

# کارایی روش پاسخ سطح در بهینه‌سازی حذف رنگزای مالاثیت سبز با استفاده از

## زئولیت طبیعی

فریده نبی زاده چیانه\*، بهرام محمدی، علیرضا اصغری

دانشکده شیمی، دانشگاه سمنان، سمنان، ایران

تاریخ پذیرش: ۹۵/۱۱/۲۴

تاریخ تصحیح: ۹۵/۱۱/۰۵

تاریخ دریافت: ۹۵/۰۹/۲۵

### چکیده

در این تحقیق، زئولیت طبیعی به‌عنوان یک جاذب ارزان و مؤثر برای حذف رنگزای مالاثیت سبز مورد بررسی قرار گرفت.  $pH$  اولیه، مقدار زئولیت، غلظت اولیه رنگزا و زمان واکنش به‌عنوان متغیرهای مستقل ورودی و بازده حذف رنگزا به‌عنوان تابع پاسخ در طراحی باکس بنکن در نظر گرفته شدند. نتایج نشان داد که مقادیر پارامترهای بهینه برای دستیابی به حداکثر بازده حذف رنگزا،  $pH$  اولیه ۹، مقدار جاذب ۰/۶۵ گرم، غلظت اولیه رنگزا ۴۵ میلی‌گرم بر لیتر و زمان واکنش ۸۰ دقیقه می‌باشند. بر اساس نتایج آنالیز واریانس مقدار بالای ضریب تعیین نشان می‌دهد که مقادیر آزمایشگاهی با مقادیر پیش‌بینی شده تطابق خوبی دارند. علاوه بر این آنالیز آماری نتایج نشان داد که در محدوده مطالعه شده،  $pH$  و مقدار زئولیت اثر قابل‌توجهی روی راندمان حذف رنگزا دارند.

واژگان کلیدی: مالاثیت سبز، روش پاسخ سطح، زئولیت، رنگبری.

### ۱- مقدمه

حضور مواد رنگزا در پسابها، به دلیل سمیت بالای آنها برای میکروارگانیسم‌های آبی و اثرات زیبا شناختی نامطلوب، خطرات جدی برای محیط‌زیست به دنبال دارد. این مواد از طریق منابع مختلف از جمله صنایع نساجی، لاستیک، کاغذ، چرم، لوازم آرایشی و بهداشتی، چاپ و غیره وارد آب و پساب می‌شوند. در حال حاضر، بیشتر از ۱۰۰۰۰ نوع ماده رنگزا با تولید سالانه بالغ بر  $۱۰^۵ \times ۷$  میلیون تن در دسترس است که حدود ۱۰٪-۵٪ این مواد به داخل آب به‌عنوان پساب تخلیه می‌شوند. پسابهای حاوی مواد رنگزا دارای محدوده دما و  $pH$  متغیر، اکسیژن موردنیاز شیمیایی و بیوشیمیایی بالا و شدت رنگ بالا هستند طوری که حضور مقادیر کم ماده رنگزا در آب کاملاً مشهود است [۱-۳].

مواد رنگزا نه تنها رنگ نامطلوبی به آب می‌دهند، بلکه در بعضی موارد خودشان ترکیبات مضرری بوده و می‌توانند توسط اکسایش، آبکافت یا واکنش‌های شیمیایی دیگر که در آب اتفاق می‌افتند، محصولات جانبی سمی تولید کنند. بنابراین توسعه روش‌های مقرون به صرفه برای حذف مواد رنگزا از پساب بسیار ضروری است.

روش‌های متعددی از جمله تصفیه بیولوژیکی، انعقاد و شناورسازی، انعقاد الکتریکی، الکتروفتون، فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته، فرآیندهای غشایی، تبادل یونی، تخریب فتوکاتالیستی و جذب سطحی برای حذف مواد رنگزا از پساب مورد استفاده قرار گرفته‌اند. در بین این روش‌ها فرآیند جذب سطحی با توجه به دارا بودن ویژگی‌های از قبیل هزینه سرمایه‌گذاری پایین، سهولت عملیات، انعطاف پذیری، سادگی طراحی و عدم تولید محصولات جانبی به‌عنوان روشی جذاب معرفی می‌شود [۴-۱۰].

