

جذب سطحی گالیک اسید توسط الیاف پلی (اتیلن ترفتالات) پیوند خورده با منومرهای ۲- هیدروکسی پروپیل متاکریلات و آکریلامید

احسان فتحی، فریبرز عزیزی نژاد*، محسن شعبانی

گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه آزاد اسلامی ورامین، پیشوا، ورامین، ایران

تاریخ پذیرش: ۹۵/۰۷/۲۸

تاریخ تصحیح: ۹۵/۰۶/۲۷

تاریخ دریافت: ۹۵/۰۳/۱۶

چکیده

در این پژوهش، جذب گالیک اسید روی الیاف پلی(اتیلن ترفتالات) پیوند خورده با منومرهای ۲- هیدروکسی پروپیل متاکریلات و آکریلامید به عنوان یک جاذب جدید توسط تکنیک بیج بررسی شده است. اثر pH، غلظت جذب شونده، مقدار جاذب، دما و زمان جذب مورد مطالعه قرار گرفت. بهترین شرایط برای جذب گالیک اسید ($\text{pH}=10$, $t=80 \text{ min}$, $\text{CEC}=128 \text{ mg/L}$) ظرفیت تبادل یونی جاذب یا (CEC) ثبت شد. داده‌های جذبی به خوبی با مدل‌های ایزوترم لانگمویرنوع دوم و مدل سینتیکی شبه درجه دوم سازگاری داشت.

کلمات کلیدی: جذب سطحی- ایزوترم - سینتیک - پلی (اتیلن ترفتالات).

۱- مقدمه

روش‌های مختلفی جهت حذف آلاینده‌های صنعتی مانند رنگ‌ها، فلزات سنگین و ترکیبات آروماتیک از پساب‌های صنعتی ارائه شده است. از جمله این روش‌ها به ترسیب شیمیایی، تعویض یونی، اسمز معکوس و جذب یونی می‌توان اشاره کرد [۱ و ۲]. این آلاینده‌ها عمدتاً پساب‌های صنعتی حاصل از صنایع رنگ، جوهر، کاغذ، نساجی، آرایشی و... می‌باشند. سالانه حدود صد هزار تن رنگ مختلف که بالغ بر 7×10^5 تن می‌باشد در جهان تولید می‌شود. رنگ‌ها عمدتاً سمی و سرطان‌زا هستند و نظر به این که منابع آبی روز به روز رو به کاهش است لزوم تصفیه پساب‌های صنعتی ضروری است [۳-۸]. اخیراً، عده‌ایی از محققین توجه زیادی به استفاده از الیاف پلیمری جهت حذف آلاینده‌های زیست محیطی معطوف داشته‌اند. علت این توجه قابلیت‌های بالای مواد پلیمری در قیاس با جاذب‌های معدنی است. از مزیت‌های مهم جاذب‌های پلیمری نسبت به جاذب‌های معدنی می‌توان به انرژی فعال‌سازی پایین پلیمرها در فرآیند جذب، سرعت بالای جذب، پایداری توابع ترمودینامیکی، مقاومت بالا در محیط اسیدی و بازی و امکان واجذب سریع و آسان جهت استفاده‌ی مجدد بدون از دست دادن کارایی جاذب اشاره کرد [۹-۱۵].

جذب یکی از روش‌های بسیار مهم است که بسیاری از محققین توجه زیادی به آن داشته‌اند و جاذب‌های مختلفی جهت تصفیه آب‌ها و پساب‌های صنعتی از آلاینده‌های زیست محیطی مانند نانولوله هالویست، کربن فعال، نانولوله کربنی، پوسته بادام زمینی، ذغال چوب، پرلیت، زیولیت، بنتونیت، مونت موریلونیت، سپیولیت و... مورد استفاده قرار گرفته است [۲۱-۱۶].

شایان ذکر است مقالات فراوانی در خصوص جذب سطحی و تعیین ایزوترم‌های جذبی، مدل‌های سینتیکی و پارامترهای ترمودینامیکی کربن فعال، جاذب‌های معدنی و کامپوزیت‌های معدنی _ پلیمری وجود دارد و تحقیق در خصوص معرفی جاذب-های کارا تر و ارزان قیمت همواره مد نظر محققین بوده است [۲۵-۲۲]. در این پژوهش پس از اصلاح ساختار الیاف با مخلوط منومرهای ۲- هیدروکسی پروپیل متاکریلات/اکریلامید، خصوصیات جذبی آن در محلول آبی مورد بررسی قرار گرفته است.

۲- روش تجربی

۲-۱-موادشیمیایی و معرف های مورد استفاده

در این پژوهش، الیاف پلی اتیلن ترفتالات (۳۰ رشته ای) از دانشکده نساجی دانشگاه امیر کبیر تهیه گردید و پس از شستشو با استون در سیستم سوکسوله به مدت ۶ ساعت، جهت زدودن ناخالصی احتمالی موجود در آن و خشک کردن در دمای ۵۰ درجه سانتی گراد در اتوکلاو مورد استفاده قرار گرفت. ۲- هیدروکسی پروپیل متا کریلات و آکریلامید از شرکت سیگما ساخت کشور انگلیس تهیه شد و پس از تخلیص مورد استفاده قرار گرفت. برای این منظور در خصوص ۲- هیدروکسی پروپیل متا کریلات عمل تقطیر در خلا در ۹۹ °C و ۲۳ mm Hg انجام شد و در مورد آکریلامید عمل نوبلور کردن با متانول صورت گرفت. گالیک اسید به عنوان آنتی اکسیدان و بنزوییل پراکسید به عنوان آغازگر از کارخانه مرک ساخت کشور آلمان تهیه گردید. آغازگر پس از دو بار نوبلور کردن در حضور متانول و کلروفرم مورد استفاده قرار گرفت و در طول آزمایشات همواره در تاریکی نگهداری شد. کلیه حلال‌ها اعم از تولوئن، استون، متانول و کلروفرم از کارخانه مرک تهیه شد و آزمایش‌های پیوند زنی و جذب با استفاده از آب ۲ بار تقطیر شده صورت گرفت. [۲۶]

