

Removal of Pb(II) from Aqueous Solutions Using Graphene-Immobilized Nickel Oxide Composites

S. Kazempour¹, F. Moeinpour^{2*}

1. MSc., Dept. of Environment, Bandar Abbas Branch,
Islamic Azad University, Bandar Abbas, Iran

2. Assoc. Prof., Dept. of Chemistry, Bandar Abbas Branch,
Islamic Azad University, Bandar Abbas, Iran
(Corresponding Author) f.moeinpour@gmail.com

(Received June 21, 2022 Accepted Sep. 4, 2022)

To cite this article:

Kazempour, S., Moeinpour, F. 2023. "Removal of Pb(II) from aqueous solutions using graphene-immobilized nickel oxide composites" Journal of Water and Wastewater, 34(1), 124-137.
Doi: 10.22093/wwj.2022.364606.3291. (In Persian)

Abstract

Considering lead's toxicity and its characteristics as a serious environmental pollutant, to protect the human population's health and the ecosystem it is necessary to stop this heavy metal from entering water resources and the environment through industrial wastewater. Therefore, the present study was carried out to manage lead elimination from aqueous solutions using NiO nanocomposites immobilized on graphene. To determine the effective factors in the elimination process, some parameters including contact time (20, 30, 15, 5, 10, 3 min), adsorbent dosage (0.1, 0.05, 0.2, 0.01g), initial concentration of the lead solution (5, 10, 20, 50, 100, 200, 300, 800, 1000 mg/L) and pH (2, 4, 5, 6, 7) were investigated at room temperature, 40 °C and 55 °C. Based on the results, the amount of lead eliminated by graphene-immobilized nickel oxide nanoparticles reached its maximum value under the optimum conditions of 20 min contact time, 0.05g adsorbent, 5ppm initial concentration, and 55 °C temperature. In addition, the experimental data were analyzed using Langmuir, Freundlich, and Dubinin-Radushkevich isotherms of the adsorption process and the results indicated maximum compliance with the Langmuir isotherm, with a maximum adsorption capacity of 2000 mg/g. These findings show that lead absorption is an endothermic reaction. The graphene/NiO magnetic nanocomposite made in this way has many pores and a high specific area (196.5 m²/g), which makes it an ideal adsorbent for removing lead(II) ions from aqueous solution. The maximum absorption capacity obtained from the said adsorbent was 2000 mg/g, which is much higher than other common adsorbents. Among the advantages of this method, we can point out the very high absorption capacity, the simplicity of separating the adsorbent from the solution, and the fast duration of the absorption equilibrium (up to 20 min).

Keywords: Pb(II), Adsorption, Nanocomposite, Graphene-Immobilized Nickel Oxide Composites, Aqueous Solutions.



مجله آب و فاضلاب، دوره ۳۴، شماره ۱، صفحه: ۱۳۷-۱۲۴

حذف سرب (II) از محلول های آبی به وسیله نانو کامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن

سعید کاظم پور^۱، فرید معین پور^{۲*}

۱- کارشناس ارشد، گروه محیط زیست، واحد بندرعباس، دانشگاه آزاد اسلامی، بندرعباس، ایران
 ۲- دانشیار، گروه شیمی، واحد بندرعباس، دانشگاه آزاد اسلامی، بندرعباس، ایران
 (نویسنده مسئول) f.moeinpour@gmail.com

(دریافت ۱۴۰۱/۷/۱۴ پذیرش ۱۴۰۱/۸/۱۸)

برای ارجاع به این مقاله به صورت زیر اقدام فرمایید:

کاظم پور، س.، معین پور، ف.، ۱۴۰۲، "حذف سرب (II) از محلول های آبی به وسیله نانو کامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن"

مجله آب و فاضلاب، ۳۴(۱)، ۱۲۴-۱۳۷. Doi: 10.22093/wwj.2022.364606.3291

چکیده

با توجه به خصوصیات سمیت و آلاینده گی جدی محیط زیست توسط فلز سنگین سرب، لازم است از ورود این فلز سنگین از طریق پساب های صنعتی به منابع آبی و محیط زیست جلوگیری به عمل آید تا سلامت انسان و اکوسیستم ها حفظ شود. بنابراین این پژوهش، با هدف مدیریت حذف سرب از محلول های آبی با استفاده از نانو کامپوزیت های نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن انجام شد. برای تعیین فاکتورهای مؤثر بر فرایند حذف پارامترهایی مانند مدت زمان تماس (۳، ۵، ۱۰، ۱۵، ۲۰ و ۳۰ دقیقه)، دوز جاذب (۰/۱، ۰/۲، ۰/۵ و ۱/۱ گرم)، غلظت اولیه سرب (II) (۵، ۱۰، ۲۰، ۵۰، ۱۰۰، ۲۰۰، ۳۰۰، ۸۰۰ و ۱۰۰۰ میلی گرم در لیتر)، pH (۲، ۴، ۵، ۶ و ۷) و دما (۲۵، ۴۰ و ۵۵ درجه سلسیوس) بررسی شد. بر اساس نتایج به دست آمده میزان حذف سرب توسط نانو کامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن تحت شرایط بهینه با مدت زمان تماس برابر ۲۰ دقیقه، دوز جاذب ۰/۵ گرم، غلظت اولیه ۵ ppm و دمای ۵۵ درجه سلسیوس بیشترین حذف را نشان می دهد. همچنین داده های تجربی ایزوترم های لانگمیر، فروندلیچ و دوینین _ رادشکوویچ برای فرایند جذب سطحی انجام شد و نتیجه گیری به دست آمده از فرایند جذب بیشترین تطابق را با مدل لانگمیر با ظرفیت جذبی بیشینه ۲۰۰۰ mg/g نشان داد. همچنین این پژوهش نشان داد که جذب سرب از نوع واکنش های گرماگیر است. نانو کامپوزیت مغناطیسی گرافن/NiO ساخته شده به این طریق، واجد منافذ فراوان و مساحت ویژه زیاد (۱۹۶/۵ m²/g) است که آن را به جاذب ایده آلی برای حذف یون سرب (II) از محلول آبی تبدیل می کند. حداکثر ظرفیت جذب به دست آمده از جاذب مذکور ۲۰۰۰ mg/g به دست آمد که نسبت به دیگر جاذب های معمول، مقدار بسیار بیشتری است. از مزایای این روش، می توان به ظرفیت جذب بسیار زیاد، سادگی جداسازی جاذب از محلول و مدت زمان سریع تعادل جذب (تا ۲۰ دقیقه) اشاره کرد.

واژه های کلیدی: سرب (II)، جذب سطحی، نانو کامپوزیت، نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن، محلول های آبی



۱- مقدمه

فلزات سنگین از جمله آلاینده‌های پایدار محیط‌زیستی هستند که مواجهه انسان با بعضی از آنها از طریق آب و مواد غذایی و حتی جو می‌تواند مسمومیت‌های مزمن و نیز حاد و خطرناکی را ایجاد کنند. از دهه‌های گذشته ورود آلاینده‌ها با منشأ انسانی مانند فلزات سنگین به محیط‌های دریایی، به مقدار زیادی افزایش یافته است که به‌عنوان یک خطر جدی برای حیات محیط‌های آبی به‌شمار می‌آیند (Sadeghi and Rezaie, 2013).

امروزه با افزایش فعالیت‌های صنعتی، میزان فلزات سنگین در محیط به‌ویژه در فاضلاب‌های صنعتی افزایش یافته است. برای حفاظت از انسان و محیط‌زیست، غلظت این فلزات سنگین در پساب‌ها باید به حد مجاز رسانده شود. این فلزات از طریق نفوذ پساب صنعتی در آب آشامیدنی به انسان منتقل می‌شوند. فلزات سنگین شامل سرب، جیوه، روی، نیکل، کرم و کادمیوم هستند (Khosravi et al., 2011).

سرب، یکی از فلزات سنگین با پتانسیل سمیت بالقوه برای سیستم عصبی است که می‌تواند در مسیرهای متعدد نوروشیمیایی سیستم عصبی، سمیت نفرون‌های کلیوی، اثرات مضر بر سیستم قلبی و عروقی، سرطان معده، ریه، مثانه، آلرژی نوع یک و اختلال یادگیری در کودکان ایجاد کند. با این وجود داده‌های مربوط به جهش‌زایی، آسیب کروموزومی و سرطان‌زایی ترکیبات غیرآلی سرب هنوز متناقض است (Golpayegani and Khanjani, 2012). حد مجاز تخلیه سرب در آبهای سطحی و زیرزمینی توسط سازمان حفاظت محیط‌زیست ایران ۱ میلی‌گرم در لیتر تعیین شده است (Ramezanpoor et al., 2014). آلودگی آب توسط فلزات سنگین سمی از طریق فاضلاب صنعتی یک مشکل محیط‌زیستی در سراسر جهان است (Golkhah et al., 2017).

