکیبات فعال تبدیل می‌شوند (۳). بنابراین به نظر می‌رسد که فاضلاب شهری، آلوده به آلاینده‌های دارویی است که با توجه به زمان، مکان و نوع آلاینده‌های دارویی تغییر می‌کند؛ مثلاً در زمستان آلاینده‌های آنتی‌بیوتیکی بیشتر است (۳). با شیوع بیماری‌های خاص و با توجه به اقلیم و توپوگرافی منطقه، داروهای متفاوتی مصرف می‌شوند که وارد منابع آبی شده و به روش‌های مستقیم (آب شرب) و غیرمستقیم (گیاهان و فرآورده های حیوانی) وارد چرخه غذایی می‌گردند. در برخی شهرها به‌دلایل مختلف نوع آلاینده متفاوت می‌باشد (۳).

استامینوفن یکی از داروهای کاهش‌دهنده تب و ضد درد و التهاب است که به‌طور گسترده برای درمان مورد استفاده قرار می‌گیرد (۱). استامینوفن دارای ساختار شیمیایی ان–استیل–پی–آمینوفنول و وزن مولکولی ۱۵۱/۱۷گرم بر مول است. فرآورده‌های تجزیه آن سمی‌تر هستند. کم‌خونی، آلرژی، درماتیت و هپاتیت از جمله اثرات جانبی مصرف استامینوفن محسوب می‌شوند (۴). مشخص شده است که حدود ۵۸ تا ۶۸ درصد استامینوفن در طی درمان از بدن دفع می‌شود (۵). استامینوفن بارها در آب‌های سطحی و آب‌های زیرزمینی و در پساب تصفیه‌خانه فاضلاب در سراسر جهان شناسایی شده است؛ به‌عنوان مثال، این دارو با غلظت ۶ میکروگرم بر لیتر در خروجی تصفیه‌خانه فاضلاب اروپا شناسایی شده است (۶). برای آنالیز استامینوفن روش‌هایی مانند: اسپکتروفوتومتری، کروماتوگرافی مایع با کارآیی بالا و الکتروفورز مورد استفاده قرار گرفته است؛ همچنین در سال‌های اخیر از روش‌های مختلف تصفیه بیولوژیکی، اکسیداسیون پیشرفته، ازن‌زنی، واکنش‌های فنتون، غشاها، اولتراسونیک و فرآیند جذب سطحی برای حذف ترکیبات استامینوفن از آب و فاضلاب استفاده شده است (۹–۷).

جذب سطحی روشی مؤثر در حذف آلاینده‌ها از آب و فاضلاب حتی در غلظت‌های بسیار کم (کمتر از یک میلی‌گرم در لیتر) است. جذب سطحی در مقایسه با روش‌های دیگر، روشی ساده و قابل اجرا با هزینه عملیاتی پایین در جداسازی آلاینده‌ها از محیط‌های آبی است (۱۰)؛ بنابراین بسیاری از محققین بر روی بهینه‌سازی فرآیند جذب و یافتن جاذب‌های جدید با ظرفیت جذب بالا و قیمت پایین متمرکز شده‌اند (۱۱). با وجود استفاده گسترده از کربن فعال در فرآیند جذب سطحی، مشکلات تولید و احیای مجدد آن، محققان را به یافتن دیگر جاذب‌های جدید با ظرفیت جذب بالا و قابل احیا ترغیب نموده است (۹). در این خصوص اخیراً توجه زیادی به نانوتکنولوژی شده است. نانولوله‌های کربنی، ورق‌های گرافیتی هستند که به شکل لوله‌های استوانه‌ای پیچیده شده‌اند و با توجه به تعداد لایه‌های موجود در ساختارشان، به دو گروه تک‌دیواره (SWCNTs)[1] و چنددیواره (MWCNTs)[2] تقسیم می‌گردند (۱۳، ۱۲). از ویژگی‌های

[1] *Single Wall Carbon Nanotubes*
[2] *Multi Wall Carbon Nanotubes*

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

منحصر به فرد این مواد سطح ویژه بالا، نفوذپذیری زیاد، پایداری مکانیکی، حرارتی و الکتریکی مناسب و قابلیت استفاده مجدد است؛ همچنین نانولوله‌های کربنی خاصیت جذب بسیار خوبی برای ترکیبات مختلف آلی و یون‌های معدنی از خود نشان داده‌اند (۱۵، ۱۴).

محققان زیادی از جاذب‌های نانولوله‌های کربنی برای حذف آلاینده‌های دارویی استفاده کرده‌اند (۸، ۷). در مطالعه صمدی و همکاران، از نانولوله کربن چنددیواره در حذف آموکسی‌سیلین و در مطالعه Ncibi و Sillanpää از نانولوله‌های کربن تک‌دیواره و چند دیواره و دوجداره برای حذف سیپروفلوکساسین و اکسی‌تتراسایکلین استفاده شده است (۱۷، ۱۶). بنابراین با توجه به این مهم که استامینوفن از پرمصرف‌ترین داروها در کشور می‌باشد و با رشد روز افزون جمعیت و افزایش تقاضا و با توجه به افزایش آلودگی‌ها در محیط زیست و احتمال ورود آلاینده‌ها به آن، هدف از این مطالعه، حذف استامینوفن توسط نانولوله‌های کربنه تک‌دیواره (SWCNTs) و چند دیواره (MWCNTs) بود.

روش تحقیق

این پژوهش، یک مطالعه تجربی آزمایشگاهی است که به‌صورت ناپیوسته در ارلن‌هایی به حجم ۱۰۰ میلی‌لیتر بر روی شیکر برای حذف استامینوفن با نام شیمیایی N–استیل پارا آمینوفنل (NAPAP) انجام پذیرفت. این مطالعه دارای کد اخلاق به شماره ۱۳۹۵.۳۳. Ir.bums از کمیته اخلاق دانشگاه علوم پزشکی بیرجند می‌باشد.

مواد و دستگاه‌های مورد استفاده در این مطالعه شامل: استامینوفن (پاراستامول پودری ۱۰۰درصد، خریداری‌شده از شرکت سیگما)، نانولوله کربن تک‌دیواره و چند دیواره (ساخت شرکت نویان طب پدیده غرب تهران) و HCl و NaOH ۰/۱ نرمال به‌منظور تنظیم pH (ساخت شرکت مرک آلمان) بود. آزمایش جذب سطحی در یک سیستم جذب ناپیوسته، با استفاده از استامینوفن به‌عنوان ماده جذب‌شونده و نانولوله‌های کربنی به‌عنوان جاذب، انجام گرفت. محلول استوک ۵۰۰ میلی‌گرم بر لیتر مورد استفاده، با حل‌کردن ۰/۵ گرم داروی استامینوفن در یک لیتر آب بدون یون، تهیه شد؛ سپس غلظت‌های مورد نیاز با استفاده از محلول استوک و رقیق‌کردن آن ساخته شد و غلظت باقیمانده با دستگاه اسپکتروفتومتر (UV/Vis T80$^+$, PGInstrument Ltd Spectrometer کشور انگلیس) در طول موج (λ_{max}=۲۵۸ nm) اندازه‌گیری گردید (۱۸). برای مطالعه شکل، قطر متوسط، جزئیات سطح و تجزیه و تحلیل ساختاری نانولوله‌های کربنی از میکروسکوپ الکترونی (SEM[1] مدل SIGMA VP-500، ساخت شرکت ZEISS آلمان) مجهز به اسپکترومتر پخش اشعه ایکس استفاده گردید. برای تعیین ساختار کریستالی نانولوله‌های کربنی، از دستگاه پراش اشعه ایکس (XRD)[2](مدل Pro،Pert x ساخت شرکت Panaplytical کشور Netherlands) استفاده شد و برای تعیین گروه‌های عاملی موجود بر روی سطح جاذب، از آنالیز FT-IR[3] (دستگاه FT-IR مدل AVATAR370 کشور آمریکا) استفاده گردید.