۲-۲-کوپلیمر یزاسیون گرافت (پیوند زنی)

عملیات پیوندزنی منومرها داخل الیاف پلی اتیلن ترفتالات در حمام آبی و در داخل لوله‌های سر سمباده‌ای پیرکس ۱۰۰ میلی-لیتری انجام شد. برای این منظور ۰/۱ گرم الیاف، ۰/۰۴ مولار بنزوییل پراکسید (Bz_2O_2) حل شده در ۵ میلی‌لیتر استون و ۰/۱ مولار از مخلوط منومرهای ۲- هیدروکسی پروپیل متا کریلات ۰/۸۰٪ _ آکریلامید ۰/۲۰٪، ۴۵ میلی‌لیتر آب مقطر در حجم کل ۵۰ میلی‌لیتر و در دمای ثابت ۹۰ درجه سانتی گراد انجام شد برای به دست آوردن محصول با درجه پیوند زنی بالا، واکنش در زمان ۶۰ دقیقه انجام شد. پس از سپری کردن زمان مورد نظر، الیاف به دقت از لوله خارج شده، ابتدا با شست و شوی مداوم با آب مقطر جهت زدودن هموپلیمرهای آکریلامید به مدت ۲۴ ساعت و سپس جهت زدودن هموپلیمرهای ۲- هیدروکسی

پروپیل متاکریلات ابتدا توسط مخلوط تولوئن - استون و سپس دی متیل فورمامید به مدت ۸ ساعت و ۶ ساعت در سوکسوله خالص سازی شد [۲۶]. درصد پیوند زنی با استفاده از روش وزن سنجی محاسبه شد.

$$G(\%) = (W_g - W_0) / W_0 \times 100 \quad (1-2)$$

در این معادله W_g و W_0 به ترتیب وزن الیاف اولیه و گرفت شده می باشند.

۲-۳- آزمایش جذب

آزمایشات تعیین مقدار گالیک اسید جذب شده در حضور ۰/۱ گرم جاذب (الیاف کopolymerیزه شده)، ۲۰ میلی لیتر محلول گالیک اسید به غلظت ۱۰۰ mg/L در داخل ارلن مایرهای ۲۵۰ میلی لیتری در دور ثابت همزن (۱۵۰ rpm) و در دمای ثابت ۲۵ درجه سانتی گراد به صورت تابعی از pH، غلظت جذب شونده، میزان جذب، مقدار و درصد محصول گرفت انجام شد. غلظت گالیک اسید در محلول پس از عمل فیلتراسیون با کاغذ صافی واتمن ۴۰ و اولتراسانتریفوژ در دور ۳۰۰۰، توسط دستگاه طیف سنج UV (Shimadzu 1208 UV-Vis) در $\lambda_{max}=265nm$ خوانده و با استفاده از منحنی کالیبراسیون گالیک اسید محاسبه گردید. محاسبات بر اساس رابطه زیر انجام شد:

$$q = \frac{(C_0 - C_e) \times V}{m} \quad (2-2)$$

در این رابطه C_0 و C_e به ترتیب غلظت های اولیه و تعادلی گالیک اسید (mg/L)، V حجم کل محلول (L)، m وزن جاذب (g) و q بر حسب (mg/g) مقدار گالیک اسید جذب شده را مشخص می کند.

نظر به اینکه الیاف خام (اصلاح نشده)، به دلیل ساختار غیر قطبی، عدم وجود گروه های عاملی فعال و مساحت سطح ویژه پایین از میزان جذب پایینی برخوردارند لذا در آزمایش ها، از الیاف اصلاح نشده جهت مقایسه استفاده نگردید [۲۷-۲۹].

۲-۴- تعیین ایزوترم جذب

همدما یا ایزوترم های جذبی در دماهای ۲۵، ۳۰، ۴۰ و ۵۵ درجه سانتی گراد در حضور ۰/۱ گرم الیاف، در حجم کل ۲۰ میلی لیتر، دور ثابت همزن ۱۵۰ rpm، pH= ۱۰ و زمان بهینه ۸۰ دقیقه انجام شد و نتایج حاصل از دستگاه طیف سنجی UV بر طبق مدل های ایزوترمی لانگمیرنوع دوم، فروندلیچ و تمکین مورد بررسی قرار گرفت.

۲-۵- تعیین سینتیک جذب

سه مدل سینتیکی شناخته شده و مهم شبه درجه اول، شبه درجه دوم و نفوذ بین ذرات جهت بررسی سینتیک جذب مورد استفاده قرار گرفت. شرایط ثابت در آزمایش ها: ۰/۱ گرم الیاف، حجم کل ۲۰ میلی لیتر، دور همزن صفر rpm، pH= ۱۰،