امروزه روند پژوهش‌ها به سمت یافتن روش‌های ساده و ارزان‌قیمتی است که با کارایی برای استفاده در تصفیه فاضلاب‌های آلوده به‌ویژه در کشورهای در حال توسعه که قادر به استفاده از روش‌های پرهزینه نیستند، مناسب باشد. در بین این روش‌ها فناوری جذب‌ها بر پایه فرایند تبادل یونی و جذب فیزیکی و شیمیایی در سال‌های اخیر کاربردهای فزاینده‌ای یافته است (Ghasemi and Mafi Gholami, 2017).

جذب سطحی از لحاظ سادگی، پایداری، کارایی زیاد، بازیابی، صرفه اقتصادی و سازگاری با محیط‌زیست، فرایندی سودمند است. این گزینه بهتر از روش‌های معمول بوده و انگیزه فراوانی در توسعه جذب‌های ارزان‌قیمت ایجاد می‌کند (Sani et al., 2017). از جمله مهم‌ترین این جذب‌ها می‌توان به نانوذرات مغناطیسی اشاره کرد که برای جداسازی فلزهای سنگین تمایل به استفاده از آنها در پژوهش‌های گوناگون روند رو به گسترشی دارد که دلیل آن را می‌توان در قابلیت جداسازی ساده مغناطیسی و جمع‌آوری آن با یک آهن‌ربا دانست (Kiarostami et al., 2013).

نانوکامپوزیت‌ها موادی هستند که از یک ماده پلیمری و یک ماده تقویت‌کننده تشکیل شده‌اند. در این گونه مواد، ماده تقویت‌کننده باید در یکی از ابعاد خود در اندازه ۱ تا ۱۰۰ نانومتر باشد. نانوکامپوزیت‌ها برحسب نوع ماده تقویت‌کننده به سه نوع نانوکامپوزیت‌های زمینه‌سرامیکی، فلزی و پلیمری تقسیم می‌شوند (Abbasi et al., 2009).

نانوکامپوزیت‌های بر پایه گرافن با ویژگی‌های خاص، نویدبخش کاربردهای بسیاری در آینده است. به‌عنوان نمونه‌ای از این نانوکامپوزیت‌ها می‌توان به ترکیب گرافن با مواد پلیمری، ماتریس‌های سرامیکی و نانوذرات مغناطیسی اشاره کرد. نانوذرات مغناطیسی کاربردهای زیادی در زمینه شاره‌های مغناطیسی، ذخیره داده‌ها، کاتالیست‌ها و تصویربرداری تشدید مغناطیسی دارند (Fatemi et al., 2016).

بارات و همکاران به پژوهش توسعه تکنیک‌های جذب و الکتروشویی برای حذف آلاینده‌های آلی و غیرآلی از فاضلاب با استفاده از نانوکامپوزیت‌های مبتنی بر گرافیتی مغناطیسی/متخلخل پرداختند. نتایج نشان داد نانوکامپوزیت گرافن Fe_3O_4 /متخلخل با هدایت الکتریکی زیاد، سطح خاص فوق‌العاده زیاد قادر به حذف یون‌های Cu^{+2} ، Pb^{+2} و Cd^{+2} هستند (Bharath et al., 2017).

شارما و همکاران در پژوهشی از نانوکامپوزیت نانولوله کربنی/گرافن/اکسید آهن مغناطیسی به‌عنوان جاذب عوامل ضدباکتری برای تصفیه آب استفاده کردند. نتایج نشان داد که تصفیه آب از آلاینده‌های مختلف چالشی است که می‌تواند با استفاده از نانو ساختارهای مبتنی بر گرافن، به‌عنوان یک راه‌حل مؤثر برای ضدعفونی آب استفاده شود (Sharma et al., 2015).



تمکین برازش بهتری نسبت به مدل‌های لانگمیر و فروندلیچ دارد (Shahmohammadi Heydari, 2010).

زندگی مهری و همکاران از نانوکامپوزیت‌های دندریمری تری آزینی تثبیت شده بر نانولوله‌های هالوسایت در حذف یون‌های سرب در آب استفاده کردند. پژوهش نشان داد که نانوکامپوزیت مذکور با ظرفیت جذب تا ۷۵/۲ میلی‌گرم بر گرم قادر است یون‌های سرب را از محلول آبی حذف کند (Zandi-Mehri et al., 2022).

به‌عنوان یکی از مهم‌ترین اعضای خانواده کربن، گرافن با مقدار نظری $2630 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ دارای سطح ویژه بزرگی است (Ma et al., 2012). این امر باعث می‌شود گرافن یک ماده فوق جاذب بالقوه باشد. با این حال، گرافن متشکل از اتم‌های کربن تنها، حلالیت کمی در آب دارد، بنابراین اکسید گرافن^۲ و اکسید گرافن احیا شده^۳ با گروه‌های عاملی اکسید شده فراوان (گروه‌های اپوکسی، هیدروکسیل و کربوکسیل) روی سطوح آنها به‌عنوان جاذب استفاده می‌شوند. در سال‌های اخیر، تعدادی از اکسیدهای فلزی جدید بر سطح گرافن تثبیت شده‌اند. با الحاق نانوذرات به RGO، مشکل تجمع RGO را می‌توان به حداقل رساند یا از آن جلوگیری کرد (Wei et al., 2012). علاوه بر این، نانوکامپوزیت‌های با مساحت سطحی بزرگ، در مقایسه با نانومواد تنها، خواص برتری از خود نشان می‌دهند (Song et al., 2011).

اکسید نیکل^۴ به دلیل خواص الکتریکی، مغناطیسی و کاتالیزوری منحصر به فرد خود، یک ماده کاربردی بسیار مهم است که به‌طور گسترده‌ای در زمینه‌های مختلف از جمله مواد آند باتری، خازن الکتروشیمیایی، مواد نوری، مواد حساس به گاز و کاتالیز استفاده شده است (Channu et al., 2012).

گزارش‌های کمی در مورد کاربردهای محیط زیستی NiO برای حذف فلزات سنگین وجود دارد. نعیم و همکاران NiO را به‌عنوان یک جاذب جدید و کارآمد برای حذف سرب از محلول‌های آبی گزارش کردند (Naeem et al., 2009). بنابراین به‌منظور افزایش سطح ویژه نانوذرات NiO و افزایش عملکرد و ظرفیت جذب آن در حذف فلزات سنگین، در این پژوهش نانوذرات مذکور با گرافن

سان و همکاران با سنتز نانوکامپوزیت گرافن مغناطیسی اصلاح شده با مایعات یونی، موفق به حذف سریع یون سرب در آب شدند. نتایج نشان داد که GOMCS-ILs^۱ جاذب بسیار مناسبی برای حذف یون‌های فلزات سنگین از محلول‌های آبی هستند. علاوه بر این نشان داده شد که GOMCS-ILs می‌تواند بارها بدون اتلاف قابل ملاحظه‌ای در عملکرد و ساختار آن، استفاده شود (Sun et al., 2016).

وانگ و همکاران از نانوکامپوزیت گرافن مغناطیسی برای حذف یون‌های فلزات سنگین با قابلیت بازیافت در محلول‌های آبی استفاده کردند. نتایج این پژوهش نشان داد که ظرفیت جذب جاذب زیاد بوده و در مدت ۳۰ دقیقه جذب، به تعادل می‌رسد (Wang et al., 2011).

کومار و همکاران از کامپوزیت گرافن اکسید-نانوذرات مغناطیسی MnFe_2O_4 برای حذف مؤثر سرب و آرسنیک از آب استفاده کردند. در این پژوهش حداکثر جذب سرب (II) با استفاده از جاذب مذکور به میزان ۴۸۸ میلی‌گرم بر گرم به‌دست آمد (Kumar et al., 2014).

سواسری و همکاران پژوهشی با هدف ارزیابی نانوذرات پایدار شده با اسید اسکوربیک در حذف سرب از محلول‌های آبی به‌روش سطح پاسخ انجام دادند. بر اساس نتایج این پژوهش میزان کارایی نانوذرات آهن صفر ظرفیتی در حذف سرب از محلول‌های آبی بسیار زیاد بوده و می‌تواند به‌عنوان یک روش کارآمد در رفع آلودگی آب معرفی شود (Savasari et al., 2017).