روش انجام آزمایش‌های ستون ناپیوسته:

در این پژوهش ابتدا طول موج جذب از طریق اسپکتروم گرفته‌شده از محلول استامینوفن ۲۵۸ نانومتر به دست آمد؛ سپس منحنی استاندارد با استفاده از غلظت‌های مختلف با R^2= ۰/۹۹۹۷ رسم شد و متغیرهای مختلف بررسی گردید. متغیرهای مورد مطالعه شامل: pH (۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱)، غلظت اولیه داروی استامینوفن (۵۰، ۱۰۰، ۱۵۰ و ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر)، دوز جاذب (۰/۲۵، ۰/۵، ۰/۷۵ و ۱ گرم در لیتر) و سرعت اختلاط (۰، ۱۰۰، ۲۰۰ و ۳۰۰ دور در دقیقه) در جذب آلاینده توسط نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چنددیواره مورد بررسی قرار گرفت. برای سنجش، ابتدا منحنی کالیبراسیون با غلظت‌های مختلفی از استامینوفن رسم گردید که R^2 آن برابر

[1] *Scanning Electron Microscope*
[2] *X Ray Diffraction*
[3] *Fourier-transform infrared spectroscopy*

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

با ۰/۹۹ بود. درصد حذف از معادله زیر محاسبه و برای اطمینان از نتایج، هر مرحله از آزمایش دوبار تکرار و میانگین نتایج گزارش شد.

رابطه (۱):

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

در این معادله E درصد حذف، C_o غلظت اولیه و C_e غلظت پس از جذب استامینوفن بر حسب میلی‌گرم بر لیتر بود. برای اطمینان از نتایج، هر مرحله از آزمایش دوبار تکرار و میانگین نتایج گزارش شد. برای بررسی ایزوترم‌های جذب از مدل‌های لانگمویر[1]، فروندلیچ[2]، تمکین[3]، BET و Dubinin- Rudeshkuvich و برای بررسی سینتیک جذب از معادلات درجه اول و درجه دوم استفاده شد. به‌منظور تحلیل نتایج جذب و ایزوترم‌های آن، دو مدل لانگمویر و فروندلیچ مورد بررسی قرار گرفت. معادلات خطی این دو مدل به ترتیب مطابق روابط ۲ و ۳ است.

رابطه (۲):

$$C_e/q_e = 1/bq_m + C_e/q_m$$

رابطه (۳):

$$Lnq_0 = LnK_f + 1/n\ LnC_0$$

که در روابط فوق، غلظت Ce و qe به‌ترتیب نشان‌دهنده غلظت تعادلی در فاز محلول (میلی‌گرم بر لیتر) و جامد (میلی‌گرم بر لیتر)، q_m حداکثر ظرفیت جذب (میلی‌گرم بر گرم)، k، n و b ثابت‌های مدل هستند.

در مدل ایزوترم جذب تمکین (رابطه ۴) مقادیر مثبت یا منفی bT نشان‌دهنده گرمازا و یا گرماگیر بودن فرآیند جذب است. در این رابطه A_T ثابت پیوندی و نشان‌دهنده حداکثر انرژی پیوندی ($L.g^{-1}$) است، b_T ثابت تمکین (J/mol)، R ثابت گازها و T دمای مطلق می‌باشد.

رابطه (۴):

$$q_e = (RT/b_T)Ln(A_T C_e)$$

در معادله BET (رابطه ۵) C_S غلظت اشباع فاز محلول (میلی‌گرم بر لیتر)، K_b ثابت مدل و q_{max} مقدار جذب‌شده در هر واحد جاذب (گرم) می‌باشد.

رابطه (۵):

$$q_e = (q_{max}\ K_b\ C_e)/(C_s - C_e)[1+(K_b-1)(C_e/C_s)]$$

مدل Dubinin- Rudeshkuvich (رابطه ۶) اغلب برای تعیین ماهیت و ویژگی‌های فرآیند جذب و تعیین انرژی آزاد به‌کار گرفته می‌شود. در این مدل، $KJ^2.mol^{-2}$ پتانسیل جذب پولانی، B انرژی آزاد متوسط جذب ($mol^2.kj^{-2}$)، R ثابت گازها ($J.mol^{-1}.k^-$) و T دما (k) می‌باشد (۱۹).

رابطه ۶:

$$q_e = \exp(-k2) \;/\; E = R.T.\ln(1+1/ce) \;/\; E = 1/\sqrt{2B}$$

سینتیک‌های شیمیایی نشان‌دهنده سرعت واکنش‌های شیمیایی می‌باشند. در این مطالعه، ثابت سرعت جذب استامینوفن به‌وسیله نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چند دیواره با مدل‌های سینتیکی شبه درجه یک و شبه درجه دو مطابقت داده شد و متناسب‌ترین مدل تعیین گردید. معادلات سینتیک‌های شبه درجه یک و دو به‌صورت روابط ۷ و ۸ می‌باشد.

رابطه (۷):

$$Ln(q_e - q_t) = Lnq_e - K_1 t$$

رابطه (۸):

$$t/q_t = 1/k_2 q_e^2 + t/q_e$$

که در این روابط qe غلظت تعادلی فاز جاذب (میلی‌گرم بر گرم)، q_t غلظت آنتی‌بیوتیک در لحظه t (میلی‌گرم بر گرم) و k_1 و k_2 ثابت سرعت معادلات شبه درجه یک و دو می‌باشند (۲۰).

[1] *Langmuir*
2 Freundlich
[3] *Temkin*

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

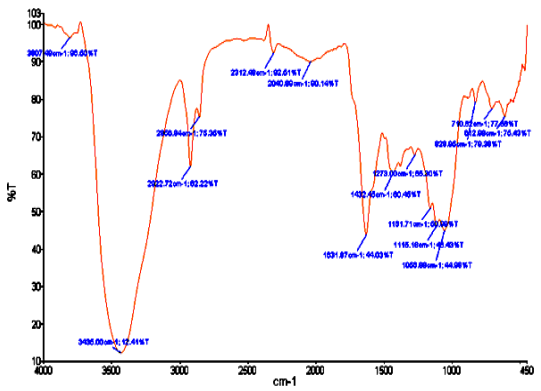
یافته‌ها

بررسی مشخصات جاذب‌های مورد استفاده، با استفاده از تکنیک‌های تشخیصی خاص انجام شد که به‌صورت نتایج زیر آورده شده است.

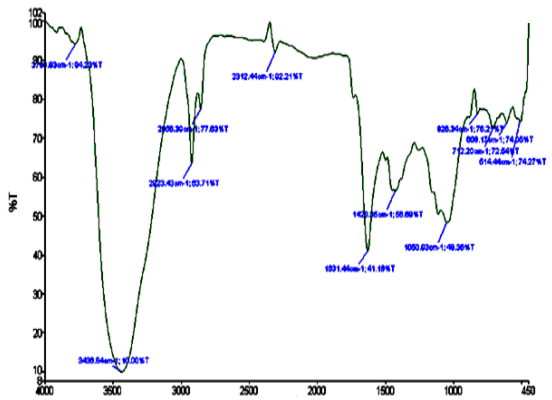
بررسی طیفی FT-IR جاذب‌های مورد استفاده:

برای تعیین گروه‌های عاملی موجود بر روی سطح جاذب پس از فرآیند جذب استامینوفن از طیف FTIR استفاده شد که در شکل یک نشان داده شده است.

