

تهیه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ آلاییده با یون مس (II) به عنوان جاذب کارآمد برای حذف

رنگ آنیونی از محلول آبی

فاطمه آبسالان، مریم موحدی*، ناهید رسولی

دانشکده شیمی، دانشگاه پیام نور، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۹۷/۰۴/۱۳ تاریخ تصحیح: ۹۷/۰۹/۰۴ تاریخ پذیرش: ۹۷/۰۹/۱۲

چکیده

در این پژوهش ZnO/ZnAl₂O₄ آلاییده با یون مس (II) تهیه شد. نمونه توسط روش‌های دستگاهی پراش اشعه ایکس (XRD)، طیف سنج مادون قرمز تبدیل فوریه (FT-IR)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مجهز به اسپکتروسکوپی پراکندگی انرژی اشعه ایکس (EDX) و اسپکتروسکوپی نشری پلاسمای جفت شده القائی (ICP) شناسائی شد. کارائی نمونه به عنوان جاذب برای حذف رنگ‌های آنیونی و کاتیونی متیل اورنژ، کنگورد، متیلن بلو و مخلوط رنگ‌های متیلن بلو و متیل اورنژ از محلول آبی بررسی شد. علاوه بر این کارائی این نمونه با نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ مقایسه شد. مدل‌های سینتیکی شبه مرتبه‌ی اول و شبه مرتبه‌ی دوم امتحان شد. نتایج نشان داد که نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ آلاییده با یون مس (II) یک انتخاب امیدبخش برای حذف رنگ آنیونی متیل اورنژ از پساب است.

کلمات کلیدی: جاذب، حذف رنگ آنیونی، ZnO/ZnAl₂O₄ آلاییده با یون مس (II).

۱- مقدمه

مهمترین آلودگی آب‌ها عمدتاً به علت وجود آلاینده‌های سمی از قبیل فلزات سنگین و رنگ‌های آلی است. در سال‌های اخیر با توجه به افزایش سریع صنایع در جهان، تخلیه‌ی عظیم فاضلاب‌ها موجب اثرات نامطلوب در اکوسیستم و سلامت انسان شده است. بسیاری از رنگ‌های کاتیونی و آنیونی آلی بسیار پایدارند و بنابراین به راحتی قابل تجزیه نیستند. دفع این رنگ‌های خطرناک بدون هیچگونه پیش درمان می‌تواند اثرات مضر و ناسازگار بر محیط زیست، انسان و حیوانات داشته باشد. اکثر رنگ‌ها و محصولات تخریب شده‌ی آن‌ها مانند آمین‌ها بسیار سمی، سرطان‌زا و موتاژنیک هستند. استفاده از جاذب برای تصفیه‌ی پساب‌های صنعتی و کاهش آلاینده‌ها یکی از شیوه‌های تصفیه فاضلاب است. امروزه مواد برپایه کربنی، فلزات نجیب، مخلوط اکسیدهای فلزی، اسپینل فریت‌ها، کامپوزیت‌های پلیمری و انواع خاک‌های معدنی به عنوان جاذب گزارش شده است [۱-۱۲].

هیدروکسیدهای دوگانه لایه‌ای (LDH) دسته‌ای از ترکیبات شبه هیدروکسیدی است که به عنوان رس‌های آنیونی شناخته شده‌اند که در آن کاتیون‌های فلزی با اعداد اکسایش (+۲) و (+۳) و نیز آنیون‌های بین لایه‌ای برای به تعادل رساندن بار کلی ساختار وجود دارد. هیدروکسیدهای دوگانه لایه‌ای با فرمول عمومی $[M_{1-x}^{2+} M_x^{3+} (OH)_2]^{x+} (A^{n-})_{x/n} \cdot nH_2O$ نشان داده می‌شود که در آن M^{2+} و M^{3+} به ترتیب کاتیون‌های دو ظرفیتی و سه ظرفیتی، X نسبت مولی $M^{3+}/(M^{2+}+M^{3+})$ و A آنیون بین لایه‌ای با ظرفیت n است. مولکول‌های آب در طی فرآیند سنتز عمدتاً بین لایه‌های هیدروکسید قرار می‌گیرند غالباً این دسته از ترکیبات برای حذف آلاینده از پساب از مکانیسم جذب و تبادل یونی استفاده می‌کنند. جذب آلاینده توسط این ترکیبات کارآمد، مقرون به صرفه و غیر سمی است. تا کنون کامپوزیت‌های متنوعی از ترکیبات هیدروکسیدهای دوگانه لایه‌ای گزارش شده است که بهبود قابل توجهی در عملکرد جذب نشان می‌دهند [۱۳-۱۵]. مکانیسم جذب انواع مختلف آلاینده بر روی LDH‌های هیبریدی غالباً به نوع مواد هیبرید شده (جاذب) و آلاینده (جذب شونده) بستگی دارد. کلسینه کردن این خاک‌های آنیونی در دمای بین $250-750$ °C منجر به تشکیل اکسیدهای فلزی مخلوط با خواص ویژه می‌شود [۱۶-۱۸]. در این تحقیق نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ و نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II) از هیدروکسید دوگانه لایه‌ای ZnAl-LDH تهیه و توسط روش‌های دستگاهی شناسائی شد. کارائی نمونه‌های جاذب برای حذف آلاینده‌های رنگی از قبیل رنگ کاتیونی متیلن بلو، رنگ‌های آنیونی متیل اورنژ و کنگورد و مخلوط رنگ‌های کاتیونی و آنیونی متیلن بلو و متیل اورنژ از محلول‌هایشان بررسی شد.