غلظت جذب شونده ۱۰۰ mg/L و در زمان های ۵-۱۰-۲۰-۴۰-۶۰ دقیقه انجام شد

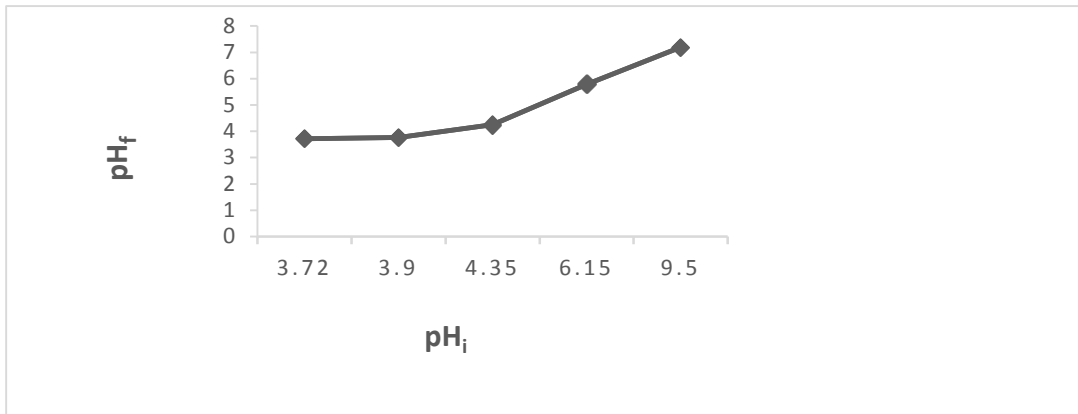
۳- بحث و نتیجه گیری

۳-۱- شناسایی جاذب

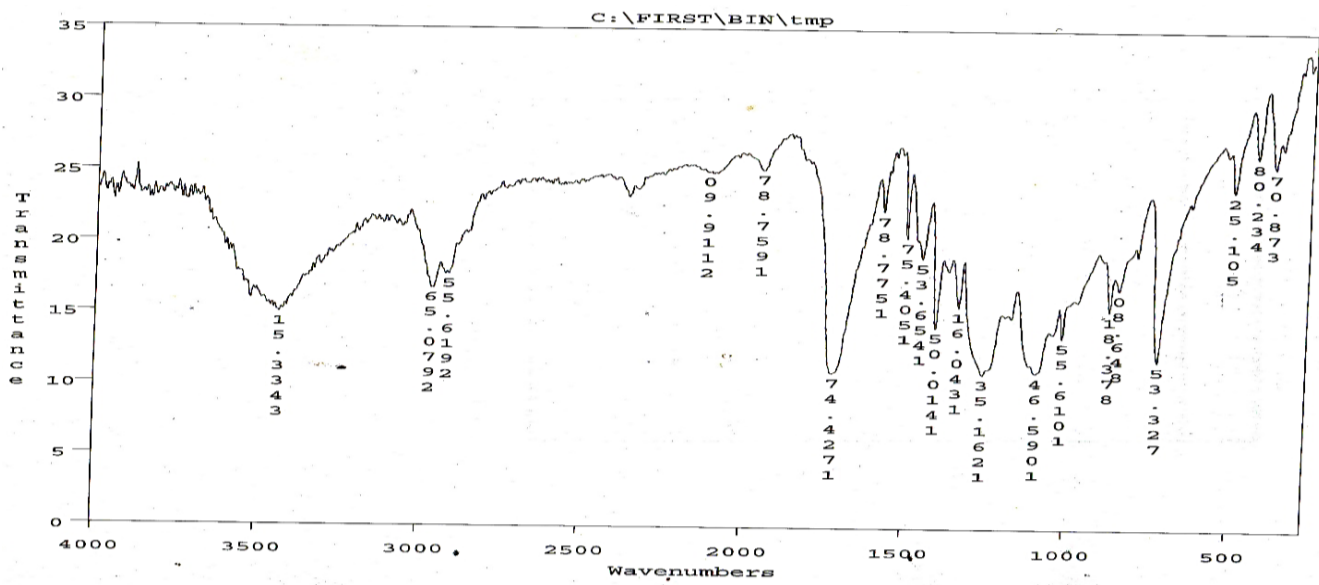
برای تعیین خصوصیات الیاف اصلاح شده pH صفر بار (pH_{zpc}) در محدوده pH ۳ الی ۱۰ طبق روش میلونجیج و همکارانش در حضور ۱/۱ گرم جاذب، ۲۰ میلی لیتر محلول گالیک اسید، در مدت ۱ ساعت و در سرعت ثابت همزن (۱۵۰rpm)، با رسم تغییرات $pH_f - pH_i$ ، ۳/۷ تعیین گردید [۳۰]. نمودار ۱

ظرفیت تبادل یونی جاذب (CEC)، به روش گیلمن ابتدا به توسط اشباعیت با سدیم استات ۱ نرمال و سپس استخراج با آمونیوم استات با دستگاه نورسنجی شعله ای مدل (Jenwey Clinical PFP7) ۱۲۸ میلی گرم بر لیتر به دست آمد. [۳۱]

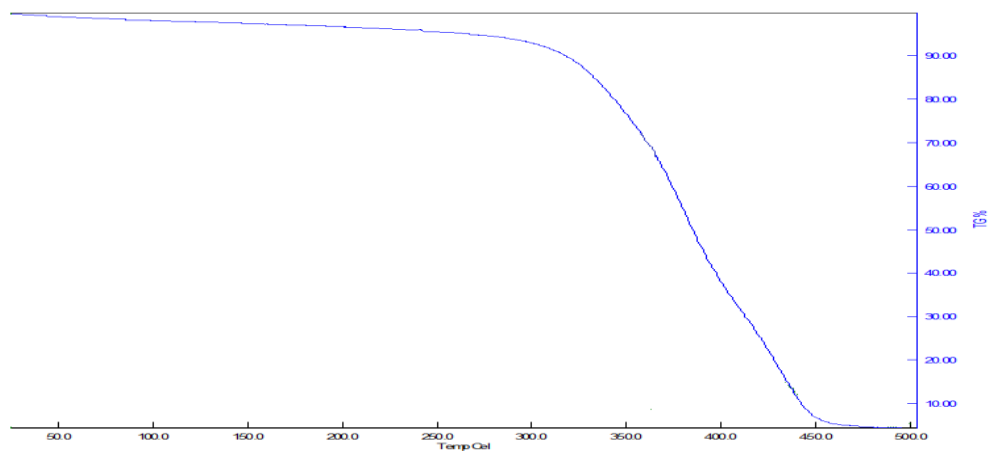
طیف FT-IR مشخص کننده دو طیف بارز در حواشی 1100 cm^{-1} مربوط به C-O کششی و 3400 cm^{-1} مربوط به گروه O-H است و 1750 cm^{-1} مربوط به حلقه های بنزن سه استخلافی که نسبت به حالت پیوند خورده تشدید شده و دلیل بارزی بر جذب گالیک اسید است. (نمودار ۲) نتایج تجزیه وزن سنجی حرارتی نشان داد با جذب گالیک اسید توسط الیاف پیوند خورده با مخلوط منومرها، کاهش در پایداری حرارتی الیاف مشاهده می شود و این امر به کاهش در بلورینگی الیاف مربوط می شود و تاییدی بر جذب بهینه ی گالیک اسید است. در الیاف خام دمای تخریب حرارتی، $400\text{ }^\circ\text{C}$ [۲۸ و ۲۶] و در الیاف اصلاح شده حدودا $320\text{ }^\circ\text{C}$ و در الیاف اصلاح شده پس از جذب گالیک اسید به $300\text{ }^\circ\text{C}$ رسیده است. (نمودارهای ۳ و ۴) مورفولوژی الیاف قبل و پس از جذب با دستگاه (SEM) میکروسکوپ الکترونی پویشی JEOL -JEM-100CX2 بررسی شد. همانگونه که در اشکال مشهود است سطوح الیاف پیوند نخورده (شکل 1a) کاملا صاف و هموار بوده و در اثر پیوند خوردگی منومرها با الیاف (شکل 1b) سطح الیاف کمی ناصاف و زبر و خشن شده و نهایتا با جذب گالیک اسید ناهمواری، زبری، قطر الیاف و چقرمگی افزایش یافته است. (شکل 1c)