اصغری و قربانی به پژوهش تأثیر pH و دوز بهینه در حذف سرب از محلول‌های آبی توسط زیست جاذب پلیمری پرداختند. آنها به این نتیجه رسیدند که مقدار ۲۰ میلی‌گرم از زیست جاذب بیشترین درصد جذب برای سرب با غلظت ۵۰ ppm را داشت و بهترین pH برای حذف فلز سرب در محدوده ۶ به‌دست آمد (Asghari and Ghorbani, 2017).

شاه‌محمدی حیدری به بررسی حذف سرب از محلول آبی با استفاده از جاذب‌های ارزان‌قیمت پرداختند. نتایج حاصل نشان دادند که با کاهش غلظت ورودی سرب از ۸۰ به ۱ میلی‌گرم در لیتر، کارایی جذب افزایش می‌یابد. همچنین مشخص شد ایزوترم

² Graphene Oxide (GO)

³ Reduced Graphene Oxide (RGO)

⁴ NiO

¹ Graphene Oxide and Magnetic Chitosan – Ionic Liquids (GOMCS-ILS)



میلی‌لیتر) اضافه شد و به مدت ۲۰ دقیقه در دمای ۹۰ درجه سلسیوس به صورت مغناطیسی هم زده شد. در نهایت مخلوط فوق به مدت ۱۰ دقیقه در اجاق مایکروویو خانگی (Haier, 2450 MHz, 750 W) قرار داده شد و سپس به‌طور طبیعی تا دمای اتاق خنک شد. پس از آن، رسوب سیاه صاف شده، با آب مقطر و الکل مطلق شسته شد و در دمای ۱۰۰ درجه سلسیوس به مدت ۱۲ ساعت در آن خلأ خشک شد.

۲-۴-۲- انجام آزمایشات جذب

۲-۴-۱- تعیین زمان تماس بهینه

برای تعیین زمان تماس بهینه، ۲۰ cc محلول سرب با غلظت ۱۰ ppm به‌طور جداگانه در درون ۸ ارلن ۱۰۰ میلی‌لیتری ریخته شد و pH نمونه‌ها بر روی ۵ تنظیم شد. برای تنظیم pH معادل ۵، از محلول‌های ۰/۱ مولار اسید کلریدریک و محلول ۰/۱ مولار هیدروکسید سدیم استفاده شد. بعد از تنظیم pH محلول‌ها، با استفاده از ترازو ۰/۲ گرم از جاذب برداشته شد و به ترتیب به محلول‌ها اضافه شد و در زمان‌های ۳ تا ۳۰ دقیقه (۳، ۵، ۱۰، ۱۵، ۲۰ و ۳۰) در دمای معمولی آزمایشگاه (۲۵±۲) درجه سلسیوس) بر روی شیکر با دور ۲۰۰ rpm با جاذب تماس داده شد. پس از اتمام واکنش با استفاده از یک آهن‌ربای خارجی جاذب از محلول جداسازی و میزان جذب سرب توسط دستگاه جذب اتمی اندازه‌گیری و تعیین شد.

۲-۴-۲- تعیین pH بهینه

برای تعیین pH بهینه، ۲۰ cc محلول یون سرب با غلظت ۱۰ ppm که از محلول استاندارد تهیه شده، درون ۵ ارلن ۱۰۰ میلی‌لیتری ریخته شد، سپس pH نمونه‌ها معادل ۲ تا ۷ (۲، ۴، ۵، ۶ و ۷) تنظیم شد.

مقدار ۰/۲ گرم جاذب به هر یک از نمونه‌ها اضافه شد، سپس نمونه‌ها به مدت زمان بهینه ۲۰ دقیقه به دست آمده از مراحل قبل به نمونه‌ها اضافه شد. سپس نمونه‌ها به مدت ۲۰ دقیقه در دمای معمولی آزمایشگاه (۲۵±۲) درجه سلسیوس) بر روی شیکر تماس داده شد. پس از پایان زمان واکنش توسط یک آهن‌ربا خارجی جاذب از محلول جداسازی و محلول شفاف سرریز شد و میزان جذب توسط دستگاه جذب اتمی اندازه‌گیری و pH بهینه تعیین شد.

اصلاح شده است. به این منظور نانوساختار NiO از طریق تجزیه حرارتی حالت جامد $Ni(acac)_2$ به‌عنوان پیش‌ماده (ساخته شده به روش تصعید) تهیه شد. نانوکامپوزیت مغناطیسی گرافن/NiO ساخته شده به این طریق، واجد منافذ فراوان و مساحت ویژه زیاد ($196/5 \text{ m}^2/\text{g}$) است (Soofivand and Salavati-Niasari, 2017) که آن را به جاذب ایده‌آلی برای حذف یون سرب (II) از محلول آبی تبدیل می‌کند. حداکثر ظرفیت جذب به دست آمده از جاذب مذکور 2000 mg/g به دست آمد که نسبت به جاذب‌های معمول دیگر، مقدار بسیار بیشتری است. از مزایای این روش، می‌توان به ظرفیت جذب بسیار زیاد، سادگی جداسازی جاذب از محلول و مدت زمان سریع تعادل جذب (تا ۲۰ دقیقه) اشاره کرد.

۲- مواد و روش‌ها

نانوکامپوزیت مغناطیسی گرافن/NiO توسط صوفیوند و صلواتی نیاسری و به‌طور ساخته شده، آماده و شناسایی شده از دانشگاه کاشان در دسترس قرار گرفت (Soofivand and Salavati-Niasari, 2017). روش ساخت نانوکامپوزیت مذکور مستخرج از منبع فوق به صورت زیر است:

۲-۱- تهیه نانوساختار $Ni(acac)_2$

نانوساختار $Ni(acac)_2$ به روش تصعید تهیه شد، این فرایند مشابه آنچه در پژوهش قبلی گزارش شده بود انجام شد (Soofivand and Salavati-Niasari, 2015).

۲-۲- تهیه نانوذرات NiO

در این سنتز، نانوذرات NiO با تجزیه حرارتی نانوساختارهای $Ni(acac)_2$ به‌عنوان یک پیش‌ماده که به روش تصعید تهیه شد، سنتز شدند. ۰/۱ گرم از پیش‌ماده در یک بوتله قرار داده شد و به مدت ۱۲۰ دقیقه تا دمای ۵۰۰ درجه سلسیوس گرم شد. سپس، رسوب حاصل تا دمای اتاق سرد شد.

۲-۳- تهیه نانوکامپوزیت مغناطیسی گرافن/NiO

تهیه نانوکامپوزیت مغناطیسی گرافن/NiO از طریق تکنیک پیش‌گرافنیزاسیون سنتز شد. به‌طور خلاصه، ۰/۱ گرم از نانوذرات NiO به دست آمده به سوسپانسیون سیاه گرافن (۰/۵ میلی‌گرم در



۲-۴-۳- تعیین مقدار جاذب بهینه

برای تعیین مقدار جاذب بهینه، ۲۰ cc محلول سرب با غلظت ۱۰ ppm درون ۴ عدد ارلن ۱۰۰ میلی‌لیتری ریخته شد و pH نمونه‌ها بر اساس pH بهینه به دست آمده از آزمایش قبل تهیه شد. سپس دوزهای جاذب از ۰/۱ تا ۰/۱ گرم (۰/۰۱، ۰/۰۲، ۰/۰۵ و ۰/۱) به نمونه اضافه شد. نمونه‌ها روی دستگاه شیکر با دور ۲۰۰ rpm به مدت زمان بهینه ۲۰ دقیقه (به دست آمده از آزمایش قبلی) در دمای معمولی آزمایشگاه (۲۵±۲) درجه سلسیوس) تماس داده شد. پس از اتمام زمان واکنش و جدا کردن محلول از جاذب ته‌نشین شده توسط یک آهن‌ربا، میزان جذب توسط دستگاه جذب اتمی اندازه‌گیری و دوز بهینه جاذب تعیین شد.