۲- بخش تجربی

۲-۱- مواد شیمیایی و دستگاه‌ها

در این تحقیق مواد شیمیایی متیل اورانژ، متیلن بلو، کنگورد، روی نیتрат ۶ آبه، آلومینیم نیترات ۹ آبه، مس نیترات ۶ آبه و سدیم هیدرواکسید از شرکت مرک خریداری شد. برای شناسائی محصول از دستگاه پراش اشعه ایکس (XRD) مدل X pert Mpd، طیف‌سنج مادون قرمز تبدیل فوریه مدل JASCO-4200، میکروسکوپ الکترونی روبشی مجهز به اسپکترومتر پراکندگی انرژی اشعه‌ی ایکس (SEM-EDX) مدل TESCAN و دستگاه اسپکتروفوتومتر جذبی مرئی-ماوراءبنفش مدل Shimadzu-2550 استفاده شد.

۲-۲- روش سنتز جاذب

محلولی از نمک‌های روی نیترات شش آبه و آلومینیم نیترات نه آبه با نسبت مولی روی به آلومینیم ۳ به ۱ تهیه شد. سپس pH محلول توسط محلول سدیم هیدرواکسید ۴M حدود ۸/۵ تنظیم شد. سوسپانسیون حاصل با سرعت مناسب توسط یک همزن مغناطیسی به مدت ۲۴ ساعت در دمای 65 °C بهمزده شد. بعد از آن رسوب حاصل جمع آوری و با آب دیونیزه چندین بار شستشو شد تا pH آب شستشو تقریباً خنثی گردد. سپس رسوب حاصل در یک آون با دمای 80 °C خشک شد [۱۹]. در این

مرحله نمونه‌ی هیدروکسید دوگانه لایه‌ای ZnAl-LDH تهیه شد. در مرحله بعدی ۰/۴g مس نترات ۶ آبه $(\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O})$ به ۲۰ mL آب دیونیزه اضافه شد. سپس ۱/۶g از نمونه‌ی ZnAl-LDH تهیه شده به آن اضافه و به مدت ۲ ساعت توسط همزن مغناطیسی همزده شد. رسوب حاصل در آن با دمای 60°C خشک و در کوره با دمای 500°C کلسینه شد. همچنین نمونه‌ی $\text{ZnO}/\text{ZnAl}_2\text{O}_4$ از کلسینه کردن نمونه‌ی ZnAl-LDH در دمای 500°C تهیه شد.

۲-۳- روش حذف آلاینده رنگی از محلول آبی

به منظور بررسی کارایی نمونه‌های تهیه شده به عنوان جاذب محلول‌های رنگ کنگورد، متیلن بلو و متیل اورنژ و محلول مخلوط دوتائی رنگ متیلن بلو و متیل اورنژ به عنوان مدل آلاینده محیط زیست استفاده شد. در این آزمایش ۲۰۰mL از محلول رنگ با غلظت 10 mgL^{-1} در یک بشر ۲۵۰mL ریخته شد. به منظور ایجاد محیط تاریک اطراف بشر با فویل آلومینیومی پوشانده شد. سپس مقدار ۰/۱g نمونه جاذب تهیه شده به محلول اضافه و مخلوط توسط یک همزن مغناطیسی بهمزده شد. زمان نمونه‌برداری ۰، ۱۵، ۳۰، ۴۵، ۶۰، ۹۰، ۱۲۰ و ۱۸۰ دقیقه انتخاب شد. محلول نمونه برداری سانتریفیوژ و طیف جذبی آن توسط اسپکتروفوتومتر UV-Vis ثبت شد. درصد حذف آلاینده توسط رابطه‌ی (۱) محاسبه شد.

$$\text{Dye removal} = \frac{(C_0 - C_t)}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

که در رابطه‌ی (۱)، C_0 غلظت اولیه‌ی محلول رنگ و C_t غلظت محلول رنگ در زمان t است. برای محاسبه‌ی q_t (ظرفیت جذب جاذب) از رابطه‌ی (۲) استفاده شد.

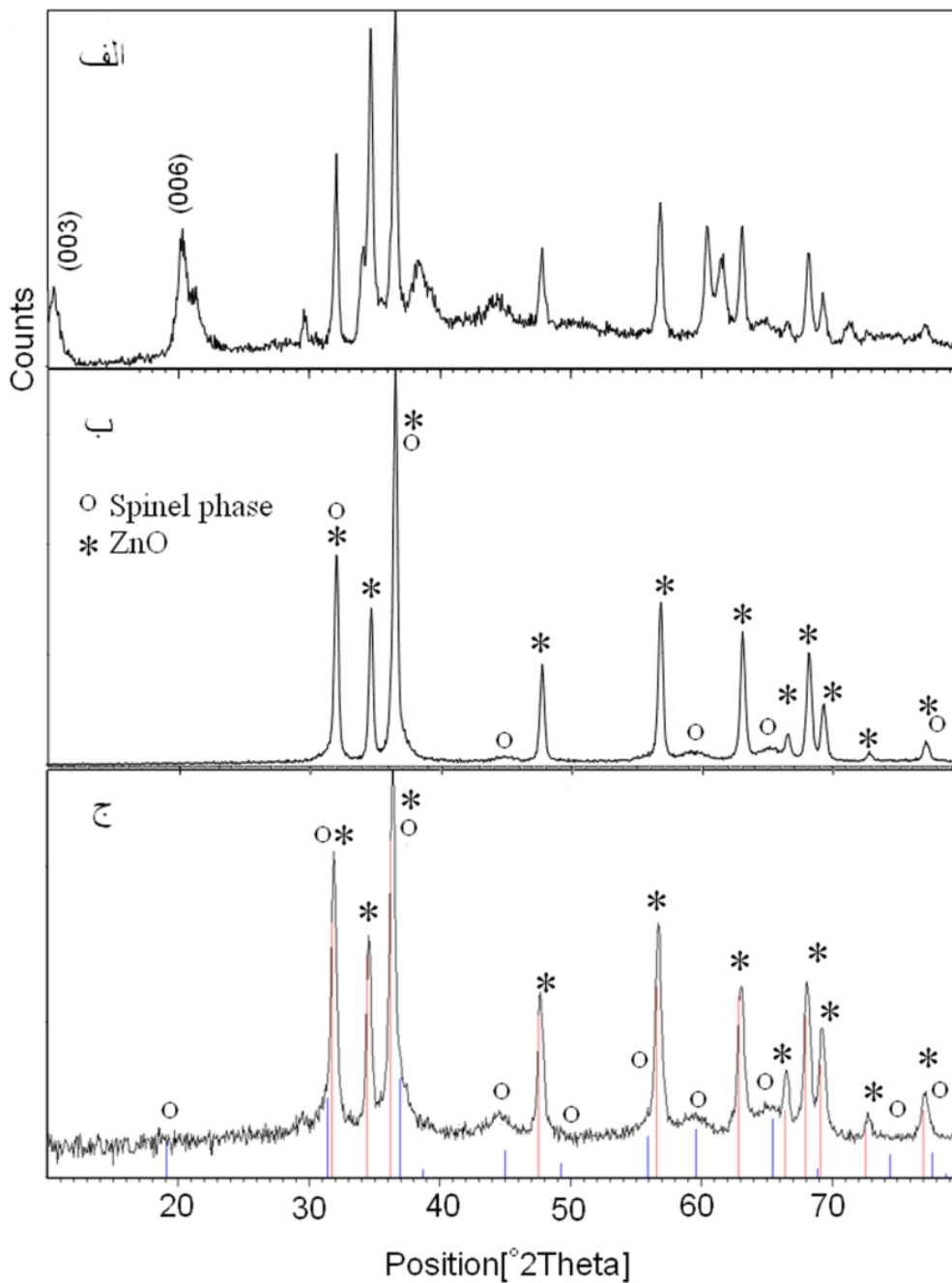
$$q_t = \frac{(C_0 - C_t)V}{m} \quad (2)$$