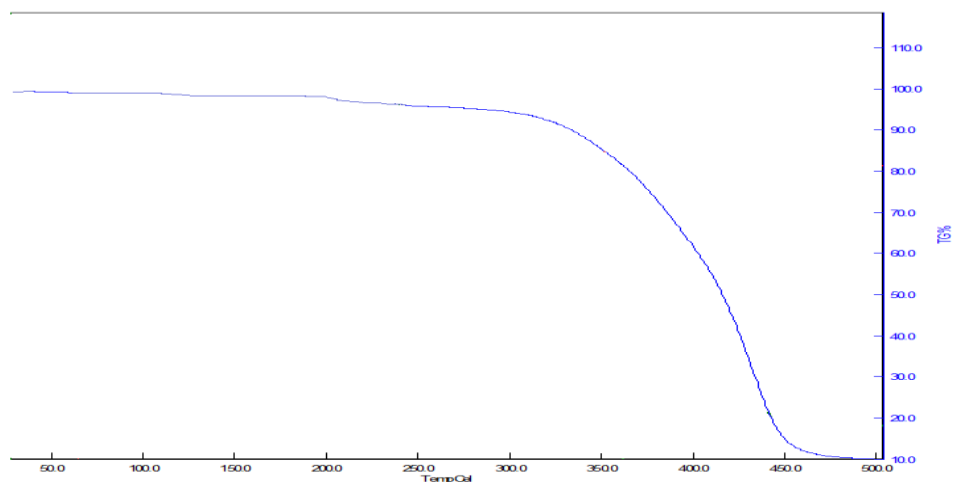
نمودار ۱. منحنی تعیین pH صفر بار الیاف پیوند خورده (pH_{zpc})



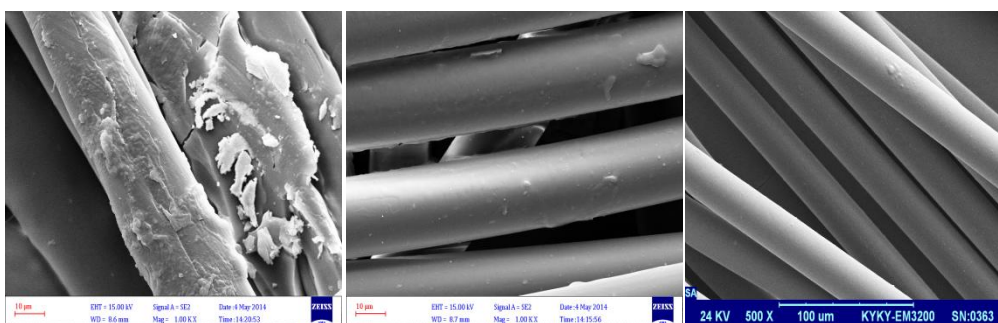
نمودار ۲. طیف FT-IR الیاف پلی اتیلن ترفتالات پیوند خورده با مونومرهای ۲- هیدروکسی پروپیل متا کریلات / آکریلامید پس از جذب گالیک اسید



نمودار ۳. ترموگرام الیاف اصلاح شده با مخلوط مونومرها



نمودار ۴. ترموگرام الیاف اصلاح شده پس از جذب گالیک اسید

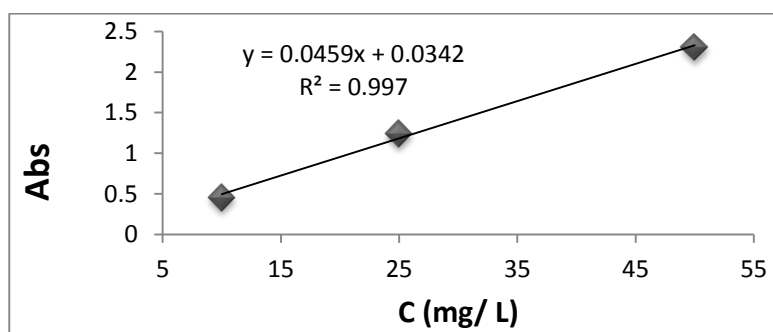


(c)

(b)

(a)

شکل ۱. تصاویر SEM الیاف خام (a) پیوند خورده (b) پس از جذب گالیک اسید (c) با بزرگنمایی ۱۰۰۰ برابر

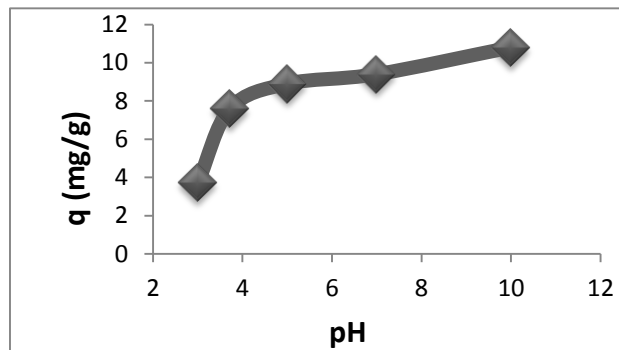


نمودار ۵. منحنی کالیبراسیون گالیک اسید

۳-۲- اثر pH

اثر pH در جذب گالیک اسید در محدوده ۳ الی ۱۰ در شرایط ثابت (g/۱ = جذب، ۱۰۰ mg/l = گالیک اسید، ۱۲۰ min = زمان، ۱۵۰ rpm = سرعت همزن، ۲۵°C = دما و ۲۰ ml = حجم محلول) بررسی شد.