۲-۴-۴- تأثیر غلظت اولیه بهینه سرب

برای تعیین غلظت اولیه بهینه سرب محلول‌های سرب با غلظت‌های اولیه مختلف از ۵ تا ۱۰۰۰ ppm (۵، ۱۰، ۲۰، ۵۰، ۱۰۰، ۲۰۰، ۳۰۰، ۸۰۰، ۱۰۰۰) تهیه شد و از هر کدام ۲۰ cc درون ارلن ۱۰۰ میلی‌لیتری ریخته و pH محلول با توجه به pH بهینه به دست آمده از مراحل قبل تنظیم شد. دوز جاذب نیز با توجه به دوز جاذب بهینه به دست آمده به محلول اضافه شد و بر اساس زمان بهینه به دست آمده در دمای معمولی آزمایشگاه بر روی شیکر با دور ۲۰۰ rpm تماس داده شد و پس از اتمام زمان واکنش و جدا کردن محلول از جاذب میزان جذب توسط دستگاه جذب اتمی اندازه‌گیری و غلظت اولیه سرب تعیین شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- تعیین ویژگی‌های جاذب

همان گونه که بیان شد، جاذب استفاده شده در این پژوهش، به صورت ساخته شده و با ساختار شناسایی شده از پژوهش صوفیوند و صلواتی نیاسری از دانشگاه کاشان در دسترس قرار گرفت. مشخصات ساختار و شناسایی جاذب به شرح زیر ارائه می‌شود:

شکل ۱-a و ۱-b تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی انتشار میدانی^۱ با بزرگ‌نمایی کم و زیاد نانوکامپوزیت مغناطیسی گرافن/NiO را نشان می‌دهد. از تصویر با بزرگ‌نمایی بالا (شکل

۱-b)، مشخص است که این محصول دارای ساختارهای ورقه ماندنی است که نانوذرات NiO (۲۰ تا ۳۰ نانومتر) روی آنها قرار داده شده است (Soofivand and Salavati-Niasari, 2017).

۳-۲- اثر پارامترها

نتایج حاصل از تأثیر تغییر پارامترهای گوناگون بر محدوده جذب سرب به وسیله نانوکامپوزیت‌های نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن در شکل‌های ۲ تا ۵ نشان داده شده است. در هر مرحله از آزمایش‌ها با ثابت نگه داشتن همه پارامترها و با تغییر یک پارامتر تغییر فاکتورهای گوناگون بر بازده حذف بررسی شد. در مرحله اول غلظت سرب، مقدار نانوذرات و pH به‌عنوان فاکتورهای ثابت در نظر گرفته شد و تأثیر زمان تماس بررسی شد.

۳-۲-۱- نتایج حاصل از تأثیر زمان تماس بر حذف سرب

به منظور تعیین زمان تماس بهینه، آزمایش‌ها در غلظت اولیه از محلول سرب ۲۰ ppm و با دوز جاذب ۰/۰۲ گرم و pH بهینه معادل ۵ در دمای معمولی آزمایشگاه در زمان‌های متفاوت از ۳ تا ۳۰ دقیقه با دور ۲۰۰ rpm تماس داده شدند. در شکل ۲ مشاهده می‌شود که هر چه زمان بیشتر شود جذب هم بیشتر می‌شود. بیشترین کارایی حذف در مدت زمان ۲۰ دقیقه به میزان ۹۸/۵ درصد به دست آمد و کمترین زمان تماس ۳ دقیقه و برابر با ۹۲/۹ درصد بود. زمان بهینه برای جاذب نانوکامپوزیت‌های نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن در حذف سرب ۲۰ دقیقه بود. همچنین از این نمودار مشخص می‌شود بازده حذف با افزایش دمای محلول، افزایش می‌یابد، چون جنبش جذب سرب در ابتدا سریع بوده (تا زمان ۲۰ دقیقه) و به تدریج فرایند جذب مولکول‌های سرب با افزایش دما، زیاد می‌شود. بنابراین تعدادی از مولکول‌ها، انرژی کافی به منظور برقرار کردن یک برهم‌کنش افزایشی با جایگاه فعال در سطح جاذب را به دست می‌آورند (Shokouhi Rad, 2020).

با افزایش زمان و اشباع شدن جاذب به وسیله یون‌های سرب در زمان ۲۰ دقیقه مکان‌های فعال سطح جاذب اشباع می‌شود و میزان جذب به وسیله جاذب به بیشترین مقدار خود رسیده و ثابت می‌شود که این زمان را نقطه تعادل واکنش می‌نامند. با افزایش مدت زمان، جذب یون‌های سرب کاهش می‌یابد و رسیدن به زمان تعادل تأثیر

¹ Field Emission Scanning Electron Microscope (FESEM)



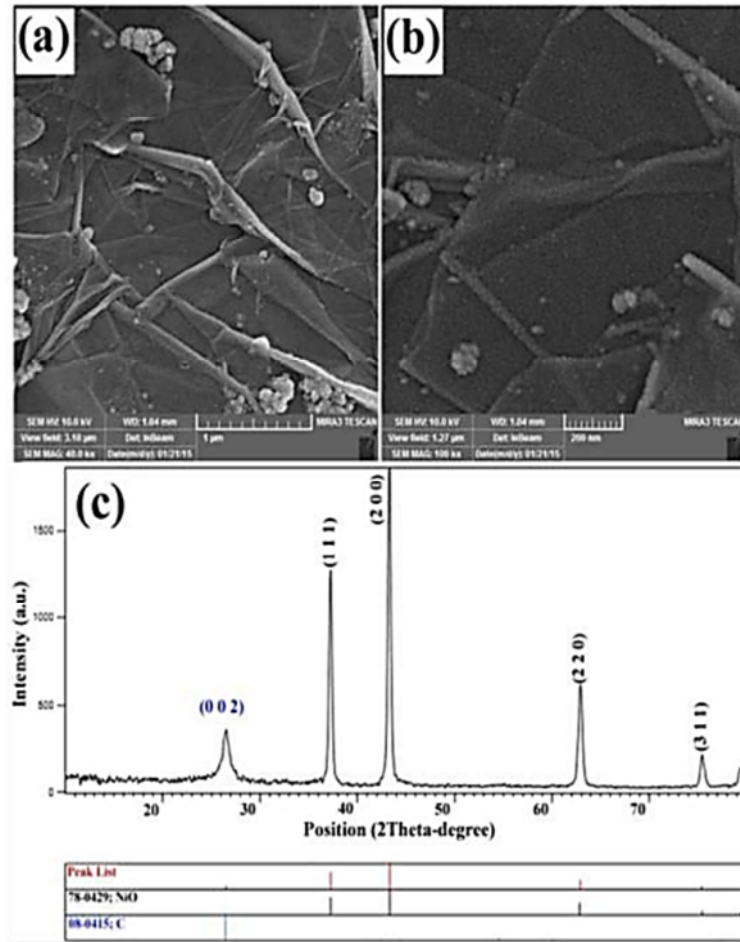


Fig. 1. a) Low, b) high magnification FESEM images, and c) XRD of the NiO/ graphene nanocomposite.

Adapted from (Soofivand and Salavati-Niasari, 2017)

شکل ۱- تصاویر FESEM (a) با بزرگ‌نمایی کم، (b) با بزرگ‌نمایی زیاد و (c) XRD نانوکامپوزیت مغناطیسی گرافن/NiO. برگرفته از (Soofivand and Salavati-Niasari, 2017)

چندانی بر میزان جذب به وسیله جاذب نخواهد گذاشت.

۲-۲-۳- نتایج حاصل از تأثیر pH بر حذف سرب

در این پژوهش، اثر pH اولیه محلول در محدوده ۲ تا ۷ بر میزان جذب یون‌های فلزی سرب بررسی شد. در این آزمایش غلظت اولیه سرب ۲۰ ppm و دوز جاذب ۰/۰۲ گرم و زمان تماس ۲۰ دقیقه (به دست آمده از آزمایش قبل)، در دمای معمولی آزمایشگاه انجام شد که در pH معادل ۴ تا ۵ مقدار جذب تقریباً ثابت بود. در شکل ۳ کارایی حذف سرب در pH های مختلف نشان داده شده است. بیشترین و کمترین کارایی حذف سرب توسط نانوجاذب نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن، به ترتیب برابر ۹۷/۹ و ۵۸/۹

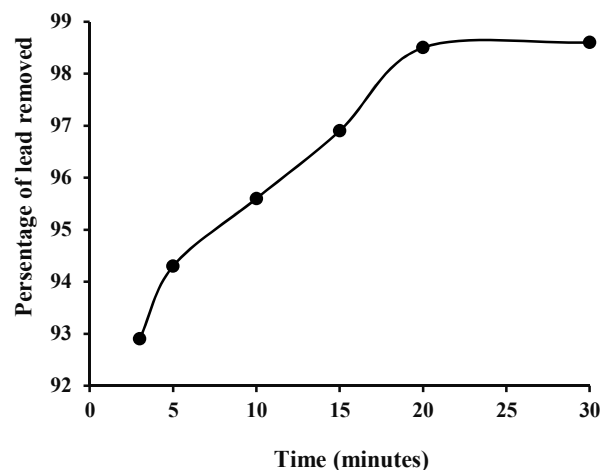


Fig. 2. The effect of time on lead removal

شکل ۲- تأثیر زمان تماس بر حذف سرب



مقدار جاذب، بازدهی حذف زیاد شده و نتیجه‌های به دست آمده نشان دهنده این موضوع می‌تواند باشد که با افزایش مقدار جاذب مساحت سطح ویژه جاذب، تعداد مکان‌های قابل دسترسی و تبدلی بر روی نانوجاذب زیاد می‌شود، بنابراین موجب افزایش کارایی فرایند جذب می‌شود (Ramezanpoor et al., 2014).