که در رابطه‌ی (۲)، q_t (mgg^{-1}) ظرفیت جذب جاذب، C_0 (mgL^{-1}) غلظت اولیه‌ی رنگ، C_t (mgL^{-1}) غلظت محلول رنگ در زمان t ، V (L) حجم محلول آلاینده و m (g) وزن جاذب است. در سری آزمایش دیگر ۲۰۰mL محلول مخلوط رنگ‌های متیلن بلو و متیل اورنژ با غلظت 5mgL^{-1} نسبت به هریک از اجزاء تهیه و به عنوان مدل آلاینده رنگی استفاده شد. سپس با استفاده از رابطه‌ی (۱) و (۲) درصد حذف رنگ و ظرفیت جذب جاذب برای حذف هر یک از رنگ‌ها محاسبه شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- شناسائی نمونه‌های جاذب

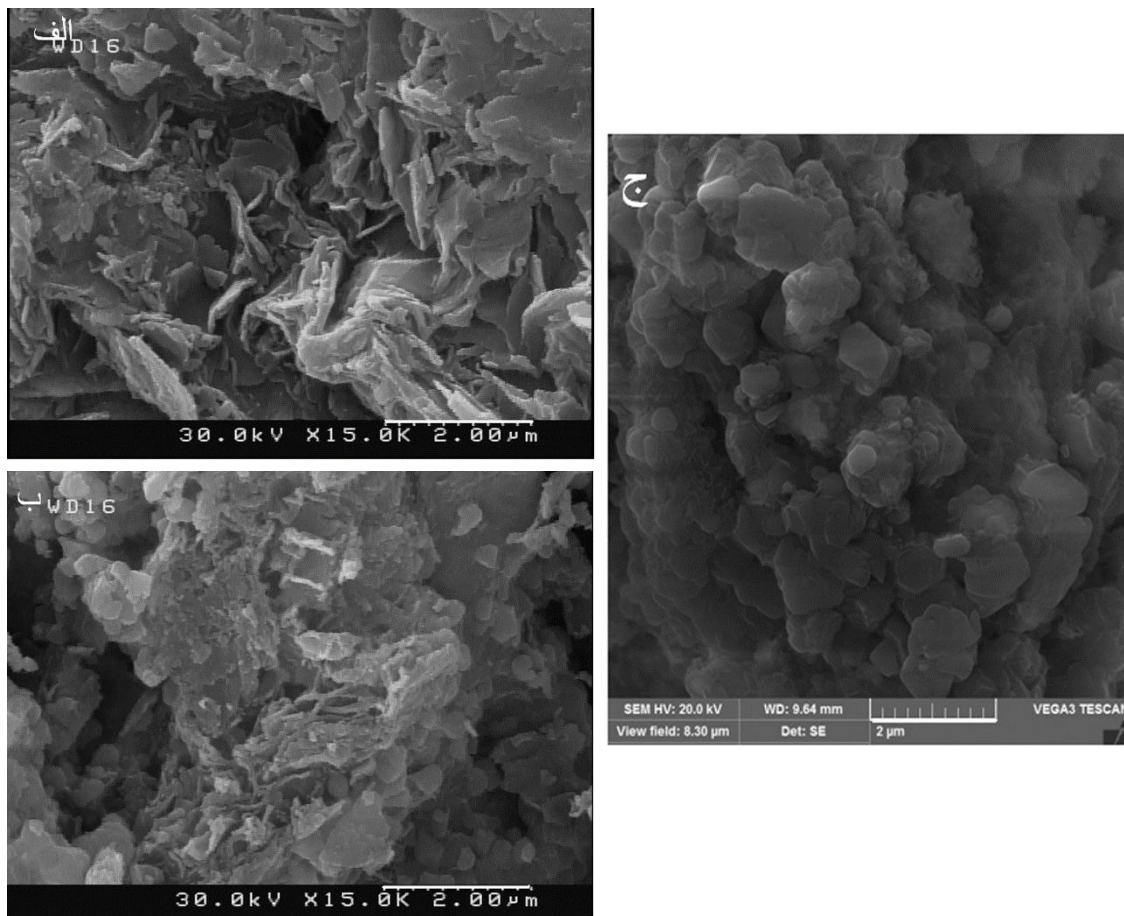
ابتدا نمونه‌ی هیدروکسید دوگانه لایه‌ای ZnAl-LDH سنتز شد. نمونه‌ی ZnAl-LDH (شکل ۱، الف) توافق خوبی با الگوی پراش اشعه ایکس با ساختار هگزاگونالی و شماره کارت استاندارد (۱۰۲۲-۴۸) دارد [۱۹]. همچنین در این ترکیب پیک‌های (۰۰۳) و (۰۰۶) که از مشخصات مواد LDH است مشاهده شد.