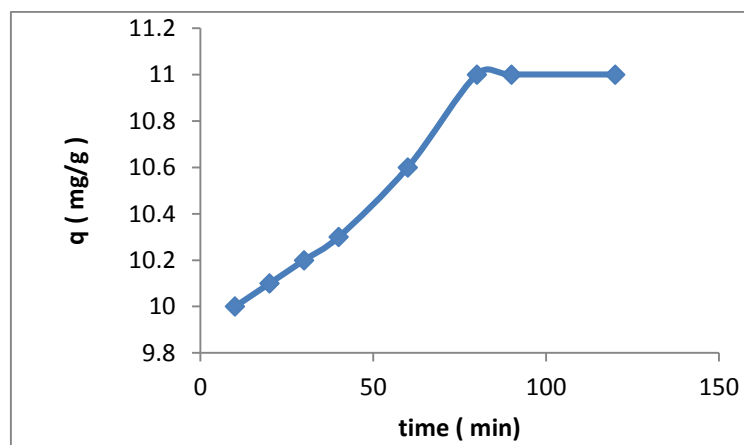
بیشترین مقدار جذب برای گالیک اسید در $\text{pH}=10$ ثبت شد. در محیط‌های اسیدی یون‌های H^+ با گالیک اسید در جذب شدن روی سایت‌های فعال الیاف با یکدیگر رقابت می‌کنند و به دلیل تحرک بیشتر یون‌های H^+ راحت‌تر روی جاذب جذب می‌شوند ولی در محیط‌های بازی، گالیک اسید به صورت گالئات در محیط آبی تشکیل می‌شود و به تبع آن مقدار جذب افزایش می‌یابد. نمودار ۶



نمودار ۶ اثر pH در جذب گالیک اسید

۳-۳- اثر زمان

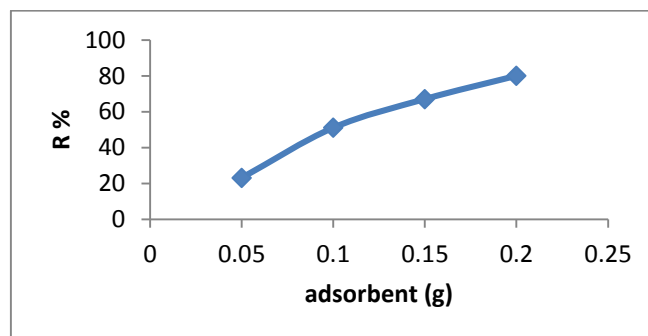
برای تعیین بهترین زمان جذب، آزمایش‌های جذب در بازه زمانی ۱۰ الی ۱۲۰ دقیقه، در شرایط ثابت (۱g/۰=جاذب، mg/L، ۱۰۰=گالیک اسید، ۲۰ ml=حجم محلول، ۲۹۸K=دما، ۱۵۰ rpm=سرعت همزن و $\text{pH}=10$) صورت گرفت. نتایج نشان داد فرایند جذب، پس از ۸۰ دقیقه کامل می‌گردد و ظرفیت جذب تعادلی گالیک اسید ۱۱/۰ میلی گرم بر گرم به دست آمد. نمودار ۷



نمودار ۷. اثر زمان برخورد در جذب گالیک اسید

۳-۴- اثر جاذب

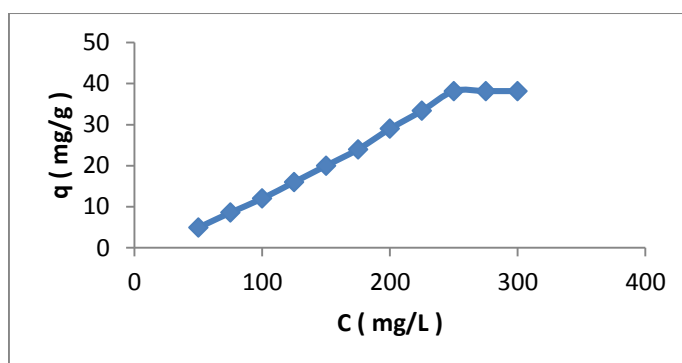
با تغییر مقدار جاذب از ۰/۰۵-۰/۲۰ g و در شرایط ثابتی از متغیرهای موثر در فرآیند جذب، آزمایش‌های تعیین مقدار بهینه جاذب صورت گرفت نمودار ۸. با افزایش مقدار جاذب، به دلیل افزایش تعداد گروه‌های عاملی OH و CONH₂ - پیوند خورده به ساختار PET و افزایش سایت‌های فعال در الیاف اصلاح شده (درصد پیوند خوردگی ۷۵٪)، بیشینه جذب افزایش یافت. چنین رفتاری در تحقیقات پیشین نیز گزارش شده است [۱۵ و ۳۲].



نمودار ۸. اثر مقدار جاذب در جذب گالیک اسید

۳-۵- اثر غلظت جذب شونده

برای تعیین حداکثر ظرفیت جاذب، غلظت گالیک اسید به عنوان جذب شونده بین ۳۰-۵۰ mg/L تغییر یافت. حداکثر ظرفیت و کارایی جاذب (۳۸/۲۰ mg/g) در محلول حاوی (۲۵۰ mg/L) مشاهده و ثبت گردید. نتایج در نمودار ۹ گزارش شده است.