۳-۲-۴- نتایج حاصل از بررسی اثر دما

برای بررسی اثر دما بر روی میزان جذب، ۲۰ میلی‌لیتر از محلول سرب را در pH بهینه ۵ و دوز جاذب بهینه ۰/۰۵ گرم و زمان بهینه ۲۰ دقیقه در سه دمای مختلف (۲۵، ۴۰ و ۵۵ درجه سلسیوس) تماس داده شد. همان گونه که در شکل ۵ مشخص شده است مقدار جذب بر حسب دما، با افزایش دما کارایی حذف سرب توسط نانوکامپوزیت افزایش یافت. زیاد شدن کارایی حذف در اثر افزایش دما، نشان دهنده گرماگیر بودن فرایند جذب سرب توسط نانوکامپوزیت‌های نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن است.

۳-۲-۵- نتایج حاصل از ایزوترم‌های جذب

در این پژوهش از مدل‌های ایزوترم لانگمیر و فروندلیچ و دوینین -رادشکوویچ استفاده شد. ایزوترم لانگمیر بر مبنای جذب تک لایه‌ای و یکنواخت (همگن) ماده جذب شونده با انرژی یکسان بر تمام سطوح روی جاذب است. ایزوترم فروندلیچ برخلاف مدل لانگمیر، بر مبنای جذب چند لایه‌ای و ناهمگن ماده جذب شونده روی جاذب است (Naghizadeh and Momeni, 2015b). ایزوترم‌های جذب روابط ریاضی، تجربی و تحلیلی هستند که مقدار

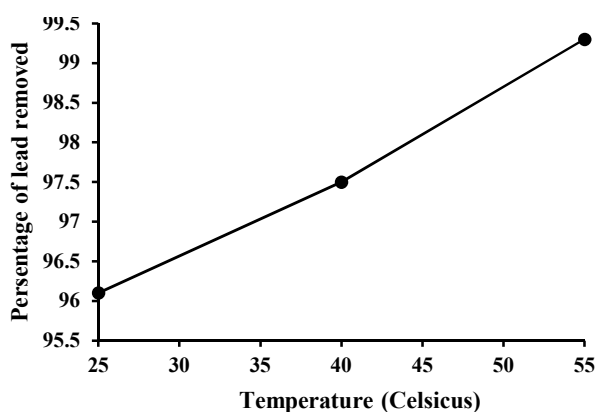


Fig. 5. The results of temperatures effect on Pb(II) removal

شکل ۵- نتایج حاصل از اثر دما بر حذف سرب (II)

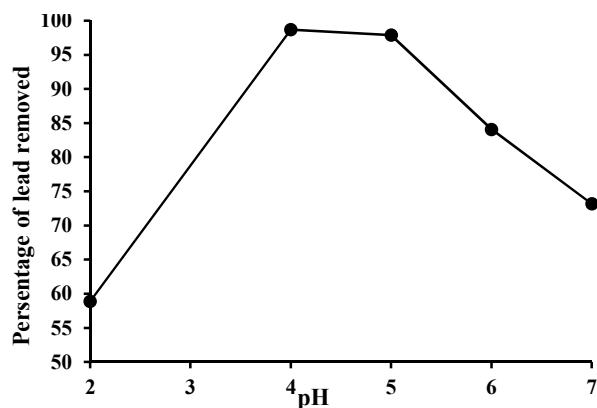


Fig. 3. The effect of pH on lead ion elimination

شکل ۳- تاثیر pH بر حذف یون سرب

درصد در pH معادل ۵ و ۲ بود. بنابراین برای ادامه آزمایش‌ها از pH معادل ۵ به عنوان pH بهینه استفاده شد. در طول انجام آزمایش‌ها در pH های بیش از ۷ انجام نشد، زیرا در pH زیاد، یون سرب به صورت هیدروکسید رسوب می‌کند و در نتیجه کاهش غلظت سرب، هم به علت جذب و هم تشکیل رسوب انجام می‌شود. اثر pH روی جذب در شکل ۲ نشان داده شده است که مطابق با آن، بازده حذف سرب با افزایش pH زیاد می‌شود (Kiarostami et al., 2013).

۳-۲-۳- نتایج حاصل از تاثیر مقدار جاذب

تأثیر مقدار میزان جاذب بر میزان جذب سرب در محدوده ۰/۰۲ تا ۰/۱ گرم در لیتر بر روی بازده حذف سرب تحت شرایط بهینه pH معادل ۵ و زمان تماس ۲۰ دقیقه در دمای معمولی آزمایشگاه در شکل ۴ ارائه شده است. همان طور که مشاهده می‌شود با افزایش

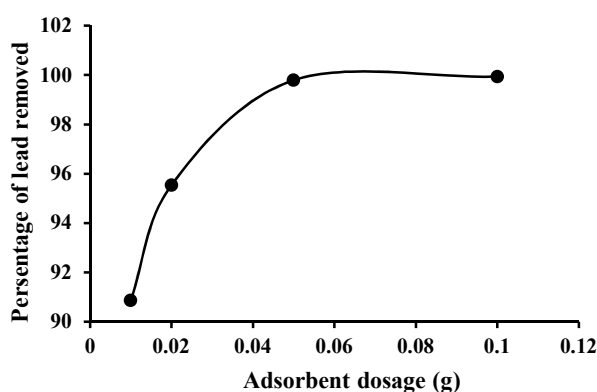


Fig. 4. The effect of adsorbent dosage on lead removal

شکل ۴- تاثیر دوز جاذب بر حذف یون سرب



جدول ۱- پارامترهای مربوط به حذف سرب توسط نانوکامپوزیت‌های نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن با توجه به مدل‌های ایزوترم لانگمیر و فروندلیچ و رادشکوویچ

Table 1. The parameters regarding lead elimination via graphene-immobilized nickel oxide composites with respect to Langmuir, Freundlich and Dubinin-Radushkevich isotherms

Adsorption model	Indicator	Obtained values
Langmuir	$q_m(\text{mg/g})$	2000
	$K_L(\text{L/mg})$	0.034
	R^2	0.983
Freundlich	$K_f(\text{mg/g})$	172.86
	$1/n$	0.407
	n	2.458
	R^2	0.962
Dubinin-Radushkevich	$q_m(\text{mg/g})$	701.997
	$E(\text{kJ/mol})$	5.00
	R^2	0.540

β ثابت انرژی آزاد جذب به ازای هر مول ماده جذب شده‌ای که از فاصله بی‌نهایت دور به سطح جاذب حرکت می‌کند برحسب mol^2/J^2 به دست می‌آید. E متوسط انرژی آزاد جذب برحسب J/mol به دست می‌آید. اگر مقدار $8 < E < 16 \text{ kJ/mol}$ باشد، نشان دهنده آن است که فرایند شیمیایی تبادل یونی رخ داده و اگر $E < 8 \text{ kJ/mol}$ باشد، نشان دهنده فرایند فیزیکی است. رخدادهای بهترین مدل برازنده را از طریق مقایسه ضرایب تعیین (R^2) می‌توان مشخص کرد (Ketabi and Mivehi, 2019, Abdollahi et al., 2021)

بر این اساس در این پژوهش، داده‌های جذب سطحی با مدل‌های ایزوترم جذب لانگمیر، فروندلیچ و دوبینین-رادشکوویچ، بررسی و ارزیابی شد و پارامترها و مشخصه‌های جذب برای هر کدام محاسبه شد. نتایج در جدول ۱ ارائه شده است. مقدار q_m یعنی بیشترین ظرفیت جذب برای جاذب برابر با 2000 mg/g به دست آمد. از طریق مقایسه ضرایب تعیین (R^2) می‌توان نتیجه‌گیری کرد که مدل برازنده ایزوترم لانگمیر شکل ۶ به علت ضریب تعیین بالایی به دست آمده ($R^2 = 0.98$) به نسبت ایزوترم‌های فروندلیچ ($R^2 = 0.96$) (شکل ۷) و دوبینین-رادشکوویچ ($R^2 = 0.54$) (شکل ۸) جذب را بهتر توصیف می‌کند. در مدل فروندلیچ $1/n < 1$ به دست آمد که نشان دهنده مطلوب بودن فرایند است.