ترکیبات آلومینو سیلیکات از قبیل خاک رس، زئولیت، بنتونیت و مونت موریلونیت به‌عنوان جاذب‌های پرکاربرد و ارزان برای کاربردهای زیست‌محیطی استفاده شده‌اند. زئولیت‌ها جاذب‌های طبیعی دارای ساختار متخلخل، ظرفیت جذب و مبادله یونی بالا، پایداری حرارتی و مکانیکی بالا و بار منفی هستند که از طریق مبادله کاتیونی خنثی می‌شوند، با توجه به این ویژگی‌ها زئولیت‌های طبیعی به‌عنوان جاذب برای اهداف زیست‌محیطی از قبیل حذف آمونیوم، فلزات سنگین و ترکیبات رنگی استفاده شده‌اند [۱۱-۱۳].

در این تحقیق، کارایی زئولیت طبیعی، در حذف رنگزای مالاشیت سبز<sup>۱</sup> (MG) مورد بررسی قرار گرفت. برای مدل‌سازی و بررسی اثر پارامترهای عملیاتی از روش پاسخ سطح<sup>۲</sup> (RSM) و باکس بنکن<sup>۳</sup> (BBD) استفاده شد، جهت مدل‌سازی فرآیند، پارامترهای عملیاتی مهم از قبیل pH اولیه محیط، غلظت زئولیت، غلظت اولیه رنگزا و زمان به‌عنوان متغیرهای مستقل و درصد بازده رنگبری (CR%) به‌عنوان پاسخ مطلوب مربوطه در نظر گرفته شدند. آنالیز واریانس<sup>۴</sup>، برازش آماری<sup>۵</sup> و آنالیز سطح پاسخ برای ایجاد تابع مابین متغیرها و پاسخ بکار گرفته شد و شرایط بهینه برای اجرای فرآیند تعیین و تأیید گردید.

## ۲- بخش تجربی

### ۲-۱- مواد مصرفی

تمام مواد مصرفی در این پژوهش بدون هیچ‌گونه خالص‌سازی مجدد مورد استفاده قرار گرفتند. زئولیت طبیعی سمنان بعد از عمل خرد کردن و جدا کردن بامش بندی ۶۰ تو سواک به‌عنوان جاذب مورد استفاده قرار گرفت. برای تنظیم pH محلول‌ها،

1. Malachite green

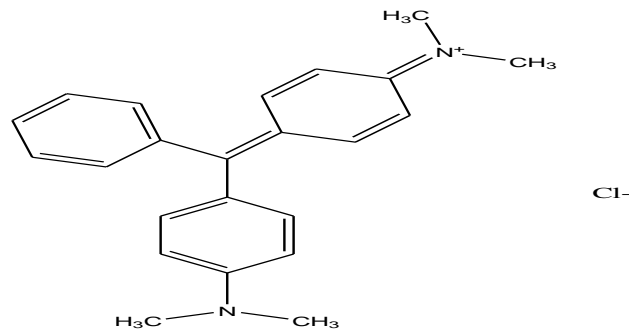
2. Response surface methodology

3. Box behnken design

4. Variance analysis

5. Statistical regression

از هیدروکلریک اسید و سدیم هیدروکسید با درجه تجزیه‌ای ساخت شرکت مرک آلمان استفاده گردید. از رنگزای مالا شیت سبز (MG) با فرمول بسته  $(C_{23}H_{25}ClN_2)$ ، شماره‌ی ایندکس رنگ<sup>۱</sup> ۲-۶۴-۵۶۹ و جرم مولکولی ۳۶۴/۹۱۱ ساخت شرکت مرک آلمان به‌عنوان آلاینده نمونه استفاده شد. طیف جذب رنگزای مالا شیت سبز دارای باند اصلی در طول موج ۶۱۸ nm است. ساختار رنگزا در شکل (۱) نشان داده شده است.