نمودار ۹. اثر غلظت گالیک اسید در جذب

۳-۶- ایزوترم جذبی

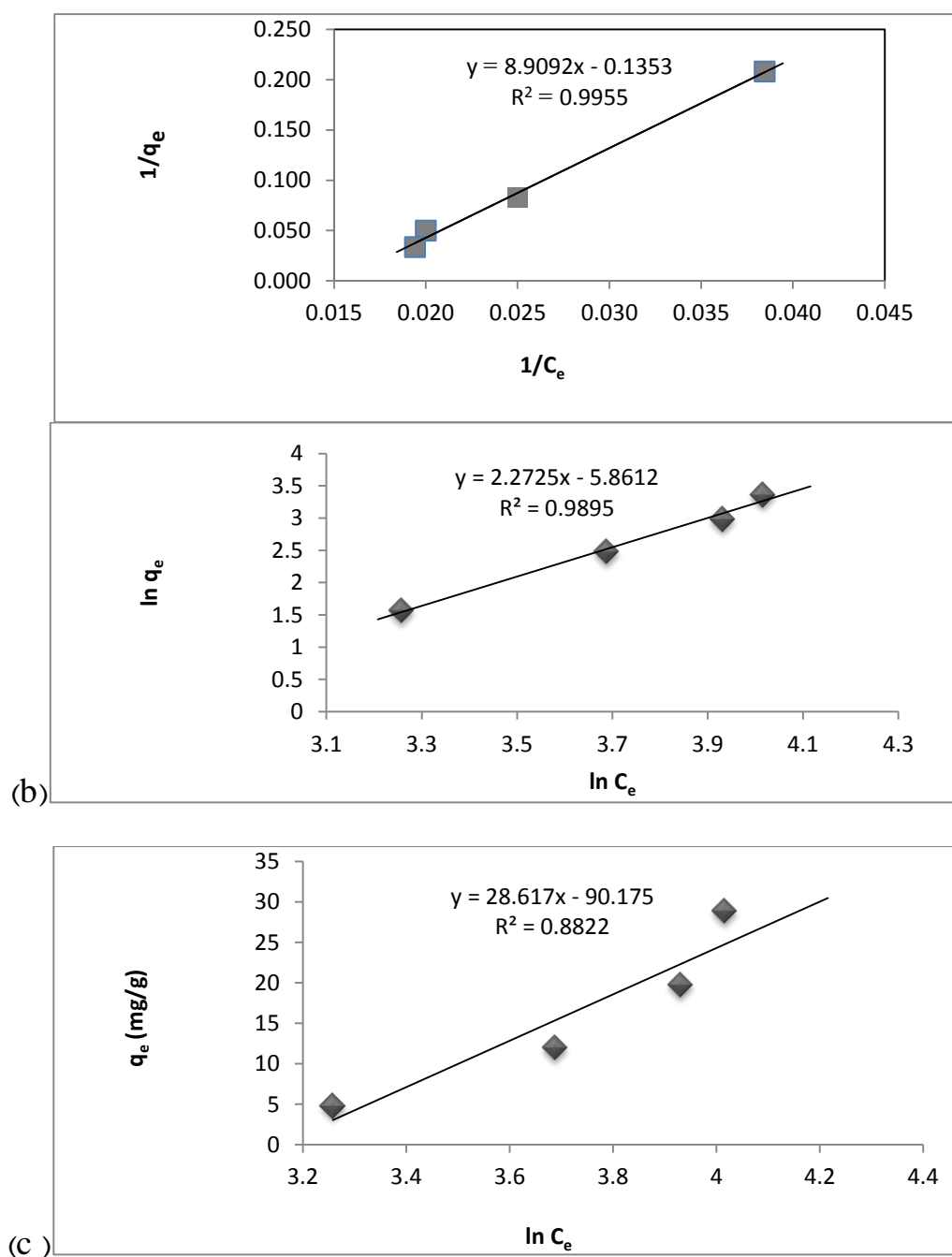
سه مدل همدما بی معروف و شناخته شده لانگمویر نوع دوم، فروندلیچ و تمکین جهت بررسی ایزوترم های جذبی مورد استفاده قرار گرفت. [۳۳-۳۵]

$$1/q_e = 1/k_a q_m \cdot 1/C_e + 1/q_m \quad (۱-۳) \text{ مدل لانگمویر (نوع دوم)}$$

$$\ln q_e = \ln K_f + 1/n \cdot \ln C \quad (۲-۳) \text{ مدل فروندلیچ}$$

$$q_e = a_t + B_0 \ln C_e \quad (۳-۳) \text{ مدل تمکین}$$

در معادلات فوق C_e (mg/L) غلظت تعادلی، q_e (mg/g) مقدار جذب شده در حالت تعادل، q_m و K_a ثوابت معادلات لانگمویر بوده و مشخص کننده کارایی فرآیند هستند. K_f مشخص کننده ظرفیت و n شدت (توان)، جذب را مشخص می کنند و B_0 (mg/L) و a_t (mg/g) بر اساس نتایج تجربی و پس از رسم منحنی $q_e - \ln C_e$ قابل تعیین است. همانگونه که در نمودارهای ۱۰ a,b,c مشهود است سازگارترین مدل همدمایی بر اساس ضریب همبستگی به دست آمده در مدل لانگمویر نوع دوم مشاهده شد. لذا نتایج به دست آمده موید جذب هموزن و تک لایه گالیک اسید روی الیاف می باشند [۳۶]. شایان ذکر است آزمایشات در دمای ۲۹۸K انجام شده است.