تعادلی ماده جذب شونده به صورت شیمیایی یا فیزیکی بر روی سطوح یک جامد معین را بیان می‌کند (Vannice, 2005). مدل خطی ایزوترم جذب لانگمیر از معادله ۱ به دست می‌آید

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

که در آن

q_e مقدار یون ماده آلاینده جذب شده در زمان تعادل برحسب mg/g q_m ماکسیمم مقدار جذب سطحی برحسب mg/g K_L ثابت لانگمیر برحسب L/mg و C_e غلظت ماده جذب شونده در حالت تعادل در فاز مایع برحسب L/mg است. ثابت q_m از روی عرض از مبدا و K_L از روی شیب و رسم منحنی $\frac{C_e}{q_e}$ برحسب C_e به دست می‌آید. مدل ایزوترم فروندلیچ یک مدل تجربی است و با استفاده از معادله $\log q_e = \frac{1}{n} \log C_e + \log k_f$ بیان می‌شود. k_f و n ثابت‌های فروندلیچ هستند. در معادله فروندلیچ، k_f شدت جذب جاذب و n ظرفیت جذب است. از رسم منحنی $\log q_e$ در برابر $\log C_e$ خط راستی به دست می‌آید که $\log k_f$ عرض از مبدا و $\frac{1}{n}$ شیب است (Mohammadpour et al., 2019).

معادله دوبینین-رادشکوویچ از معادله ۲ به دست می‌آید

$$\text{Ln} q_e = \text{Ln} q_{\text{max}} - \beta \varepsilon^2 \quad (2)$$

که در آن



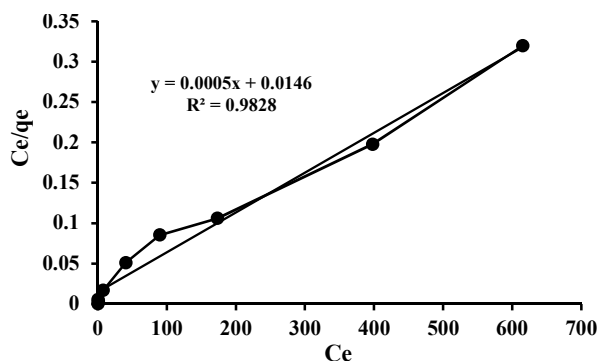


Fig. 6. Langmuir isotherm graph for lead adsorption

شکل ۶- برازش ایزوترم لانگمیر جذب سرب توسط جاذب

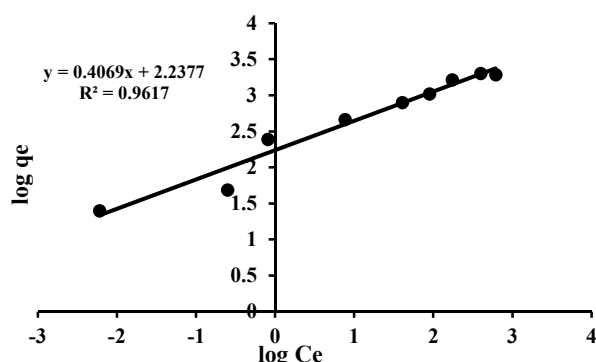


Fig. 7. Freundlich isotherm graph for lead adsorption

شکل ۷- برازش ایزوترم فروندلیچ جذب سرب توسط جاذب

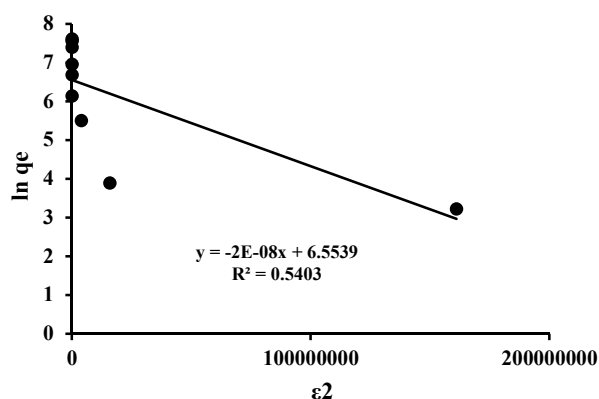


Fig. 8. Dubinin-Radushkevich isotherm graph for lead adsorption

شکل ۸- برازش ایزوترم رادشکوویچ جذب سرب توسط جاذب

حال، اگر مقدار ΔG منفی به دست آمد، فرایند جذب خودبه خود و مطلوب در نظر گرفته می شود. معادلات زیر روش محاسبه را نشان می دهند (Yang et al., 2013)

با توجه به موارد فوق و همچنین مقدار مشخصه رگرسیون خطی R^2 که تعیین کننده میزان تبعیت داده ها با الگوهای هر سه ایزوترم بیان شده، است. می توان این گونه نتیجه گرفت که واکنش جذب یون سرب (II) توسط نانوذرات مغناطیسی نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن با مدل ایزوترم لانگمیر قابل توصیف است. مقدار پارامترهای $1/n$ از مدل فروندلیچ و همچنین E از ایزوترم دوینین-رادشکوویچ نیز می توانند اطلاعات مهمی را در خصوص مکانیسم جذب ارائه کند. با توجه به این مقدار جذب سطحی در شرایط این پژوهش، مطلوب بوده و پیوند نسبتاً قوی بین جاذب و مولکول جذب شونده ایجاد شده است (Bascetin et al., 2003).

ضمن اینکه مقدار انرژی $5/00 \text{ kJ/mol}$ نشان می دهد که فرایند غالب، فیزیکی است (Dada et al., 2012). مقدار q_m یعنی بیشترین ظرفیت جذب برای جاذب برابر با 2000 mg/g به دست آمده است که جذب فوق العاده خوبی را نشان می دهد. ایزوترم لانگمیر به علت ضریب تعیین بالای به دست آمده ($R^2=0/98$) نسبت به ایزوترم های فروندلیچ ($R^2=0/96$) و دوینین-رادشکوویچ ($R^2=0/54$) جذب سرب را بر روی نانوکامپوزیت گرافنی مغناطیسی بهتر نشان می دهد. بنابراین نتیجه می شود جذب سرب توسط نانوکامپوزیت های نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن در مکان های همگن رخ داده است که با نتایج پژوهش رضایی کلاتتری و همکاران که جذب و جداسازی مغناطیسی سرب از فاضلاب سنتتیک با استفاده از کامپوزیت نانواکسید آهن و کربن بررسی شدند (Rezaei Kalantary et al., 2014) و همچنین با نتایج کیارستمی و همکاران که کاربرد کامپوزیت $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-CuO}$ برای حذف یون های سرب از محلول های آبی را بررسی کردند هم خوانی دارد (Kiarostami et al., 2013).

۳-۳- بررسی ترمودینامیکی جذب

به منظور ارزیابی اثر دماهای مختلف بر جذب سرب (II) توسط نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن، مؤلفه های ترمودینامیکی (یعنی تغییر در انرژی آزاد گیبس (ΔG), آنتالپی (ΔH) و آنتروپی (ΔS)) در سه دمای 25 ، 40 و 55 درجه سلسیوس) بررسی شد. اگر هم زمان با افزایش دما قابلیت جذب (q_e) افزایش یابد، فرایند گرماگیر خواهد بود و بالعکس. در عین



جدول ۲- متغیرهای ترمودینامیکی برای جذب سطحی سرب (II)

Table 2. Thermodynamical variables for the adsorption of Pb(II)

T (K)	ΔG (KJ/mol)	ΔH (kJ/mol)	ΔS (kJ /mol K)
298	-11.927		
313	-13.722	108.510	0.400
328	-24.197		

جدول ۳- مقایسه حداکثر قابلیت جذب یون‌های سرب (II) با استفاده از جاذب‌های مختلف

Table 3. Comparison of max adsorption capabilities of Pb(II) ions utilizing different adsorbents

Adsorbent	Maximum adsorption capacity q_m (mg/g)	Reference
Fe ₂ O ₃ -CuO composite	333	(Kiarostami et al., 2013)
ZnO/MMT	88.50	(Sani et al., 2017)
Chitosan/magnetite composite bead	63.33	(Zhou et al., 2014)
Magnetic graphene-ionic liquids	84.86	(Sun et al., 2016)
Graphene oxide nanoparticles	36.2	(Naghizadeh and Momeni, 2015a)
Magnetic bentonite	80.40	(Zou et al., 2019)
Amino-functionalized Fe ₃ O ₄	40.10	(Tan et al., 2012)
Magnetic NiO/graphene nanocomposite	2000	Current study

می‌دهند که عملیات جذب ذاتاً گرماگیر است. مقدار ΔH اطلاعات جالبی در مورد نوع فرایند جذب سطحی ارائه می‌دهد. با توجه به اینکه مقدار ΔH برای جذب سطحی سرب (II) بر نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن، $108/51$ kJ/mol به دست آمده است (جدول ۲)، نشان‌دهنده وقوع مقداری جذب شیمیایی است (Kumar et al., 2013).