شکل (۱): ساختار رنگزای مالا شیت سبز

## ۲-۲- دستگاه‌های مورد استفاده

دستگاه اسپکتروفوتومتر مرئی-فرابنفش<sup>۲</sup> (UV-Vis) مدل UV-1650PC ساخت شرکت SHIMADZU ژاپن برای اندازه‌گیری غلظت مالا شیت سبز در مراحل آزمایش استفاده گردید. برای اندازه‌گیری pH محلول‌ها از دستگاه pH متر ساخت شرکت BEL مدل PHS-3BW ایتالیا استفاده گردید. از دستگاه همزن مغناطیسی مدل D110 ساخت شرکت Alfa ایران برای هم زدن نمونه‌ها و دستگاه سانتریفوژ مدل EBA ساخت شرکت Hettich آلمان جهت تسریع در ته‌نشینی محلول حاوی جاذب استفاده گردید.

## ۳-۲- طراحی آزمایش‌ها

طراحی آزمایش‌ها با روش باکس بنکن (BBD) توسط نرم‌افزار Minitab<sup>۱۶</sup> انجام شد. ورودی نرم‌افزار پارامترهای مورد بررسی و خروجی آن میزان رنگبری است. برای بهینه‌سازی فرآیند، چهار فاکتور pH، مقدار زئولیت (g)، غلظت رنگزا (mg/L) و زمان (دقیقه) به‌عنوان متغیرهای مستقل و ورودی RSM استفاده شدند که مقادیر کدبندی شده و واقعی این متغیرها در جدول (۱) آورده شده است.

<sup>1</sup> Color index

<sup>2</sup> Ultraviolet-visible spectrophotometer

جدول ۱: مقادیر واقعی و کدبندی شده متغیرهای مستقل ورودی برای حذف رنگزای MG

سطح واقعی و کدگذاری شده			متغیر
+۱	۰	-۱	
۹	۶	۳	pH اولیه (X <sub>1</sub> )
۱/۲	۰/۶۵	۰/۱	مقدار زئولیت (g/L) (X <sub>2</sub> )
۷۰	۴۵	۲۰	غلظت رنگزا (mg/L) (X <sub>3</sub> )
۸۰	۵۰	۲۰	زمان (دقیقه) (X <sub>4</sub> )

بازده حذف رنگ (CR%) به تغییرات پارامترهای موردبررسی بستگی دارد، این کمیت‌ها را متغیر وابسته نیز می‌نامند که به‌عنوان پاسخ<sup>۱</sup> به نرم‌افزار ارائه شدند. ۲۷ آزمایش توسط نرم‌افزار طراحی شد که شامل ۲<sup>k</sup> آزمایش اصلی (k تعداد پارامترها) (۲<sup>۴</sup>=۱۶)، ۲k (۲×۴=۸) آزمایش محوری و ۳ آزمایش تکراری (نقاط مرکزی) برای در نظر گرفتن خطای سیستم بودند. مقادیر کدبندی شده برای محاسبات آماری بر اساس رابطه‌های (۳-۱) بدست آمده‌اند.

$$X_j = \frac{u_j - u_j^0}{\Delta u_j} \quad (1)$$

$$u_j^0 = \frac{(\max(u_j) + \min(u_j))}{2} \quad (2)$$

$$\Delta u_j = \frac{(\max(u_j) - \min(u_j))}{2} \quad (3)$$

X<sub>j</sub> متغیر کدگذاری شده فاکتور u می‌باشد. max(u<sub>j</sub>) و min(u<sub>j</sub>) به ترتیب سطح بالا و پایین فاکتور زام می‌باشد. طراحی آزمایش‌ها و آنالیز داده‌های آزمایشگاهی توسط نرم‌افزار Minitab ۱۶ انجام شد.