شکل ۱- (الف) الگوی پراش اشعه ایکس هیدروکسید دوگانه لایه‌ای ZnAl-LDH (ب) نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ (ج) نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ آلاییده با یون مس (II)

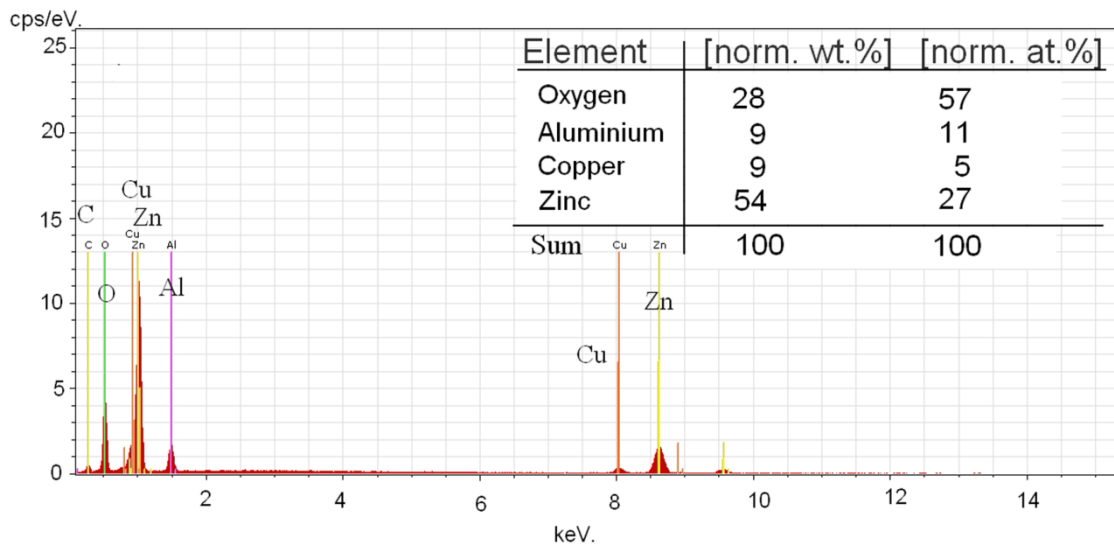
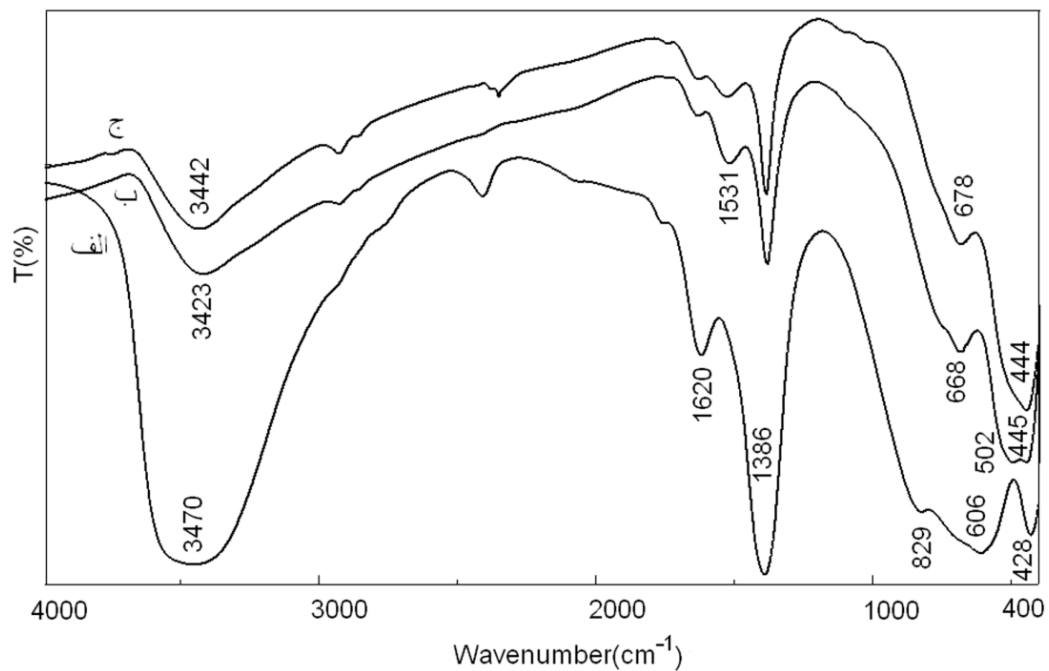
بر اثر کلسینه کردن نمونه‌ی LDH با نسبت مولی Zn به Al، ۳ به ۱ مخلوط اکسیدهای فلزی ZnAl₂O₄ و ZnO تولید شد. الگوی پراش اشعه‌ی ایکس (شکل ۱، ب) حضور ZnO با ساختار ورتزیت با شماره کارت استاندارد (۰۳۶-۱۴۵۱) و ساختار اسپینل ZnAl₂O₄ با شماره کارت استاندارد (۰۵-۰۶۶۹) را نشان داد. الگوی پراش اشعه‌ی ایکس (شکل ۱، ج) نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II) مشابه با نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ بود که تشکیل روی اکسید و اسپینل مخلوط (MAl₂O₄, M=Zn, Cu) را تأیید کرد. تصاویر SEM (شکل ۲، الف و ب) مربوط به نمونه‌های ZnAl-LDH و ZnO/ZnAl₂O₄ است برای نمونه‌ها مورفولوژی

پوسته مانند با ضخامت تقریباً 50 nm مشاهده شد. اما برای نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II) نانو ذرات بهم چسبیده مشاهده شد (شکل ۲، ج).