در همین حال، مقدار مثبت تغییر آنتروپی (ΔS) افزایش بی‌نظمی را در سطح مشترک جامد/مایع هنگام جذب سطحی سرب (II) نشان می‌دهد. پس مقدار ΔG منفی به دست آمده، فعالیت خودبه‌خود و پایدار فرایند جذب سطحی را در محدوده دمایی بررسی شده نشان می‌دهد.

۳-۴- مقایسه نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن با نانوجاذب‌های دیگر

در جدول ۳ توانایی جذب یون سرب (II) توسط نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن ($0/05$ گرم با مساحت سطحی $196/5$ m²/g) با جاذب‌های مختلف مقایسه شده است.

$$\ln(K_d) = \ln\left(\frac{q_e}{C_e}\right) = \frac{-\Delta G}{RT} \quad (3)$$

$$\ln(K_d) = \frac{-\Delta H}{RT} + \frac{\Delta S}{R} \quad (4)$$

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (5)$$

که در آنها

K_d (L/g) نشانگر ثابت تعادل ترمودینامیکی، q_e (mg/g) ظرفیت جذب سرب (II)، C_e غلظت تعادلی سرب (II) بر حسب (mg/L)، T دمای محلول بر حسب درجه سلسیوس و R ثابت جهانی گازها است. ($8/314$ J/mol.K)

شکل ۹ نمودار وانت هوف^۱ $\ln K_d$ در مقابل $1/T$ را به صورت یک خط مستقیم با R^2 مناسب برای غلظت‌های مختلف یون سرب (II) نشان می‌دهد. تغییرات آنتالپی و آنتروپی را می‌توان به ترتیب از مقدار شیب و عرض از مبدأ نمودار وانت هوف اندازه‌گیری کرد. مقدار ΔG ، ΔS و ΔH محاسبه شده برای حذف سرب (II) توسط نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن در دماهای مختلف در جدول ۲ آمده است. مقدار مثبت ΔH نشان

¹ Van't Hoff



فروندلیج و دوینین- رادشکوویچ بررسی و مشخص شد که مدل لانگمیر با ضریب تعیین $R^2 = ۹۹/۳$ برازش بهتری نسبت به مدل های ایزوترمی دیگر دارد. نتایج حاصل از این پژوهش نشان داد که نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن قابلیت بسیار زیادی برای حذف یون سرب (II) از محلول های آبی داشته و قابلیت جداسازی ساده آن با یک آهن ربای خارجی نسبت به جاذب های معمولی مزیت منحصر به فردی به حساب می آید.

با توجه به ظرفیت جذب زیاد و قابل توجه ($q_m = ۲۰۰۰ \text{ mg/g}$) نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن در حذف یون سرب (II) نسبت به بسیاری از جاذب های بررسی شده توسط پژوهشگران دیگر، می توان این جاذب را به عنوان روشی کارآمد در حذف یون سرب (II) از محیط های آبی در نظر گرفت.

۵- قدردانی

نویسندگان، قدردانی خود را از دانشگاه آزاد اسلامی واحد بندرعباس که تأمین هزینه ها و تجهیزات این پروژه را بر عهده داشته و همچنین سرکار خانم دکتر صوفیوند که در تهیه و در دسترس قرار دادن نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن مساعدت کردند، اعلام می دارند.

References

- Abbasi, H., Dehghani, A., Rostami, M. & Mirahmadi, S. 2009. Investigation of the effects of nanocomposites in different industries. *National Conference of Chemical Engineering*. Tehran, Iran. (In Persian)
- Abdollahi, R., Sohrabi, N. & Mohammadi, R. 2021. Synthesis and application of activated carbon magnetic nanocomposite modified by calcium oxide for removal of malachite green dye from aqueous solution: isotherm and kinetic study of adsorption process. *Journal of Water and Wastewater*, 32(4), 47-66. (In Persian)
- Asghari, A. E. & Ghorbani, M. 2017. Effect of pH and optimal dosage on the removal of lead from aqueous solution by polymeric biosorbent. *4th Conference of Separation Science and Engineering*. Tehran, Iran. (In Persian)
- Bascetin, E., Haznedaroglu, H. & Erkol, A. Y. 2003. The adsorption behavior of cesium on silica gel. *Applied Radiation and Isotopes*, 59, 5-9.
- Bharath, G., Alhseinat, E., Ponpandian, N., Khan, M. A., Siddiqui, M. R., Ahmed, F., et al. 2017. Development of adsorption and electrosorption techniques for removal of organic and inorganic pollutants from wastewater using novel magnetite/porous graphene-based nanocomposites. *Separation and Purification Technology*, 188, 206-218.
- Channu, V. R., Holze, R. & Rambabu, B. 2012. Synthesis and characterization of NiO nanoparticles for electrochemical applications. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 414, 204-208.

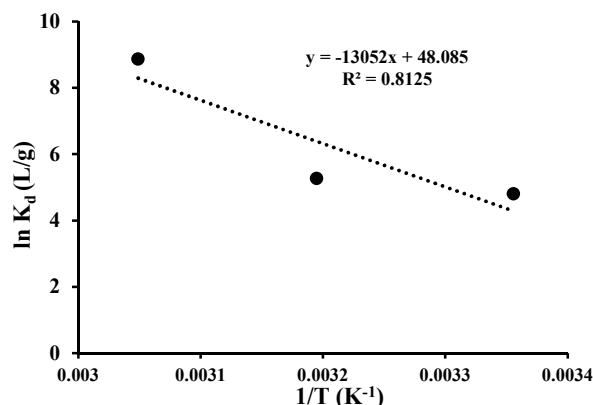


Fig. 9. Plot of $\ln K_d$ vs. $1/T$ for the Pb(II) adsorption
شکل ۹- نمودار $\ln K_d$ در مقابل $1/T$ برای جذب سطحی سرب (II)

۴- نتیجه گیری

در این پژوهش، مشخصه های تأثیرگذار در حذف یون سرب (II) شامل pH، دما، زمان تماس، مقدار جاذب و ایزوترم های جذب، بهینه و بررسی شدند.

حداکثر ظرفیت جذب یون های سرب بر روی نانوکامپوزیت نیکل اکسید تثبیت شده بر گرافن در pH معادل ۵ و مقدار بهینه جاذب ۰/۰۵ گرم و زمان ۲۰ دقیقه و دمای ۵۵ درجه سلسیوس به دست آمد. معادله تعادلی فرایند با مدل های ایزوترمی لانگمیر و