الف



ب)

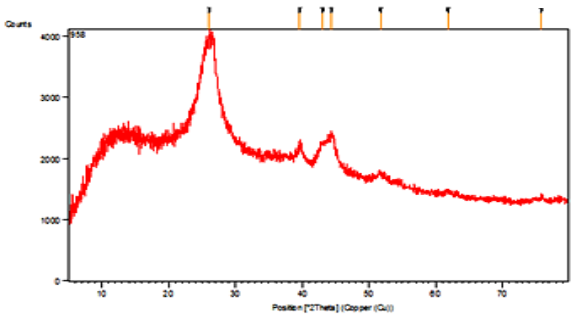


شکل ۱- طیف FT-IR نانولوله‌های کربن تک‌دیواره بعد از جذب استامینوفن (الف) و نانولوله‌های کربن چنددیواره بعد از جذب استامینوفن (ب)

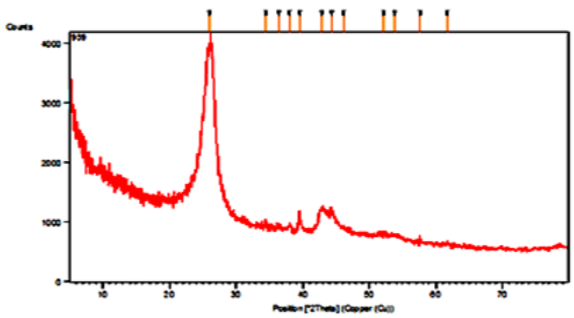
بررسی طیف اشعه ایکس (XRD):

ساختار بلورینگی نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چنددیواره قبل از جذب و بعد از جذب استامینوفن در تصویر ۲ ارائه شده است.

الف)



ب)

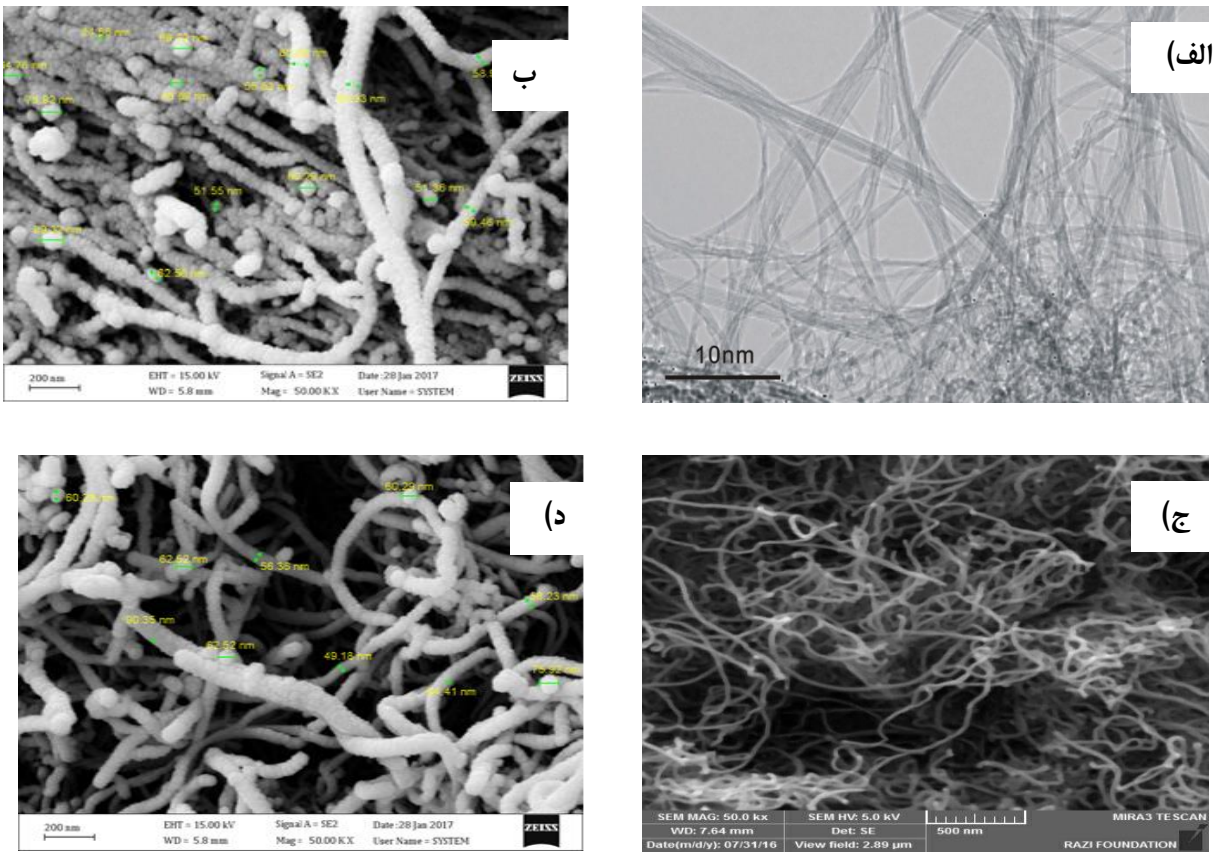


شکل ۲- طیف XRD مربوط به نانولوله‌های کربن تک‌دیواره (الف) و نانولوله‌های کربن چند دیواره بعد از جذب استامینوفن (ب)

بررسی تصاویر میکروسکوپ الکترونی (SEM):

شکل و اندازه نانولوله‌های کربنی توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی تعیین شد. SEM به‌صورت گسترده برای تعیین مورفولوژی، شکل و تخمین اندازه ذرات در ابعاد میکرو و نانو استفاده می‌شود. این تصاویر، نشان‌دهنده ساختارهای رشته‌ای نانولوله می‌باشند. تصاویر SEM (شکل ۳) مربوط به این نانوذرات نشان می‌دهد که قطر نانولوله‌ها بعد از فرآیند جذب افزایش یافت.

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

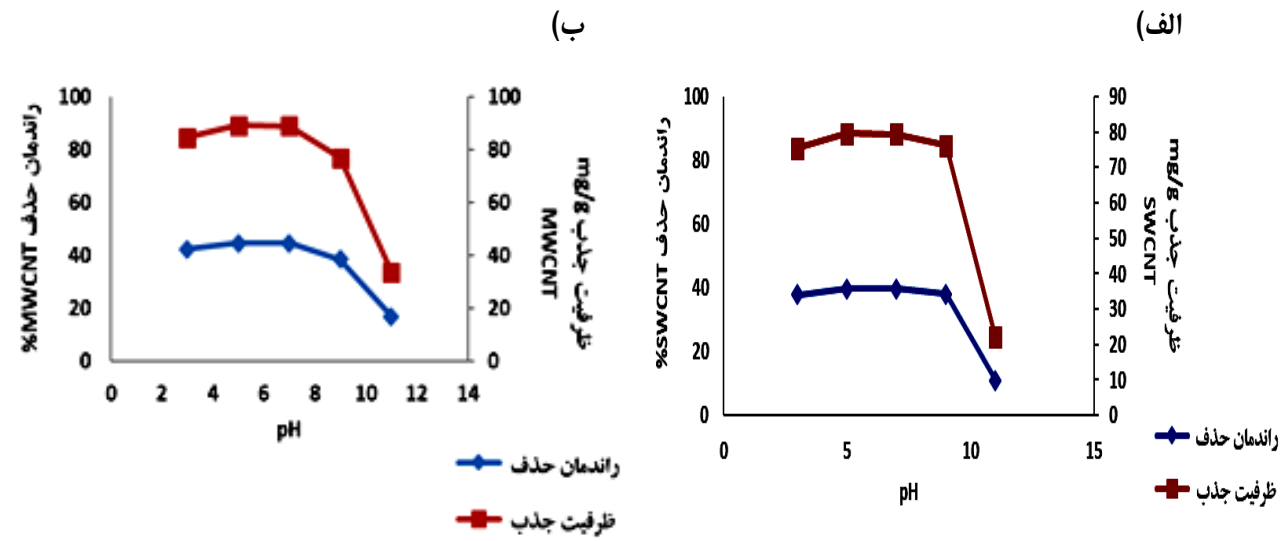


شکل ۳- تصویر SEM مربوط به نانولوله کربن تک‌دیواره قبل از جذب استامینوفن (الف)، نانولوله کربن تک‌دیواره بعد از جذب استامینوفن (ب)، نانولوله کربن چند دیواره قبل از جذب استامینوفن (ج) و نانولوله کربن چند دیواره بعد از جذب استامینوفن (د).