شکل ۲- تصویر SEM (الف) ZnAl-LDH (ب) نمونه‌ی $\text{ZnO/ZnAl}_2\text{O}_4$ (ج) نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II)

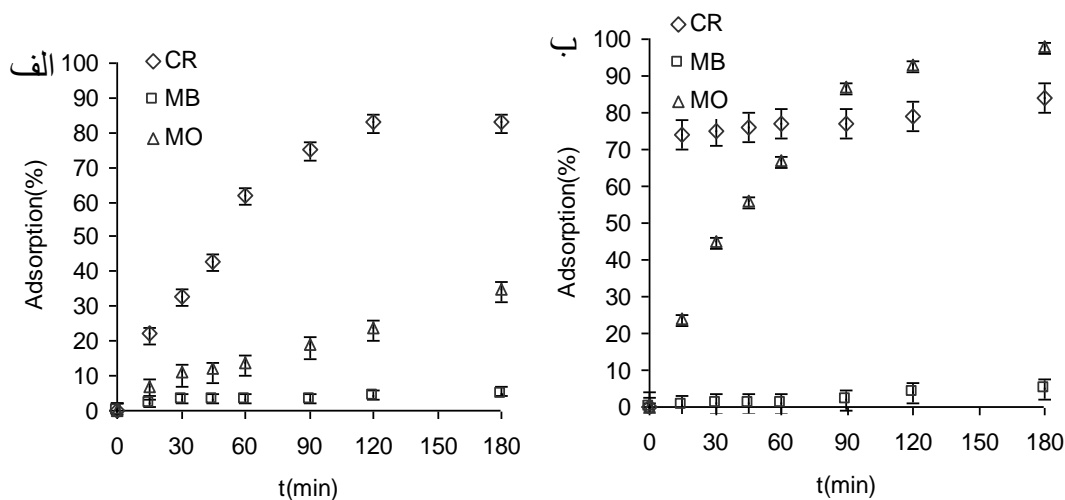
به منظور تائید حضور عناصر اکسیژن، آلومینیم، مس و روی در نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II) از آنالیز (EDX) استفاده شد. با استفاده از این آنالیز درصد اتمی عناصر به طور تقریبی (O) 57% ، (Al) 11% ، (Zn) 27% و (Cu) 5% بدست آمد (شکل ۳). همچنین از اسپکتروسکوپی نشری پلاسمای جفت شده القائی (ICP) برای آنالیز عنصری استفاده شد که نسبت مولی عناصر آلومینیم، روی و مس به ترتیب ۱، $2/38$ و $0/44$ بدست آمد. در بررسی طیف مادون قرمز تبدیل فوریه برای نمونه‌ی ZnAl-LDH نوارهای جذبی مربوط به مدهای ارتعاشی گروه OH متصل به لایه بروسیت مانند و همچنین مولکول‌های آب موجود در بین لایه‌ها در 1620 cm^{-1} و 3470 cm^{-1} ، مدهای ارتعاشی M-O در ناحیه‌ی زیر 1000 cm^{-1} و مدهای ارتعاشی O-M-O در ناحیه‌ی 400 cm^{-1} - 500 cm^{-1} و ارتعاش کششی آنیون نیترات در 1386 cm^{-1} مشاهده شد.

شکل ۳- آنالیز EDX نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ آلاییده با یون مس (II)شکل ۴- طیف مادون قرمز تبدیل فوریه (الف) نمونه‌ی هیدروکسید دوگانه لایه‌ای ZnAl-LDH (ب) نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ (ج) نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ آلاییده با یون مس (II)

برای نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ نوارهای جذبی ارتعاشی کششی و خمشی گروه OH مربوط به مولکول‌های آب جذب سطحی شده در 3423cm^{-1} و 3442cm^{-1} ، مدهای ارتعاشی Zn-O و Al-O در فاز اسپینل ZnO و ZnAl₂O₄ در 502cm^{-1} و 606cm^{-1} ، مدهای ارتعاشی کششی و خمشی گروه OH مربوط به مولکول‌های آب جذب سطحی شده در 3442cm^{-1} و 1531cm^{-1} ، نوارهای جذبی مربوط به مد ارتعاشی Cu-O و Al-O و Cu-O در ناحیه‌ی بین 600cm^{-1} – 800cm^{-1} و مد ارتعاشی Zn-O در 444cm^{-1} مشاهده شد (شکل ۴، الف، ب و ج).

۳-۲- نتایج مربوط به حذف آلاینده رنگی از محلول

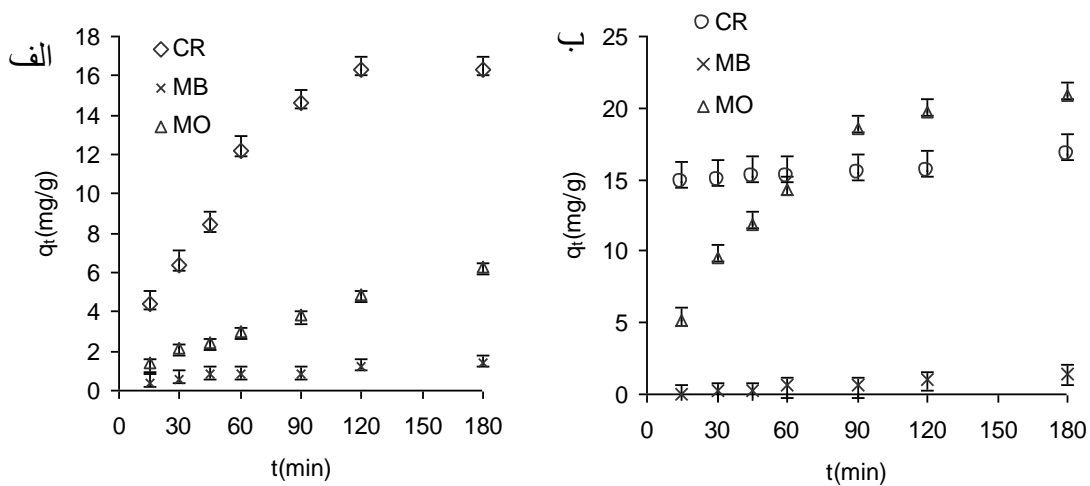
در این تحقیق کارائی نمونهی $ZnO/ZnAl_2O_4$ و نمونهی آلاینده با یون مس (II) برای حذف آلاینده‌های رنگی از محلول بررسی شد.^۱ درصد حذف رنگ از محلول‌های کنگورد، متیلن بلو و متیل اورنژ به ترتیب ۰.۸۳٪، ۰.۵٪ و ۰.۳۵٪ توسط نمونهی $ZnO/ZnAl_2O_4$ و ۰.۸۴٪، ۰.۵٪ و ۰.۹۸٪ توسط نمونهی آلاینده با یون مس (II) بدست آمد (شکل ۵، الف و ب). در شکل ۶، الف و ب مقدار ظرفیت جذب $ZnO/ZnAl_2O_4$ به ترتیب ۱۶/۸، ۱/۴، ۶/۳ و نمونهی آلاینده با یون مس (II) ۱۶/۸، ۱/۴ و ۲۰/۹ برای حذف رنگ کنگورد، متیلن بلو و متیل اورنژ از محلول‌هایشان بدست آمد.