## ۲-۴- روش انجام آزمایش‌ها

ابتدا، مقادیر pH، مقدار زئولیت و غلظت رنگزا در هر آزمایش مطابق با مقادیر ارائه شده توسط RSM تنظیم شدند (جدول (۲)). بسته به نوع آزمایش از اسیدکلریدریک و سدیم هیدروکسید به منظور تنظیم pH استفاده شد. در زمان‌های ذکر شده در جدول (۲) نمونه برداری انجام شد. به منظور تعیین بازدهی فرآیند، ابتدا نمونه‌ها سانتریفیوژ و سپس طیف جذبی نمونه‌ها با

<sup>۱</sup>. Response

استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر بررسی شده و با اندازه گیری جذب اولیه ( $A_0$ ) و در هر زمان محلول ( $A_t$ )، در طول موج بیشینه در ناحیه مرئی و تبدیل مقادیر جذب به غلظت با استفاده از نمودار کالیبراسیون، می توان بازده حذف رنگزا را بدست آورد. در رابطه (۴)، CR بیانگر بازده حذف است.

$$CR\% = \frac{(C_0 - C)}{C_0} \times 100 \quad (4)$$

جدول ۲: ماتریس طراحی آزمایشات BBD و پاسخ های مربوطه برای حذف رنگزای MG

شماره آزمایش	pH اولیه	مقدار زئولیت (g)	غلظت رنگزا (mg/L)	زمان (دقیقه)	CR% مشاهده شده	پیش بینی شده
۱	۰	۰	۰	۰	۸۹/۲۱	۸۷/۱۶
۲	۰	۰	-۱	۱	۸۵/۵۵	۸۴/۸۱
۳	۰	۰	۰	۰	۸۶/۹۵	۸۷/۱۶
۴	۰	۱	۱	۰	۸۶/۹۹	۸۵/۵۷
۵	۰	۰	-۱	-۱	۸۶/۷۰	۸۷/۳۱
۶	۰	۱	۰	۱	۹۳/۰۸	۹۴/۰۳
۷	۰	۱	-۱	۰	۹۴/۲۷	۹۳/۲۹
۸	۱	-۱	۰	۰	۹۳/۰۴	۹۲/۰۸
۹	۰	-۱	۱	۰	۷۰/۶۱	۷۱/۴۱
۱۰	۰	۰	۱	۱	۸۷/۳۵	۸۶/۶۲
۱۱	۱	۱	۱	۰	۹۶/۶۵	۹۶/۵۵
۱۲	۰	-۱	۰	۱	۷۲/۲۴	۷۱/۳۹
۱۳	۱	۰	-۱	۰	۹۵/۰۴	۹۴/۵۲
۱۴	-۱	۰	۰	-۱	۵۸/۶۳	۵۶/۶۴
۱۵	۰	-۱	-۱	۰	۶۵/۹۹	۶۷/۲۳
۱۶	۰	-۱	۰	-۱	۷۳/۵۱	۷۲/۸۴
۱۷	-۱	-۱	۰	۰	۳۰/۹۸	۳۱/۴۰
۱۸	-۱	۰	-۱	۰	۵۶/۵۰	۵۶/۸۷
۱۹	۱	۰	۰	-۱	۹۷/۲۱	۹۷/۴۹
۲۰	-۱	۰	۰	۱	۵۷/۵۸	۵۷/۱۲
۲۱	۰	۱	۰	-۱	۸۹/۲۹	۹۰/۴۲
۲۲	-۱	۰	۱	۰	۵۰/۵۰	۵۱/۳۰
۲۳	۱	۱	۰	۰	۹۳/۵۱	۹۲/۹۷
۲۴	۱	۰	۰	۱	۹۷/۳۰	۹۹/۱۷
۲۵	۰	۰	۰	۰	۸۵/۳۴	۸۷/۱۶
۲۶	-۱	۱	۰	۰	۶۹/۹۰	۷۰/۷۴
۲۷	۰	۰	۱	-۱	۸۱/۳۴	۸۱/۹۶

## ۳- نتایج و بحث

## ۳-۱- آنالیز مدل پیشنهادی برای حذف رنگزای MG

برای دستیابی به شرایط بهینه برای حذف رنگزای MG با استفاده از زئولیت طبیعی، طراحی آزمایش به‌عنوان تابعی از پارامترهای اصلی انجام شد. رفتار سیستم را می‌توان با استفاده از معادله درجه دوم توضیح داد (معادله (۵)). در این رابطه  $x_i$  و  $x_j$  متغیرهای مستقل،  $b_0$  ضریب ثابت،  $b_i$ ،  $b_{ij}$  و  $b_{ij}$  به ترتیب ضرایب خطی<sup>۱</sup>، درجه دوم و جملات برهم‌کنش<sup>۲</sup> هستند.