بررسی اثر pH:

با توجه به شکل شماره ۴، نتایج حاصل از آزمایش‌ها بر روی جاذب‌های نانولوله کربن تک‌دیواره و چند دیواره نشان داد که افزایش pH از ۳ تا ۹ به آهستگی صورت یافت و افزایش pH بالاتر از ۹ باعث کاهش راندمان حذف استامینوفن شد؛ به‌طوری که راندمان حذف استامینوفن توسط نانولوله‌های کربن تک‌دیواره در pH=۳ درصد حذف ۳۷/۷۳، در pH=۵ درصد حذف ۳۹/۷۹، در pH=۷ راندمان حذف ۳۹/۷۰ و در pH=۹ درصد حذف ۳۸/۰۸ بود و بعد از آن در pH=۱۱ به ۱۱ درصد کاهش یافت؛ به‌علاوه راندمان حذف استامینوفن توسط نانولوله‌های کربن چند دیواره در pH=۳درصد حذف ۴۲/۲۹،در pH=۵ درصد حذف ۴۴/۵۲، در pH=۷ راندمان حذف ۴۴/۴۴ و در pH=۹ درصد حذف ۳۸/۳۵ بود و بعد از آن در pH=۱۱ به ۱۶/۸۲درصد کاهش یافت. با توجه به ثابت‌بودن راندمان حذف در pH ۳ تا ۹، به‌منظور کاهش مواد مصرفی و انجام بهتر فرآیند حذف در محیط‌های آبی و عدم نیاز به تنظیم pH، pH=۷ به‌عنوان pH بهینه برای ادامه کار انتخاب شد.

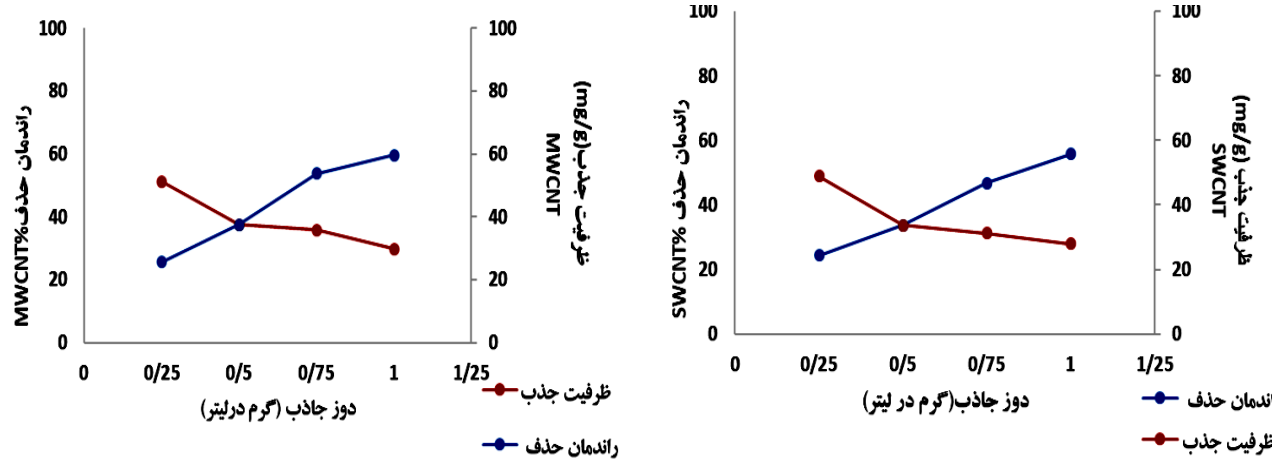
[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]



شکل ۴- بررسی تغییرات pH در کارآیی نانولوله SWCNT (الف) و MWCNT (ب) برای حذف استامینوفن. [غلظت اولیه استامینوفن= $50 mgL^{-1}$، دوز جاذب= $0/5 gL^{-1}$، t=۳۰ min، v= ۳۰۰rpm]

بررسی اثر دوز جاذب :

در شکل ۵ میزان حذف استامینوفن به‌ازای مقادیر مختلف نانولوله‌های کربنی نشان داده شده است. با افزایش مقدار جاذب کارآیی حذف نیز افزایش یافت. همانگونه که مشاهده شد با افزایش مقدار جاذب نانولوله کربن تک‌دیواره از ۰/۲۵ تا ۱ گرم در لیتر، کارآیی حذف از ۲۴/۴۴ درصد تا ۵۵/۸۲ درصد افزایش یافت و ظرفیت جذب از ۴۸/۸۸ میلی‌گرم بر گرم به ۲۷/۹۱ میلی‌گرم بر گرم کاهش پیدا کرد و در مورد جاذب نانولوله کربن چند دیواره از ۰/۲ تا ۱ گرم در لیتر، کارآیی حذف از ۲۶/۶۱ درصد تا ۵۹/۶۴ درصد افزایش یافت و ظرفیت جذب از ۵۱/۲۳ میلی‌گرم بر گرم به ۲۹/۸۲ میلی‌گرم بر گرم کاهش پیدا کرد. از آنجایی که کمترین مقدار جاذب بالاترین ظرفیت جذب را دارد، بنابراین غلظت بهینه نانولوله‌های کربنی برابر ۰/۲۵ گرم در لیتر تعیین گردید.

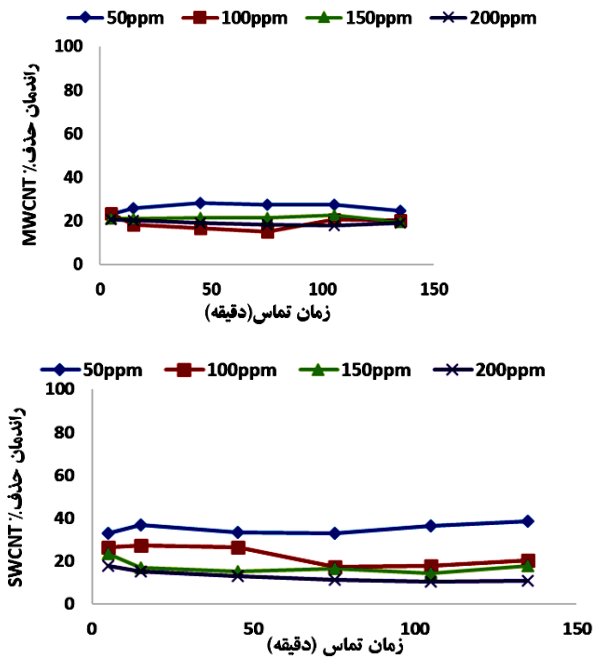


شکل ۵- بررسی دوز جاذب در کارآیی حذف استامینوفن توسط نانولوله SWCNT (الف) و MWCNT (ب). [mgL-1 ۵۰=غلظت اولیه استامینوفن، pH=۷، t=۳۰min، v=۳۰۰rpm]