نمودار ۱۰. همدماهای جذبی لانگمویر (a) - فروندلیچ (b) , تمکین (c) در دمای ۲۹۸ K

جدول ۱. ثوابت همدماهای جذبی لانگمویر، فروندلیچ و تمکین

ثابت‌های لانگمویر	K_a (L/mg)	q_m (mg/g)	R^2
G.A	1/200	7/390	0/9955
ثابت‌های فروندلیچ	K_f (mg/g)	n (L/mg)	R^2
G.A	351/145	0/440	0/9890
ثابت‌های تمکین	a_t (mg/g)	B_0 (L/mg)	R^2
G.A	-90/170	28/610	0/8820

۳-۷- سینتیک جذب

نتایج سینتیکی جذب بر اساس سه مدل رایج سینتیکی، آنالیز و بررسی شد:

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t$$

(۳-۴) شبه درجه اول

$$t/q_t = 1/K_2 q_e^2 + t/q_e$$

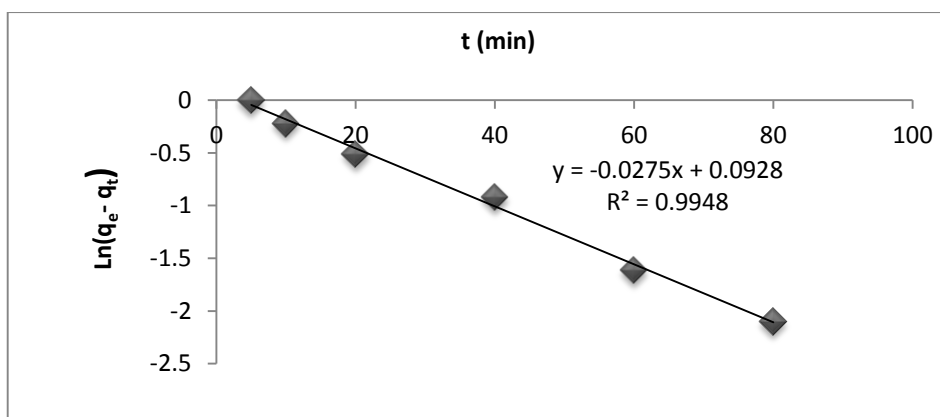
(۳-۵) شبه درجه دوم

$$q = K_d \cdot t^{1/2} + I$$

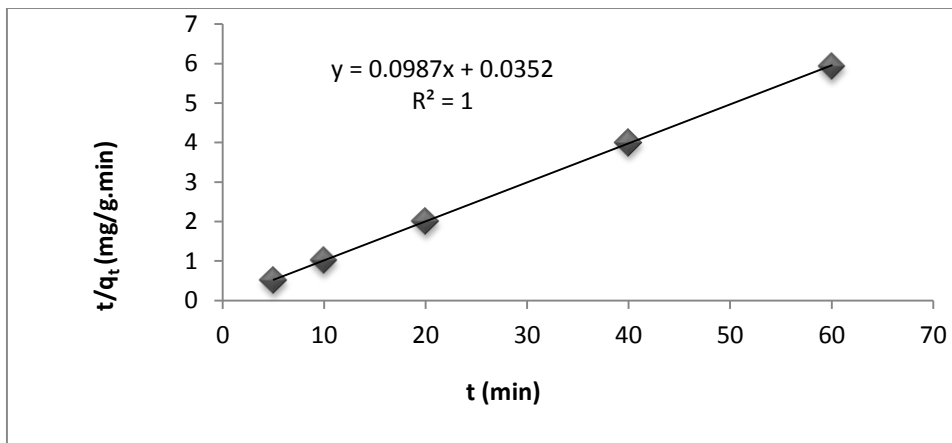
(۳-۶) نفوذ بین ذرات

نمودارهای ۱۱-۱۳ و جدول ۲ مشخص کننده این است که مدل سینتیکی شبه درجه دوم بهترین سازگاری را در توجیه سینتیک

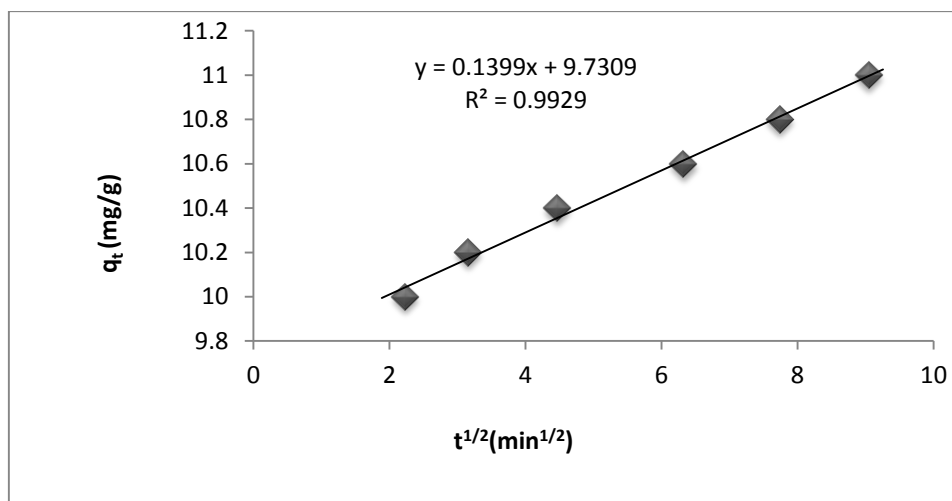
جذب گالیک اسید دارد. همانند چنین مطالعاتی در تحقیقات پیشین مشاهده شده است. [۳۷]



نمودار ۱۱. مدل سینتیکی شبه درجه اول



نمودار ۱۲. مدل سینتیکی شبه درجه دوم



نمودار ۱۳. مدل سینتیکی نفوذ بین ذرات

جدول ۲. ثوابت مدل های سینتیکی

مدل سینتیکی شبه درجه اول			مدل سینتیکی شبه درجه دوم			مدل سینتیکی نفوذ ذرات		
q_e (mg/g)	K_1 (1/min)	R^2	q_e (mg/g)	K_2 (g/mg.min)	R^2	K_d	I	R^2
0/46	0/039	0/991	10/204	0/276	1	0/069	9/566	0/987