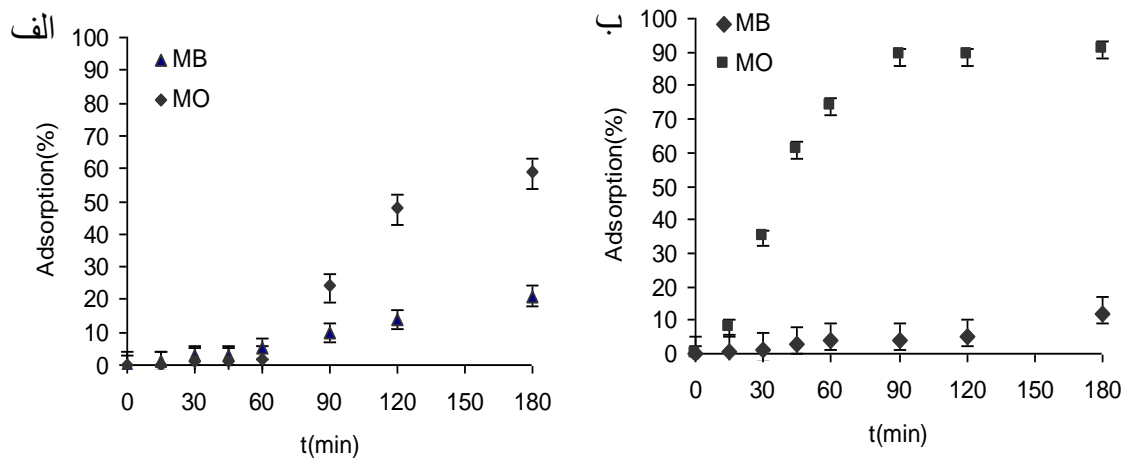
شکل ۵- درصد حذف رنگ کنگورد (CR)، متیلن بلو (MB) و متیل اورنژ (MO) توسط جاذب‌های (الف) نمونهی $ZnO/ZnAl_2O_4$ (ب) نمونهی آلاینده با یون مس (II)

نتایج برای نمونهی آلاینده با یون مس (II) نسبت به نمونهی دیگر یک افزایش تقریباً سه برابری نسبت به حذف رنگ متیل اورنژ از محلول را نشان داد. در آزمایش دیگر حذف همزمان رنگ‌های متیلن بلو و متیل اورنژ از محلول مخلوط آن‌ها بررسی شد. درصد حذف همزمان رنگ‌های متیلن بلو و متیل اورنژ (شکل ۷، الف و ب) به ترتیب ۰.۲۱٪، ۰.۵۹٪ توسط نمونهی $ZnO/ZnAl_2O_4$ و برای نمونهی آلاینده با یون مس (II) ۰.۱۲٪ و ۰.۹۱٪ محاسبه شد.

^۱ هر آزمایش سه مرتبه تکرار و نوار خطا رسم شد.

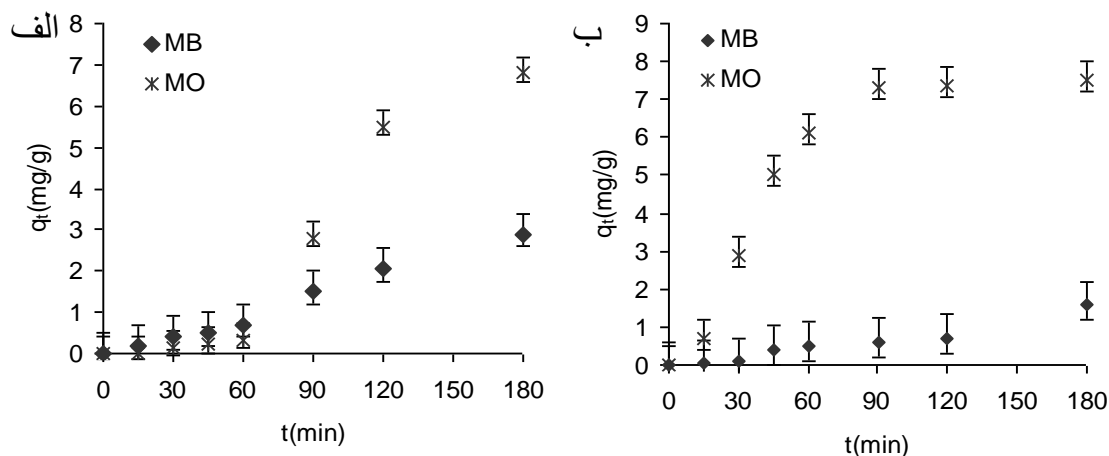


شکل ۶- ظرفیت جذب جاذب‌های (الف) نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ (ب) نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II) برای حذف رنگ‌های کنگورد (CR)، متیلن بلو (MB) و متیل اورنژ (MO) از محلول‌هایشان



شکل ۷- درصد حذف همزمان رنگ‌های متیلن بلو (MB) و متیل اورنژ (MO) توسط جاذب‌های (الف) نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ (ب) نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II)

همچنین مقدار ظرفیت جذب جاذب (شکل ۸، الف و ب) برای حذف همزمان متیلن بلو و متیل اورنژ توسط نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ به ترتیب ۲/۹ و ۶/۸ و برای نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II)، ۱/۶ و ۷/۵ بدست آمد. این نتایج حذف گزینش پذیر حدود ۹۱٪ را برای حذف رنگ آنیونی متیل اورنژ توسط نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II) نشان داد.