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

بررسی اثر زمان تماس و غلظت:

با توجه به شکل ۶، با افزایش زمان تماس، راندمان حذف تغییر چندانی نمی‌کند؛ در نتیجه زمان تماس بهینه برای جاذب‌های SWCNT و MWCNT، ۴۵ دقیقه و غلظت بهینه ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر در نظر گرفته شد. با افزایش غلظت اولیه استامینوفن، راندمان حذف کاهش و ظرفیت جذب افزایش یافت؛ به‌طوری که در غلظت اولیه استامینوفن برابر ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر، توسط جاذب نانولوله کربن تک‌دیواره و چند دیواره درصد حذف به‌ترتیب: ۳۸/۵۹ و ۲۷/۵۳ و با افزایش غلظت به ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر، درصد حذف استامینوفن توسط جاذب نانولوله کربن تک‌دیواره و چند دیواره به‌ترتیب به: ۱۰/۸۱ و ۱۸/۰۱ کاهش یافت. دلیل آن، پرشدن سایت‌های فعال جذب نانولوله‌ها بود که به‌تدریج با افزایش غلظت استامینوفن فرآیند واجذبی از سطح نانولوله صورت گرفته است.



شکل ۶- بررسی اثر زمان تماس و غلظت اولیه استامینوفن در کارآیی نانولوله SWCNT (الف) و نانولوله MWCNT (ب) برای حذف استامینوفن [دوز جاذب=۰/۲۵gL-1، pH=۷، v=۳۰۰ rpm]

بررسی سرعت هم زدن:

هم‌زدن محلول، تأثیر مستقیم روی راندمان حذف داشت. با توجه به اینکه سرعت اختلاط نانولوله‌ها و فاز آبی استامینوفن باعث افزایش سطح تماس بین دو فاز می‌شود، در نتیجه منجر به افزایش کارآیی استخراج گردید. با افزایش سرعت هم‌زدن، میزان حذف استامینوفن توسط نانولوله کربن تک‌دیواره و چند دیواره در سرعت ۵۰ دور بر دقیقه به‌ترتیب: ۱۰/۲۴ و ۱۰/۰۸ درصد بود و در سرعت ۳۰۰ دور بر دقیقه به ۳۸/۵۹ و ۲۸/۲۴درصد افزایش یافت؛ بنابراین سرعت بهینه ۳۰۰ دور در دقیقه برای جاذب‌های مذکور در نظر گرفته شد.

مطالعه ایزوترم‌های جذب:

در مطالعات مربوط به جذب آلاینده‌ها بر روی جاذب‌های مختلف، تعیین ایزوترم جذب از مهمترین مشخصه‌هایی است که باید مورد توجه قرار گیرد. در واقع پارامترهای ایزوترمی، اطلاعات مهمی برای طراحی و مدلسازی فرآیند جذب فراهم می‌کند. ایزوترم‌های جذب اغلب برای توضیح جذب مواد بر روی جاذب به‌کار می‌رود. در این مطالعه ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیخ، BET، Temkin و Dubinin-Rudeshkuvich برای جاذب‌های MWCNT و SWCNT بعد از جذب استامینوفن مورد بررسی قرار گرفت. ضرایب و ثابت‌های هر یک در جداول ۱ و ۲ مشخص گردیده است. براساس مدل‌های ایزوترمی، داده‌های به‌دست آمده از این مطالعه برای نانولوله کربن تک‌دیواره به‌ترتیب: از ایزوترم‌های لانگمویر (R^2=۰/۹۹)، تمکین (R^2=۰/۹۷)، فروندلیچ (R^2=۰/۹۶) و Dubinin-Rudeshkuvich (R^2 =۰/۹۴) و برای جاذب نانولوله‌های کربن چند دیواره به‌ترتیب: از ایزوترم‌های لانگمویر (R^2=۱)، فروندلیچ (R^2=۰/۹۹)، تمکین (R^2=۰/۹۸) و Dubinin-Rudeshkuvich (R^2=۰/۹۴) تبعیت می‌نمود.

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

جدول ۱- نتایج حاصل از برازش داده‌های تعادلی برای تعیین ایزوترم جاذب SWCNT و MWCNT پس از جذب استامینوفن

نوع ایزوترم	جاذب	ثابت‌ها				
		R^2	R_L	kL, L/mg	q_{max}, mg/g	
لانگمویر	نانولوله کربن تک‌دیواره	۰/۹۹	۰/۵۰	۰/۰۱۲	۲۲۵/۵۱	L1
		–	–	۰/۰۱۳۶۷۷	۲۱۳/۶۲۳۵۳	L2
	نانولوله کربن چند دیواره	۱/۰۰	۰/۵۰	۰/۰۰۱	۹۴۹/۱۵	L1
		–	–	۰/۰۰۱۷۷۰۶	۷۴۵/۲۶۶۹۹	L2
تمکین		R^2	–	B	b_T	A_T, L/mg
	نانولوله کربن تک دیواره	۰/۹۷	–	۵۲/۳۹	۴۷/۲۹	۰/۱۱
	نانولوله کربن چند دیواره	۰/۹۸	–	۸۰/۱۹	۳۰/۸۹	۰/۰۴
فروندلیچ		R^2	–	k_f , mg/g	n	1/n
	نانولوله کربن تک دیواره	۰/۹۶	–	۱۰/۷۸	۱/۹۱	۰/۵۲
	نانولوله کربن چند دیواره	۰/۹۹	–	۱/۹۱	۱/۱۳	۰/۸۸
Dubinin-Rudeshkuvich		R^2	–	q_m, mg/g	E, kJ/mole	β, $mole^2/kJ^2$
	نانولوله کربن تک دیواره	۰/۹۴	–	۱۴۱/۳۶۸۲۹	۰/۰۵۷۸۱۶۱	۰/۰۰۰۱۴۹۶
	نانولوله کربن چند دیواره	۰/۹۴	–	۱۴۹/۲۳۴۱۲۶۳	۰/۰۴۱۰۱۳۳	۰/۰۰۰۲۹۷۲
BET		R^2	X_m	A	(A-1)/(A.Xm)	1/A.Xm
	نانولوله کربن تک دیواره	۰/۰۰۳	−۲۸۲	۰/۱	−۰/۰۰۳۵	۰/۰۳۱۰
	نانولوله کربن چند دیواره	۰/۵۱۵	۰/۸۸۷۷	۰	۰/۰	−۱/۰۸۶۸

سینتیک جذب:

سینتیک‌های شیمیایی در حقیقت سرعت واکنش‌های شیمیایی را نشان می‌دهند. در این مطالعه ثابت سرعت جذب به‌وسیله نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چنددیواره با مدل‌های سینتیکی شبه درجه یک و شبه درجه دو مطابقت داده شد و متناسب‌ترین مدل تعیین گردید. جدول ۲ پارامترها و ضرایب همبستگی مربوط را نشان می‌دهند. همان‌گونه که از نتایج استنباط می‌شود، واکنش جذب توسط جاذب‌های SWCNT و MWCNT با مدل شبه درجه دو مطابقت بهتری داشت.