- Dada, A. O., Olalekan, A., Olatunya, A. & Dada, O. 2012. Langmuir, Freundlich, Temkin and Dubinin–Radushkevich isotherms studies of equilibrium sorption of Zn^{2+} unto phosphoric acid modified rice husk. *Journal of Applied Chemistry*, 3, 38-45.
- Fatemi, M., Niamadi Mahmoodabadi, A., Compani, A., Arabi, H. & Khorsandzak, A. 2016. Investigating the structural properties of G- Fe_3O_4 magnetic nanocomposites and Fe_3O_4 nanoparticles synthesized by solvothermal method. *Second International Conference in New Research on Chemistry and Chemical Engineering*. Tehran, Iran. (In Persian)
- Ghasemi, S. & Mafi Gholami, R. 2017. Kinetic and isotherm study of lead adsorption from synthetic effluent by eucalyptus sawdust. *Journal of Water and Wastewater*, 28(6), 21-29. (In Persian)
- Golkhah, S., Zavvar Mousavi, H., Shirkhanloo, H. & Khaligh, A. 2017. Removal of Pb(II) and Cu(II) ions from aqueous solutions by cadmium sulfide nanoparticles. *International Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 13(2), 105-117.
- Golpayegani, A. & Khanjani, N. 2012. Occupational and environmental exposure to lead in Iran: a systematic review. *Health and Development Journal*, 1, 74-89. (In Persian)
- Ketabi, H. & Mivehi, L. 2019. Equilibrium and kinetics investigations on sorption of C. I. basic red 14 onto low-cost feldspar. *Amirkabir Journal of Civil Engineering*, 51(3), 165-168.
- Khosravi, A., Esmhosseini, M., Khezri, S. & Habibimehr, M. 2011. Removal of divalent heavy metals (Co^{2+} , Pb^{2+} , Zn^{2+} , Cd^{2+}) and ammonium (NH_4^+) from waste water using natural Western Azarbaijan Zeolite. *Applied Chemistry*, 6, 61-74. (In Persian)
- Kiarostami, V., Ahmadi, J., Saremi, E. & Hosseinpour, M. 2013. Removal of Pb (II) ions from aqueous solutions using Fe_2O_3 -CUO magnetic nanocomposite. *Journal of Applied Researches in Chemistry (JARC)*, 7(3), 83-94. (In Persian)
- Kumar, M., Tamilarasan, R. & Sivakumar, V. 2013. Adsorption of Victoria blue by carbon/Ba/alginate beads: kinetics, thermodynamics and isotherm studies. *Carbohydrate Polymers*, 98, 505-513.
- Kumar, S., Nair, R. R., Pillai, P. B., Gupta, S. N., Iyengar, M. A. & Sood, A. K. 2014. Graphene oxide-Mn Fe_2O_4 magnetic nanohybrids for efficient removal of lead and arsenic from water. *ACS Applied Materials and Interfaces*, 6(20), 17426-17436.
- Ma, H. L., Zhang, Y., Hu, Q. H., Yan, D., Yu, Z. Z. & Zhai, M. 2012. Chemical reduction and removal of Cr (VI) from acidic aqueous solution by ethylenediamine-reduced graphene oxide. *Journal of Materials Chemistry*, 22, 5914-5916.
- Mohammadpour, M., Afrous, A., Babazadeh, H. & Pazira, E. 2019. Adsorption isotherm of lead heavy metal from aqueous environment by bioadsorbents. *Iranian Water Research Journal*, 13, 149-157. (In Persian)
- Naeem, A., Saddique, M., Mustafa, S., Kim, Y. & Dilara, B. 2009. Cation exchange removal of Pb from aqueous solution by sorption onto NiO. *Journal of Hazardous Materials*, 168, 364-368.
- Naghizadeh, A. & Momeni, F. 2015a. Evaluation of graphen oxide nanoparticles efficacy in chromium and lead removal from aqueous solutions. *Journal of Birjand University of Medical Science*, 22, 27-38. (In Persian)
- Naghizadeh, A. L. I. & Momeni, F. 2015b. Evaluation of graphen oxide nanoparticles efficacy in chromium and lead removal from aqueous solutions. *Journal of Birjand University of Medical Sciences*, 22, 27-38. (In Persian)
- Ramezanpoor, A., Farrokhian Firouzi, A., Sayyad, G. & Kiyasat, A. 2014. Investigation of Pb(II) removal from aqueous solutions using modified nano zero-valent iron particles. *Journal of Water and Wastewater*, 25(2), 68-76. (In Persian)
- Rezaei Kalantary, R., Jonidi Jafari, A., Kakavandi, B., Nasseri, S., Ameri, A. & Azari, A. L. I. 2014. Adsorption and magnetic separation of lead from synthetic wastewater using carbon/iron oxide nanoparticles composite. *Journal of Mazandaran University of Medical Sciences*, 24, 172-183. (In Persian)
- Sadeghi, P. & Rezaie, H. 2013. Investigation of the biological absorption of heavy metals from aqueous solutions by Brown Algae. *The National Conference on Management of Natural Resources*, 1-5. Golestan, Iran. (In Persian)



- Sani, H. A., Ahmad, M. B., Hussein, M. Z., Ibrahim, N. A., Musa, A. & Saleh, T. A. 2017. Nanocomposite of ZnO with montmorillonite for removal of lead and copper ions from aqueous solutions. *Process Safety and Environmental Protection*, 109, 97-105.
- Savasari, M., Emadi, S. M., Bahmanyar, M. A. & Biparva, P. 2017. Assessment of Pb (II) removal from aqueous solutions by ascorbic acid-stabilized zero-valent iron nanoparticles using response surface methodology (RSM). *Journal of Water and Wastewater*, 28(3), 46-54. (In Persian)
- Shahmohammadi Heydari, Z. 2010. Lead removal from aqueous solutions using low-cost adsorbents. *Journal of Water and Wastewater*, 21(3), 45-50. (In Persian)
- Sharma, V., McDonald, T., Kim, H. & Garg, V. 2015. Magnetic graphene-carbon nanotube iron nanocomposites as adsorbents and antibacterial agents for water purification. *Advances in Colloid and Interface Science*, 225.
- Shokouhi Rad, A. 2020. The synthesis of polyaniline/Fe₃O₄ to removal of lead ions from water and wastewater samples. *Journal of Water and Wastewater*, 31(5), 169-183. (In Persian)
- Song, H., Zhang, L., He, C., Qu, Y., Tian, Y. & Lv, Y. 2011. Graphene sheets decorated with SnO₂ nanoparticles: in situ synthesis and highly efficient materials for cataluminescence gas sensors. *Journal of Materials Chemistry*, 21, 5972-5977.
- Soofivand, F. & Salavati-Niasari, M. 2015. Co₃O₄/graphene nanocomposite: pre-graphenization synthesis and photocatalytic investigation of various magnetic nanostructures. *RSC Advances*, 5, 64346-64353.
- Soofivand, F. & Salavati-Niasari, M. 2017. Step synthesis and photocatalytic activity of NiO/graphene nanocomposite under UV and visible light as an effective photocatalyst. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 337, 44-53.
- Sun, W., Li, L., Luo, C. & Fan, L. 2016. Synthesis of magnetic graphene nanocomposites decorated with ionic liquids for fast lead ion removal. *International Journal of Biological Macromolecules*, 85, 246-251.
- Tan, Y., Chen, M. & Hao, Y. 2012. High efficient removal of Pb (II) by amino-functionalized Fe₃O₄ magnetic nano-particles. *Chemical Engineering Journal*, 191, 104-111.
- Vannice, M. 2005. *Kinetics of Catalytic Reactions*. 1-240. Springer New York.
- Wang, C., Feng, C., Gao, Y., Ma, X., Wu, Q. & Wang, Z. 2011. Preparation of a graphene-based magnetic nanocomposite for the removal of an organic dye from aqueous solution. *Chemical Engineering Journal*, 173, 92-97.
- Wei, Y., Gao, C., Meng, F. L., Li, H. H., Wang, L., & Liu, J. H. 2012. SnO₂/reduced graphene oxide nanocomposite for the simultaneous electrochemical detection of cadmium (II), lead (II), copper (II), and mercury (II): an interesting favorable mutual interference. *The Journal of Physical Chemistry C*, 116, 1034-1041.
- Yang, Y., Xie, Y., Pang, L., Li, M., Song, X., Wen, J., et al. 2013. Preparation of reduced graphene oxide/poly (acrylamide) nanocomposite and its adsorption of Pb (II) and methylene blue. *Langmuir*, 29, 10727-10736.
- Zandi-Mehri, E., Taghavi, L., Moeinpour, F., Khosravi, I. & Ghasemi, S. 2022. Designing of hydroxyl terminated triazine-based dendritic polymer/ halloysite nanotube as an efficient nano-adsorbent for the rapid removal of Pb(II) from aqueous media. *Journal of Molecular Liquids*, 360, 119407.
- Zhou, Y., Fu, S., Zhang, L., Zhan, H. & Levit, M. V. 2014. Use of carboxylated cellulose nanofibrils-filled magnetic chitosan hydrogel beads as adsorbents for Pb (II). *Carbohydrate Polymers*, 101, 75-82.
- Zou, C., Jiang, W., Liang, J., Sun, X. & Guan, Y. 2019. Removal of Pb (II) from aqueous solutions by adsorption on magnetic bentonite. *Environmental Science and Pollution Research*, 26, 1315-1322.



This work is licensed under a [Creative Commons Attribution 4.0 International License](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/)