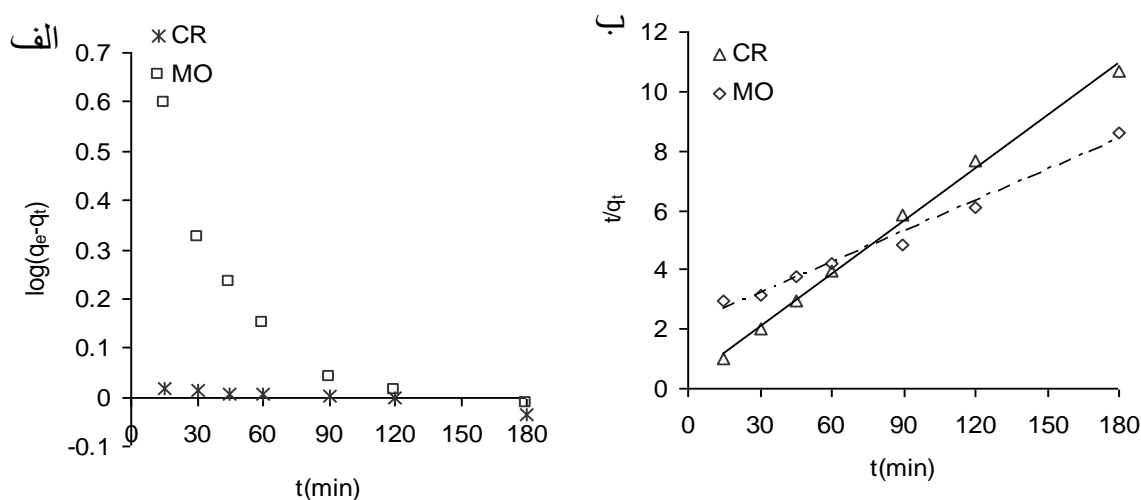
شکل ۸- ظرفیت جذب جاذب‌های (الف) نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ (ب) نمونه‌ی آلانئیده با یون مس (II) برای حذف همزمان رنگ‌های متیلن بلو (MB) و متیل اورنژ (MO) از محلول

برای بررسی سینتیک جذب رنگ‌های آنیونی کنگورد و متیل اورنژ که بیشترین جذب را بر روی سطح جاذب‌های تهیه شده داشتند از مدل‌های سینتیکی شبه مرتبه‌ی اول و شبه مرتبه‌ی دوم استفاده شد. رابطه‌های ۳ و ۴ به ترتیب مدل‌های سینتیکی شبه مرتبه‌ی اول و شبه مرتبه‌ی دوم را نشان می‌دهد.

$$\log(q_e - q_t) = \log(q_e) - \frac{k_1 t}{2.303} \quad (۳)$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2(q_e)^2} + \frac{t}{q_e} \quad (۴)$$

در رابطه‌های ۳ و ۴، q_e ظرفیت جذب در حالت تعادل، q_t ظرفیت جذب در زمان t ، k_1 ثابت سرعت شبه مرتبه اول و k_2 ثابت سرعت شبه مرتبه دوم است. از رسم نمودارهای $\log(q_e - q_t)$ و t/q_t بر حسب زمان می‌توان پارامترهای q_e و k_1 و k_2 را بدست آورد که نمودارها در (شکل ۹، الف و ب) و پارامترها در جدول ۱ آورده شده است. با محاسبه‌ی ضریب همبستگی R^2 و مقایسه‌ی q_e تئوری و تجربی نتایج توافقی بیشتری با مدل شبه مرتبه‌ی دوم نشان داد. به طور کلی کمپلکس فلز-آنیون، برهمکنش‌های الکترواستاتیکی، بر همکنش $\pi-\pi$ و پیوند شیمیایی مکانیسم‌های رایجی هستند که در فرآیند جذب آلانئیده دخالت دارند [۱۳].



شکل ۹- (الف) مدل‌های سینتیکی شبه مرتبه‌ی اول و (ب) شبه مرتبه‌ی دوم برای حذف رنگ‌های آنیونی (CR) و متیل اورنژ (MO) از محلول‌هایشان توسط نمونه‌ی آلاییده با یون مس (II)

جدول ۱- پارمترهای مربوط به مدل‌های سینتیکی شبه مرتبه‌ی اول و شبه مرتبه‌ی دوم

رنگ	q_e^{exp}	شبه مرتبه اول			شبه مرتبه دوم		
		k_1 (min ⁻¹)	q_{e1} (mg/g)	R^2	k_2 (g/mg min)	q_{e2} (mg/g)	R^2
CR	۱۵/۷	$۶/۹۰ \times 10^{-۴}$	۱/۰۶	۰/۹۲۷۶	$۱/۱۹ \times 10^{-۲}$	۱۶/۸۰	۰/۹۹۶۷
MO	۲۰/۳	$۷/۱۴ \times 10^{-۳}$	۲/۷۲	۰/۶۹۷۴	$۵/۱۵ \times 10^{-۴}$	۲۹/۰۶	۰/۹۸۵۱

به علاوه در این تحقیق نمونه‌ی آلاییده با یون Mg(II) در شرایط مشابه تهیه شد که کارائی پایینی را نشان داد. در جدول ۲ مقایسه‌ی حذف رنگ متیل اورنژ توسط نمونه‌های کلسینه شده‌ی MgAl-CLDH و ZnAl-CLDH، نمونه‌ی آلاییده با یون Cu(II) و نمونه‌ی آلاییده با یون Mg(II) آورده شده است. اگرچه مقایسه‌ی عملکرد جاذب‌های متفاوت گزارش شده توسط محققین به دلیل استفاده از شرایط غیر یکسان کمی مشکل است اما این تحقیق بخوبی نشان می‌دهد که کارائی نمونه‌ی آلاییده با یون Cu(II) افزایش یافته است.