جدول ۲- نتایج حاصل از برازش داده‌های تعادلی برای تعیین سینتیک جاذب‌های SWCNT و MWCNT پس از جذب استامینوفن (غلظت استامینوفن ۵۰ mg/l)

ثابت ها	مدل سینتیکی شبه درجه یک		ثابت ها	مدل سینتیکی شبه درجه دو	
	نانولوله کربن تک‌دیواره	نانولوله کربن چنددیواره		نانولوله کربن تک‌دیواره	نانولوله کربن چنددیواره
K_1	۰/۰۰۴۷	۰/۰۳۸۶	K_2	۰/۳	۰/۰۰۶۴
q_e	۴۴/۳۷	۳۰/۶۴	q_e	۶۹/۴۴	۵۹/۱۷
R^2	۰/۸۷۳۷	۰/۸۷۶۹	R^2	۱	۰/۹۹۷۹

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

بحث

با توجه به شکل ۱، در طیف FT-IR نانولوله کربن تک‌دیواره بعد از جذب استامینوفن، پیک جذبی cm^{-1} ۳۴۳۵ مربوط به اثبات ارتعاشات کششی O-H، پیک‌های جذبی cm^{-1} ۲۹۲۲/۷۲ و cm^{-1} ۲۸۵۶/۸ مربوط به اثبات پیوند کششی گروه‌های متیل، پیک جذبی cm^{-1} ۲۰۴۰/۸۹۰ مربوط به ارتعاشات پیوند C-N، پیک جذبی موجود در ناحیه cm^{-1} ۱۶۳۱/۸۷ مربوط به همپوشانی پیوند ارتعاشی C=O و C-NH بوده و همچنین پیک‌های نواحی cm^{-1} ۱۴۳۲/۴۵ و ۱۱۶۱/۷۱ به‌ترتیب مربوط به ارتعاشات کششی C=C و C-O می‌باشند که همه این تغییرات در طیف IR تأییدکننده وجود گروه‌های عاملی استامینوفن جذب‌شده بر روی ساختار نانولوله تک‌دیواره است. در بررسی طیفی FT-IR نانولوله کربن چنددیواره بعد از جذب استامینوفن، پیک جذبی cm^{-1} ۳۴۳۵ مربوط به اثبات ارتعاشات کششی O-H، پیک‌های جذبی cm^{-1} ۲۸۵۶/۰۵ و ۲۹۲۳/۴۳ مربوط به اثبات پیوند کششی گروه‌های متیل، پیک جذبی cm^{-1} ۲۳۱۲/۴۴ مربوط به ارتعاشات پیوند C-N، پیک جذبی موجود در ناحیه cm^{-1} ۱۶۳۱/۴۴ مربوط به همپوشانی پیوند ارتعاشی C=O و C-NH بوده و همچنین پیک‌های نواحی cm^{-1} ۱۴۲۸/۸۵ و cm^{-1} ۱۰۵۰/۹۳ به‌ترتیب مربوط به ارتعاشات کششی C=C و C-O می‌باشند که همگی این تغییرات در طیف IR تأییدکننده وجود گروه‌های عاملی استامینوفن جذب‌شده بر روی ساختار نانولوله چند دیواره است.

ساختار بلورینگی نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چند دیواره بعد از جذب آلاینده‌ها در شکل ۲ ارائه شده است. الگوهای XRD، پیک‌های مشخصی را برای SWCNT بعد از جذب استامینوفن در زوایای 2Ø ۲۶/۰۷، ۴۴/۳۸، ۴۳/۰۷ و ۳۹/۶۴ نشان داد که شیفت پیک‌ها بعد از فرآیند جذب در مقایسه با قبل از جذب، تغییر چندانی در ساختار جاذب ایجاد نکرد و مطابق با داده‌های پایگاه JCPDS بود. شکل و اندازه نانولوله‌های کربنی توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی تعیین شد. SEM به‌صورت گسترده برای تعیین مورفولوژی، شکل و تخمین اندازه ذرات در ابعاد میکرو و نانو استفاده می‌شود. این تصاویر، نشان‌دهنده ساختارهای رشته‌ای نانولوله می‌باشند. شکل ۳ تصاویر SEM مربوط به این نانوذرات را نشان می‌دهد. بر طبق این شکل، اندازه نانولوله کربنی تک‌دیواره قبل از جذب در محدوده nm ۳–۱ بود؛ اما قطر این نانولوله‌ها پس از جذب استامینوفن به nm ۸۱/۳۲ –۲۴/۵۶ افزایش یافت. قطر نانولوله‌های کربنی چند دیواره نیز قبل از جذب در محدوده nm ۳۰–۲۰ بود که پس از جذب استامینوفن به nm۹۰/۳۵ –۴۹/۱۸ افزایش یافت. تصاویر جذب حاکی از آن است که بعد از فرآیند جذب، اکثر سایت‌ها و خلل و فرج جاذب‌های مورد بررسی، با استامینوفن به‌صورت کروی و رشته‌ای در راستای سطح نانوتیوپ‌ها پر شده است.

نتایج حاصل از آزمایش‌ها بر روی جاذب‌های نانولوله کربن تک‌دیواره و چند دیواره (شکل ۴)، نشان داد افزایش pH از ۳ تا ۹ تأثیری بر حذف استامینوفن نداشت. افزایش pH به بالاتر از ۹ به‌دلیل منفی‌بودن بار سطحی جاذب (pH_{zpc}=۸/۵) و قرارگرفتن گروه‌های هیدروکسیل (OH^-) بر روی سطح نانولوله‌های کربنی، مانع از جذب استامینوفن شد و در نتیجه راندمان حذف، کاهش یافت. با توجه به ثابت‌بودن راندمان حذف در pH ۳ تا ۹، به‌منظور کاهش مواد مصرفی و عدم نیاز به تنظیم pH، pH=۷ به‌عنوان pH بهینه انتخاب شد. نتایج این مطالعه مشابه نتایج مطالعه مشایخ صالحی و همکاران در مورد حذف استامینوفن از آب آلوده با استفاده از جذب بر روی کربن فعال با کلرید آمونیوم بود. نتایج مطالعه

[1] *Joint Committee on Powder Diffraction Standards*

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

آنها نیز نشان داد که جذب استامینوفن بر روی جاذب، وابسته به pH نیست و در محدوده ۲-۹ بود؛ اما در pH بالاتر، راندمان حذف به‌طور قابل توجهی کاهش یافت (۲۱). همچنین در مطالعه دهقانی و همکاران نیز در pH های ۳ تا ۹ تغییر محسوسی در جذب مشاهده نشد و در pH بیشتر از ۹ جذب به‌طور ناگهانی کاهش یافت (۲۲).

نتایج مطالعه صمدی و همکاران در مورد حذف آموکسی‌سیلین با نانولوله کربنه نیز مشابه نتایج مطالعه حاضر است (۱۶). در مطالعه حاضر با افزایش غلظت اولیه استامینوفن (شکل ۶)، راندمان حذف کاهش و ظرفیت جذب افزایش یافت که دلیل آن، پرشدن سایت‌های فعال جذب نانولوله‌ها بود که باعث شد به‌تدریج با افزایش غلظت استامینوفن، فرآیند واجذبی از سطح نانولوله صورت گیرد. افزایش دوز جاذب باعث افزایش راندمان حذف استامینوفن توسط نانولوله‌ها و کاهش ظرفیت جاذب‌ها شد و در نتیجه کمترین مقدار جاذب ۰/۲ (گرم در لیتر) با بالاترین کارآیی حذف به‌عنوان دوز بهینه انتخاب گردید. این نتایج مشابه نتایج مطالعات صمدی و همکاران بود (۱۶). در آزمایش حاضر نیز ظرفیت جذب نانولوله‌های کربن تک‌دیواره بالاتر از نانولوله‌های کربن چند دیواره در جذب استامینوفن بوده و به‌ترتیب ۷۷/۱۸ و ۵۶/۴۷ میلی‌گرم بر گرم بود که ظرفیت جذب برای نانولوله‌های کربن تک‌دیواره بیشتر از نانولوله‌های کربن چند دیواره بود. در پژوهشی که توسط نقی‌زاده و همکاران انجام گرفت، نتایج نشان داد که ظرفیت جذب نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چند دیواره به‌ترتیب حدود ۱۴۸ و ۹۵ میلی‌گرم بر گرم بود (۲۳).