$$Y = b_0 + \sum b_i x_i + \sum b_{ii} x_i^2 + \sum b_{ij} x_i x_j \quad (5)$$

نتایج آزمایشگاهی و پیش‌بینی شده برای تصفیه پساب حاوی رنگزای MG در جدول (۲) آورده شده است. بر اساس این نتایج، می‌توان یک مدل درجه دوم برای فرآیند، بر اساس فاکتورهای کدبندی شده ارائه و به‌صورت معادله چندجمله‌ای درجه دوم (۶) بیان کرد.

$$Y = 87/16 + 20/72 x_1 + 10/05 x_2 - 0/88 x_3 + 0/54 x_4 - 9/96 x_{11} - 5/39 x_{22} - 2/38 x_{33} + 0/40 x_{44} - 9/61 x_{12} + 1/90 x_{13} + 0/30 x_{14} - 2/97 x_{23} + 1/26 x_{24} + 1/79 x_{34} \quad (6)$$

برای بررسی درستی مدل، اهمیت و دقت آن، آنالیز واریانس<sup>۳</sup> (ANOVA) انجام شد و نتایج حاصل برای رنگزای MG در جدول (۳) ارائه شد. اهمیت آماری مدل‌های برازش درجه دوم با استفاده از آزمون عدم انطباق<sup>۴</sup> (LOF)، ضریب تعیین<sup>۵</sup> و ضریب تعیین تعدیل‌یافته<sup>۶</sup> بین مقادیر آزمایشگاهی و پیش‌بینی شده ( $R^2_{Adj}$ ,  $R^2$ ) تعیین می‌شود.

جدول ۳: آنالیز واریانس مدل درجه دوم رنگزای MG

p-value	F- value	Adj MS	Adj SS	Seq SS	درجه آزادی	Source of variations
0/000	224/7	535/26	7493/6	7493/6	14	مدل
		2/38	21/59	21/59	12	باقیمانده
0/785	0/56	2/10	21/03	21/03	10	عدم انطباق
		3/78	7/56	7/56	2	خطای خالص
				7522/19	26	مقادیر کلی