جدول ۲- مقایسه‌ی تعدادی جاذب مشابه برای حذف آلاینده رنگ متیل اورنژ

جاذب	رنگ	q_e^{exp} (mg/g)	غلظت اولیه رنگ (mg/L)	مقدار جاذب (g/L)	زمان تماس (min)	مرجع
MgAl-CLDH	MO	۳۴/۵۹	۲۰	۰/۶	۱۸۰	[۲۰]
MgAl-CLDH	MO	۴۵	۳۰	۰/۶	۱۸۰	[۲۰]
ZnAl-CLDH	MO	۶/۳	۱۰	۰/۵	۱۸۰	در این تحقیق
Mg(II) doped ZnO/ZnAl ₂ O ₄	MO	۸/۳	۱۰	۰/۵	۱۸۰	در این تحقیق
Cu(II) doped ZnO/ZnAl ₂ O ₄	MO	۲۰/۳	۱۰	۰/۵	۱۸۰	در این تحقیق

۴- نتیجه گیری

از کلسینه کردن نمونه‌ی LDH با نسبت مولی Zn به Al، ۳ به ۱ مخلوط اکسیدهای فلزی ZnO و ZnAl₂O₄ تولید شد. نمونه‌ی ZnO/ZnAl₂O₄ آلائیده با یون مس (II) کارائی بهتری نسبت به حذف آلائنده‌های رنگ آنیونی نشان داد. درصد حذف رنگ از محلول‌های کنگورد، متیلن بلو و متیل اورنژ به ترتیب ۰.۸۴٪، ۰.۵٪ و ۰.۹۸٪ بدست آمد. حذف انتخابی رنگ آنیونی متیل اورنژ از محلول مخلوط رنگ‌های متیلن بلو و متیل اورنژ تا ۰.۹۱٪ مشاهده شد. نتایج حذف رنگ با مدل سینتیکی شبه مرتبه‌ی دوم توافق بیشتری نشان داد.

۵- مراجع

- [1] V. Fatemeh, R. Nahid, Y. Maryam, *J. Of Applied Chemistry*, **47** (1397) 287, in Persian.
- [2] A. Reza, M. T. Amir, R. G. Esmail, K. Hossein, *J. Of Applied Chemistry*, **46** (1397) 219, in Persian.
- [3] M. Faranak, P. Mehdi, *J. Of Applied Chemistry*, **46** (1397) 157, in Persian.
- [4] J. Naemeh, N. Kamelia, R. Zolfaghar, A. Shahin, R. Hosein, S. Marziyeh, *J. Of Applied Chemistry*, **34** (1394) 133, in Persian.
- [5] M. Zahra, G. Katayoon, *J. Of Applied Chemistry*, **30** (1393) 31, in Persian.
- [6] X. Wang, C. Jiang, B. Hou, Y. Wang, C. Hao and J. Wu, *Chemosphere*, **206** (2018) 587.
- [7] Z. Huang, Y. Li, W. Chen, J. Shi, N. Zhang, X. Wang, Z. Li, L. Gao and Y. Zhang, *Mater. Chem. Phys.*, **202** (2017) 266.
- [8] X. Li, M. Zhou, J. Jia and Q. Jia, *React. Funct. Polym.*, **126** (2018) 20.
- [9] Y. Huo, H. Wu, Z. Wang, F. Wang, Y. Liu, Y. Feng and Y. Zhao, *Colloids Surf. A: Physicochem. Eng. Asp.*, **549** (2018) 174.
- [10] S. Singh, V.C. Srivastava, T.K. Mandal, I.D. Mall and S.L. Lo, *J. Environ. Manage.*, **181** (2016) 146.
- [11] S. Yavari, N.M. Mahmodi, P. Teymouri, B. Shahmoradi and A. Maleki, *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.*, **59** (2016) 320.
- [12] Y. Liu, G. Zeng, L. Tang, Y. Cai, Y. Pang, Y. Zhang, G. Yang, Y. Zhou, X. He and Y. He, *J. Colloid Interface Sci.*, **448** (2015) 451.
- [13] M. Zubair, M. Daud, G. McKay, F. Shehzad and M.A. Al-Harhi, *Appl. Clay Sci.*, **143** (2017) 279.
- [14] D. Zhang, M.y. Zhu, J.g. Yu, H.w. Meng and F.p. Jiao, *Trans. Nonferrous Met. Soc. China*, **27** (2017) 2673.
- [15] R.r. Shan, L.g. Yan, K. Yang, S.j. Yu, Y.f. Hao, H.q. Yu and B. Du, *Chem. Eng. J.*, **252** (2014) 38.
- [16] S. Yang, L. Wang, X. Zhang, W. Yang and G. Song, *Chem. Eng. J.*, **275** (2015) 315.
- [17] R.M.M.d. Santos, R.G.L. Gonçalves, V.R.L. Constantino, C.V. Santilli, P.D. Borges, J. Tronto, and F.G. Pinto, *Appl. Clay Sci.*, **140** (2017) 132.
- [18] B. Li, Y. Zhang, X. Zhou, Z. Liu, Q. Liu and X. Li, *J. Alloys Compds*, **673** (2016) 265.

[19] S.J. Xia, F.X. Liu, Z.M. Ni, J.L. Xue and P.P. Qian, *J. Colloid Interface Sci.*, **405** (2013) 195.

[20] L. Gao, Q. Li, X. Hu, X. Wang, H. Song, L. Yan and H. Xiao, *Appl. Clay Sci.*, **126** (2016) 299.