در مطالعات مربوط به جذب آلاینده‌ها بر روی جاذب‌های مختلف، تعیین ایزوترم و سینتیک جذب از مهمترین مشخصه‌هایی هستند که باید مورد توجه قرار گیرد. در واقع پارامترهای ایزوترمی و سینتیکی، اطلاعات مهمی برای طراحی و مدلسازی فرآیند جذب فراهم می‌کند. ایزوترم‌های جذب اغلب برای توضیح جذب مواد بر روی جاذب به‌کار می‌رود. در این مطالعه ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیخ، BET، Temkin و Dubinin-Rudeshkuvich مورد بررسی قرار گرفت. براساس مدل‌های ایزوترمی، داده‌های به‌دست آمده از این مطالعه برای نانولوله کربن تک‌دیواره و چند دیواره از ایزوترم لانگمویر تبعیت می‌کند. مدل لانگمویر براساس جذب تک‌لایه در تعداد محدودی جایگاه یکسان می‌باشد. در این مدل فرض می‌شود جذب در مکان‌هایی با انرژی یکسان بر روی سطح جاذب رخ می‌دهد؛ درحالی که در ایزوترم فروندلیخ ماده حل‌شونده بر روی سطوح ناهمسان و در چند لایه جذب می‌شود. در مطالعه Zhang و همکاران، جذب تتراسکلین توسط نانولوله‌های کربنی چند دیواره با ایزوترم لانگمویر مطابقت بهتری داشت (۱۳). همچنین در مطالعه دیگری در زمینه کاربرد نانولوله‌های کربنی چند دیواره در حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین از محیط‌های آبی نیز نتایج حاصله نشان داد که داده‌های تعادلی جذب با ایزوترم لانگمویر مطابقت بهتری نشان داد (۱۶). مقایسه کارآیی نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره و چند دیواره در حذف آرسنیک از محلول‌های آبی نیز نشان داد که مدل ایزوترم لانگمویر برای توصیف رفتار جذب آرسنیک روی نانولوله‌های کربنی بهترین تطابق را داشت (۲۳).

حذف استامینوفن از آب آلوده با استفاده از جذب بر روی کربن فعال با کلرید آمونیوم نیز نشان داد که سینتیک جذب شبه مرتبه دوم، و داده‌های تعادل جذب از ایزوترم جذب لانگمویر تبعیت نمود (۲۱). سینتیک جذب اطلاعات مهمی در مورد مکانیسم جذب، سرعت جذب ماده جذب‌شونده و کنترل زمان در فرآیند جذب بیان می‌کند (۲۴). در مدل سینتیکی شبه درجه یک، فرض بر این است که سرعت تغییرات برداشت ماده جذب‌شونده نسبت به زمان به‌طور مستقیم با تغییرات غلظت اشباع و مقدار برداشت جاذب با زمان متناسب می‌باشد (۲۵). مدل شبه درجه دو فرض می‌کند که دو واکنش (موازی و یا سری) در جذب ماده جذب‌شونده بر روی جاذب مؤثرند: اولی سریع بوده و به‌سرعت به تعادل

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

می‌رسد؛ در حالی که دومی سرعت کمی داشته و زمان طولانی‌تری ادامه می‌یابد (۲۶). در این مطالعه بررسی داده‌های آزمایشگاهی نشان داد، فرآیند جذب استامینوفن از معادله شبه درجه ۲ پیروی کرد. واکنش‌های درجه دوم با سرعتی متناسب با توان دوم ماده اولیه پیش می‌روند (۲۶، ۲۵). این نتیجه مشخص می‌کند که مکانیسم جذب استامینوفن بر روی نانولوله‌های کربنی می‌تواند از نوع جذب فیزیکی باشد. همچنین در مطالعه صمدی و همکاران نتایج نشان داد که سینتیک جذب با معادله سینتیکی درجه دو مطابقت بهتری نشان داد (۱۶).

در پایان می توان نتیجه‌گیری کرد که افزایش pH از ۳ تا ۹ تأثیری بر حذف استامینوفن توسط جاذب‌های SWCNT و MWCNT نداشت و افزایش pH به بالاتر از ۹ کاهش یافت. همچنین با افزایش زمان تماس راندمان حذف تغییر چندانی نکرد؛ زمان تماس بهینه برای جاذب‌های SWCNT و MWCNT، ۴۵ دقیقه به دست آمد. در ضمن با افزایش غلظت اولیه استامینوفن، راندمان حذف کاهش و ظرفیت جذب افزایش یافت که به‌دلیل پرشدن سایت‌های فعال جذب نانولوله‌ها بود که به‌تدریج با افزایش غلظت استامینوفن فرآیند واجذبی از سطح نانولوله صورت گرفت. افزایش دوز جاذب تأثیر چندانی روی میزان حذف استامینوفن توسط نانولوله‌ها نداشت و از آنجایی‌که کمترین مقدار جاذب، بالاترین کارآیی حذف را داشت، مقدار ۰/۲۵ گرم در لیتر به‌عنوان دوز بهینه انتخاب شد. هم‌زدن محلول، تأثیر مستقیم روی راندمان حذف داشت. با توجه به اینکه سرعت اختلاط نانولوله‌ها و فاز آبی استامینوفن باعث افزایش سطح تماس بین دو فاز می‌شود، در نتیجه منجر به افزایش کارآیی استخراج می‌گردد. با افزایش سرعت اختلاط، میزان حذف استامینوفن افزایش یافت و سرعت بهینه ۳۰۰ دور در دقیقه برای جاذب‌های مذکور در نظر گرفته شد. افزایش دما باعث کاهش راندمان حذف استامینوفن توسط نانولوله‌ها شد. با توجه به دشواری احیا و بازیابی مجدد آن توصیه می‌شود به‌منظور جداسازی آسان‌تر جاذب به‌صورت مغناطیسی استفاده شود.

نتیجه‌گیری

نتایج این مطالعه نشان داد که نانولوله‌های کربنی تک‌دیواره قادر به حذف مقادیر بالاتری از آلاینده استامینوفن نسبت به نانولوله‌های کربن چند دیواره در زمان ۴۵ دقیقه و شرایط خنثی هستند. همچنین با افزایش دوز نانولوله، درصد حذف افزایش و ظرفیت جذب کاهش می‌یابد و فرآیند جذب بیشترین همبستگی را با مدل لانگمویر و سینتیک شبه درجه دو دارد. به‌طور کلی می‌توان گفت که جاذب‌های نانولوله کربنی تک‌دیواره و چند دیواره به‌عنوان یک جاذب مؤثر در حذف استامینوفن از محلول‌های آبی می‌تواند در کنار روش‌های دیگر تصفیه مورد استفاده قرار گیرد.

تقدیر و تشکر

نویسندگان مقاله، مراتب قدردانی و تشکر خود را از معاونت فناوری و تحقیقات دانشگاه علوم پزشکی بیرجند و دانشکده بهداشت برای حمایت مالی و تأمین امکانات آزمایشگاهی لازم برای انجام طرح تحقیقاتی با کد مصوب ۴۱۸۹ ابراز می‌دارند.

تضاد منافع:

نویسندگان مقاله اعلام می دارند که هیچ گونه تضاد منافعی در پژوهش حاضر وجود ندارد.