۴- نتیجه گیری

در این پژوهش الیاف پلی اتیلن ترفتالات پیوند خورده با مخلوط منومرهای ۲- هیدروکسی پروپیل متا کریلات و آکریلامید در حضور آغازگر مولد رادیکال آزاد بنزوئیل پراکسید سنتز شد و الیاف پیوند خورده جهت جذب سطحی محلول‌های گالیک اسید مورد استفاده قرار گرفت. آزمایش‌ها با استفاده از تکنیک بچ مورد بررسی قرار گرفت و غلظت باقی‌مانده در محلول توسط دستگاه طیف سنج UV اندازه گیری شد. نتایج نشان داد، بهترین pH و بیشترین مقدار جذب در $\text{pH}=10$ ثبت شد. در مقایسه با جاذب‌های معدنی که فرآیند جذب در آنها کند است جذب با الیاف اصلاح شده سریع انجام شد و بهترین زمان جذب ۸۰ دقیقه ثبت شد. نتایج حاصل از بررسی‌های ایزوترم‌های جذبی نشان داد بهترین و سازگارترین ایزوترم در توجیه فرآیند جذب، ایزوترم لانگمویر نوع دوم است. بهترین مدل سینتیکی که در توجیه فرآیند جذب نتایج مطلوبی به همراه داشت مدل سینتیکی شبه درجه دوم بود که در مقایسه با مدل‌های شبه درجه اول و نفوذ بین ذرات از ضریب همبستگی بهتر و بالاتری برخوردار بود

۵- مراجع

- [1] V.D.A.Cardoso, A.G.D.Souza, P.P.C.Sartorato, *Coll Surface. A: Physicochemical Engineering Aspects*, **248** (2004) 145.
- [2] M.Pandima Devi, C.Muthukumar, *Asian .J. Sci . Tech .* **4(8)** (2013) 1.
- [3] A.Taher, M.Farooquib , M.Farooqui, *International J. Green . Herbal Chem.* **1(2)** (2012) 201.
- [4] M.Wang, Y.She, Z.Xiao, J.Hu, R.Zhou, J.Zhang , *Carbohydrate. Pol.* **101** (2014) 812.
- [5] X.Jiang, Y.Sun, L.Liu, Sh.Wang, X.Tian, *Chem.Engin. J.* **235** (2014) 151.
- [6] Y. Liu, J.Wang, Y.Zheng, A.Wang, *Chem.Engin. J.* **184** (2012) 248.
- [7] M.Zouboulis, M. Loukidou, KA. Matis, J. Proc. *Biochem.* **39** (2004) 909.
- [8] K.S.Chen , Y.A. Ku, H.R.Lin, T.R. Yan, D.C.Sheu, *Appl.Pol. Sci.*, **100(1)** (2006) 803.
- [9] M. Karakisla, *J. Appl. Polym. Sci.*, **87 (8)** (2003) 1216.
- [10] R. Coskun, C. Soykan, M.Sacak, *Sep. Pur. Technol.*, **49 (2)** (2006) 107.
- [11] R.Coskun, *J. Appl. Polym. Sci.*, **75 (6)** (2000) 766.
- [12] R.Coskun, C.Soykan, *J. Polym. Res.*, **13 (1)** (2006) 1.
- [13] M.Arsalan, *J. Fibers. Polym.*, **11 (3)** (2010) 325.
- [14] M.Arsalan, *J. Fibers, Polym.*, **11 (2)** (2010) 177.
- [15] F. Azizinezhad, A.Borzou, M.Abdouss, M.Shabani, *Res..J.Pharm.Bio.Chem.Sci*, **4 (1)** (2013) 776.
- [16] Y.Uyama, K.Kato, Y.Ikada, *Adv.Pol. Sci.*, **137** (1998) 1.
- [17] K.Komari, *Asian. J.Chem.*, **22 (9)** (2010) 5765.
- [18] D.D.Milenkovic, P.V.Dašić, V.B.Veljko, *Ultrason. Sonochem.*, **16(4)** (2009) 557
- [19] H.Choi, M.Shin, D.Kim, Ch.Jeon, K.Baek, *Desalination*, **223** (2008) 290.

- [20] G.Zhang, L.Yi, H.Deng, P.Sun, *J. Environ.Sci*, **26** (2014) 1203.
- [21] P.Ramachandran¹, R.Vairamuthu, S.Ponnusam, *J. Engin.Appl. Sci*, **6 (11)** (2011) 15.
- [22] P.Braeuer, M.Salem, P.Harting, K.Quitzs, *J. Sep. Pur. Tech*, **12** (1997) 255.
- [23] N.Emad, J. Stephen, M. Gavin, *J. Chem. Eng*, **124** (2006) 103.
- [24] M.Khavarpour, G.Najafpour Darzi, S.F.Seyedtabar, S.M.Vahdat, *J.Appl.Chem* , **9(32)** (2015) 11.
- [25] M.M.Heravi, Z.Abasion, A.Morsali, P.Ardalan, T.Ardalan, *J.Appl.Chem*, **9(32)** (2015) 17.
- [26] F.Azizinezhad, *BEPLS*, **3(6)** (2014) 176.
- [27] A.Borzou, M.Kalbasi, M.Abdouss, A.Mohammadi, *Eur. J. Exp. Bio*, **4(2)** (2014) 136.
- [28] F.Azizinezhad, *Eur. J. Exp. Bio.*, **4(1)**, (2014) 543.
- [29] M.Y igitoglu, M.Ersoz, R.Coskun, O.Sanli, H.I.Unal, *J.Appl.Polym.Sci*, **68** (1998) 1935.
- [30] S. Milonjic, A. Ruvarac, M. Susic, *J. Thermochem. Acta*, **11** (1975) 261.
- [31] G.P.Gillman, *J. Aust. Soil. Res*, **17** (1979) 129.
- [32] D.J.Krishna, G.Bhattacharyya, *J. Appl. Clay. SD* ,**20** (2002) 295.
- [33] M.Mittal, L.Kurupa, J. Mittal, *J. Hazard. Mater*, **146** (2007) 243.
- [34] J.A. Otun, I.A.Oke, N.O.Olarinoye, D.B.Adie, C.A.Okuofa, *J. Appl. Sci*, **6** (2006) 2368.
- [35] R.I.Masal, Principle of Adsorption and Reaction on Solid Surfaces, *J. Wiley*, New York (1996).
- [36] E.Malkoc, Y.Nuhoglu, *J. Chem. Eng. Proc*,**46** (2007) 1020.
- [37] Z.Aksu, I.A.Isoglu, *Biochem*, **40** (2005) 3031.