منابع:

1- Kermani M, Bahrami Asl F, Farzadkia M, Esrafili A, Salahshur Arian S, Arfaeinia H, et al. Degradation efficiency and kinetic study of metronidazole by catalytic ozonation process in presence of mgo nanoparticles. J Urmia Univ Med Sci. 2013; 24(10): 839-50. [Persian]

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

2- Webb SF. A Data-based Perspective on the Environmental Risk Assessment of Human Pharmaceuticals I — Collation of Available Ecotoxicity Data. In: Kümmerer K (eds). Pharmaceuticals in the Environment. 2001; Berlin, Heidelberg: Springer. pp: 175-201. doi: https://doi.org/10.1007/978-3-662-04634-0_15

3- Jones OA, Voulvoulis N, Lester JN. Human pharmaceuticals in the aquatic environment a review. Environ Technol. 2001; 22(12): 1383-94. DOI: 10.1080/09593332208618186

4- Rahbar M, Mehrgan H, Aliakbari NH. Prevalence of antibiotic-resistant Acinetobacter baumannii in a 1000-bed tertiary care hospital in Tehran, Iran. Indian J Pathol Microbiol. 2010; 53(2): 290-3. doi: 10.4103/0377-4929.64333.

5 –Kolpin DW, Furlong ET, Meyer MT, Thurman EM, Zaugg SD, Barber LB, et al. Pharmaceuticals, hormones, and other organic wastewater contaminants in US streams, 1999− 2000: A national reconnaissance. Environ Sci Technol. 2002; 36(6): 1202-11. doi: 10.1021/es011055j

6- Lishman L, Smyth SA, Sarafin K, Kleywegt S, Toito J, Peart T, et al. Occurrence and reductions of pharmaceuticals and personal care products and estrogens by municipal wastewater treatment plants in Ontario, Canada. Sci Total Environ. 2006; 367(2-3): 544-58. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2006.03.021

7 –Tao H, Liang X, Zhang Q, Chang CT. Enhanced photoactivity of graphene/titanium dioxide nanotubes for removal of Acetaminophen. Appl Surf Sci. 2015; 324: 258-64. doi: 10.1016/j.apsusc.2014.10.129

8- Im JK, Heo J, Boateng LK, Her N, Flora JR, Yoon J, et al. Ultrasonic degradation of acetaminophen and naproxen in the presence of single-walled carbon nanotubes. J Hazard Mater. 2013; 254-255: 284-92. doi: 10.1016/j.jhazmat.2013.04.001.

9- Crisafully R, Milhome M, Cavalcante RM, Silveira ER, De Keukeleire D, Nascimento RF. Removal of some polycyclic aromatic hydrocarbons from petrochemical wastewater using low-cost adsorbents of natural origin. Bioresour Technol. 2008; 99(10): 4515-9. DOI: 10.1016/j.biortech.2007.08.041

10- Putra EK, Pranowo R, Sunarso J, Indraswati N, Ismadji S. Performance of activated carbon and bentonite for adsorption of amoxicillin from wastewater: Mechanisms, isotherms and kinetics. Water Res. 2009; 43(9): 2419-30. doi: 10.1016/j.watres.2009.02.039.

11- Madrakian T, Afkhami A, Ahmadi M, Bagheri H. Removal of some cationic dyes from aqueous solutions using magnetic-modified multi-walled carbon nanotubes. J hazard mater. 2011; 196: 109-14. doi: 10.1016/j.jhazmat.2011.08.078.

12- Upadhyayula VKK, Deng S, Mitchell MC, Smith GB. Application of carbon nanotube technology for removal of contaminants in drinking water: a review. Sci Total Environ. 2009; 408(1): 1-13. doi: /10.1016/j.scitotenv.2009.09.027

13- AddoNtim S, Mitra S. Adsorption of arsenic on multiwall carbon nanotube–zirconia nanohybrid for potential drinking water purification. J Colloid Interface Sci. 2012; 375(1): 154-9. doi: 10.1016/j.jcis.2012.01.063

14- Sheng GD, Shao DD, Ren XM, Wang XQ, Li JX, Chen YX, et al. Kinetics and thermodynamics of adsorption of ionizable aromatic compounds from aqueous solutions by as-prepared and oxidized multiwalled carbon nanotubes. J Hazard Mater. 2010; 178(1-3): 505-16. doi: 10.1016/j.jhazmat.2010.01.110.

15- Trojanowicz M. Analytical applications of carbon nanotubes: a review. Trends Analyt Chem. 2006; 25(5): 480-9. doi: 10.1016/j.trac.2005.11.008

16- Samadi MT, Shokoohi R, Araghchian M, Tarlani Azar M. Amoxicillin removal from aquatic solutions using multi-walled carbon nanotubes. J Mazandaran Univ Med Sci. 2014; 24(117): 103-15.

17- Ncibi MCh, Sillanpää M. Optimized removal of antibiotic drugs from aqueous solutions using single, double and multi-walled carbon nanotubes. J Hazard Mater. 2015; 298: 102-10. doi: 10.1016/j.jhazmat.2015.05.025

18- Malakootian M, Ehrampoush M, Hossaini H, Pourshaban Mazandarani M. Acetaminophen Removal from Aqueous Solutions by TiO2-X photo catalyst. Tolooe Behdasht. 2016; 14(6): 200-13. [Persian]

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]

19- Naghizadeh A, Ghafouri M. Synthesis and Performance Evaluation of Chitosan Prepared from Persian Gulf Shrimp Shell in Removal of Reactive Blue 29 Dye from Aqueous Solution (Isotherm, Thermodynamic and Kinetic Study). Iran J Chem Chem Eng. 2017; 36(3): 25-36.

20- Zhang L, Song X, Liu X, Yang L, Pan F, Lv J. Studies on the removal of tetracycline by multi-walled carbon nanotubes. Chem Eng J. 2011; 178: 26-33. doi: 10.1016/j.cej.2011.09.127

21- Mashayekh-Salehi A, Moussavi G. Removal of acetaminophen from the contaminated water using adsorption onto carbon activated with NH_4Cl. Desalin Water Treat. 2016; 57(27): 12861-73.

22- Dehghani MH, Alimohammadi M, Mahvi AH, Rastkari N, Mostofi M ,Gholami M. Performance of multiwall carbon nanotubes for removal of phenol from aqueuos solution. Iranian Journal of Health and Environment (IJHE). 2014; 6(4): 491-502. [Persian]

23- Naghizadeh A, Derakhshani E, Javid A. Comparison between Single and Multi Wall Carbon Nanotubes in Removal of Arsenic from Aqueous Solution. Journal of Health and Hygiene. 2014; 5(1): 36-44. [Persian]

24- Zhu HY, Jiang R, Xiao L, Zeng GM. Preparation, characterization, adsorption kinetics and thermodynamics of novel magnetic chitosan enwrapping nanosized γ-Fe2O3 and multi-walled carbon nanotubes with enhanced adsorption properties for methyl orange. Bioresour Technol. 2010; 101(14): 5063-9. doi: 10.1016/j.biortech.2010.01.107

25- Nandi BK, Goswami A, Purkait MK. Adsorption characteristics of brilliant green dye on kaolin. J Hazard Mater. 2009; 161(1): 387-95. doi: 10.1016/j.jhazmat.2008.03.110.

26- Zazouli MA, Yousefi Z, Taghavi M, Akbari-adergani B, Yazdani Cherati J. Removing Cadmium from Aqueous Environments using L-cysteine Functionalized Single-Walled Carbon Nanotubes. J Mazandaran Univ Med Sci. 2013; 23(98): 37-47. [Persian]

[DOI: 10.32592/JBirjandUnivMedSci.2019.26.3.102]