<sup>1</sup>. Linear coefficient

<sup>2</sup>. Interaction terms

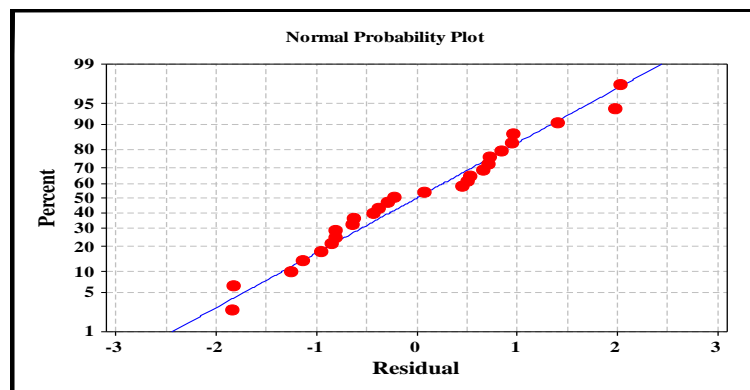
<sup>3</sup>. Analysis of variance

<sup>4</sup>. Lack of fit

<sup>5</sup>. Coefficient of determination

<sup>6</sup>. Adjusted coefficient of determination

نتایج ارائه شده در جدول نشان می دهد، مقدار p-value برای مدل ارائه شده کمتر از ۰/۰۵ می باشد که تأیید می کند مدل ارائه شده می تواند به خوبی نتایج آزمایشگاهی را پیش بینی نماید. پارامتر دیگری که برای ارزیابی مدل مورد استفاده قرار می گیرد تست عدم انطباق (LOF) می باشد، این تست در صورتی معنی دار است که مقدار p-value مربوطه بزرگ تر از ۰/۰۵ (در سطح معنی دار ۰/۰۵) باشد. با توجه به مقدار p-value ارائه شده در جدول برای حذف رنگزای MG تست عدم انطباق معنی دار نمی باشد. مقادیر  $R^2$  و  $R^2_{Adj}$  مدل به ترتیب ۰/۹۹۶۲ و ۰/۹۹۱۸ می باشند. مقادیر بالای ضریب تعیین و ضریب تعیین تعدیل یافته نشان می دهند که مدل انطباق بسیار خوبی با نتایج آزمایشگاهی دارد و در فرآیند جذب ۰/۹۹۶۲ تغییرات حذف رنگزا با داده های آزمایشگاهی توضیح داده می شود. علاوه بر معیارهای ذکر شده برای ارزیابی دقت مدل، اختلاف بین پاسخ های پیش بینی شده و تجربی (باقیمانده ها) برای بررسی دقت مدل از لحاظ گرافیکی استفاده شده است. باقیمانده ها به عنوان تغییرات برازش نشده توسط مدل در نظر گرفته می شوند [۱۴-۱۶]. نمودار باقیمانده برای ارزیابی توزیع نرمال باقیمانده ها در شکل (۲) آورده شده است. نقاط در نمودار باقیمانده ها خط راستی تشکیل داده اند که تأیید می کنند باقیمانده ها به صورت نرمال توزیع شده اند.



شکل (۲): نمودار باقیمانده ها برای حذف رنگزای MG با استفاده از زئولیت طبیعی

به منظور تعیین اهمیت و اثر ترم های موجود در مدل ارائه شده از مقادیر توزیع تست t-Students و مقادیر p-value مربوط به آنها استفاده شد. بر اساس نتایج حاصل از تست ANOVA برای مدل پیشنهادی مشخص شد که تمام جملات خطی به جز ترم های غلظت اولیه رنگزا و زمان، ترم های توان دوم به جزء ترم (زمان) و (زمان) و برهم کنشی، جمله های مربوط به برهم کنش  $m \times pH$  و  $C \times pH$ ،  $C \times m$  و  $C \times T$  مقدار p-value کمتر از ۰/۰۵ دارند یعنی در سطح ۰/۰۵ معنی دار می باشند؛ بنابراین، می توان بر اساس نتایج حاصل از تست ANOVA و حذف ضرایب با p-value بزرگ تر از ۰/۰۵ رابطه (۶) را به صورت (۷) دوباره بازنویسی نمود.

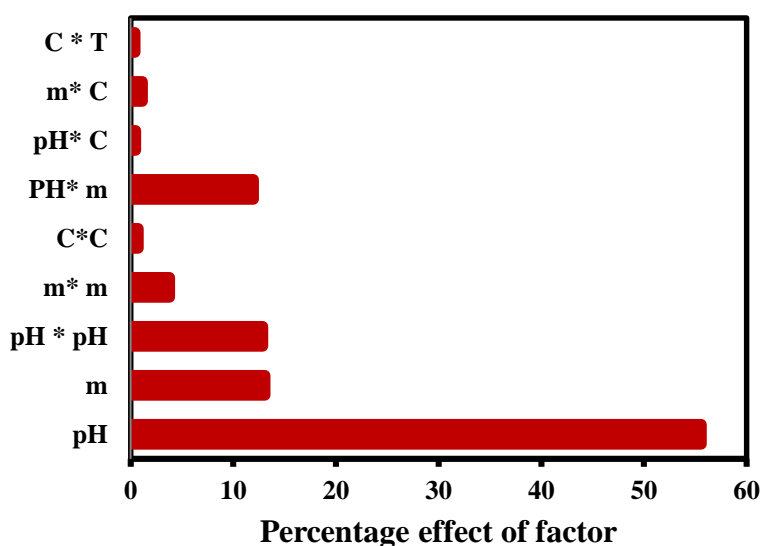
$$Y = 87/16 + 20/72 X_1 + 10/05 X_2 - 9/96 X_{11} - 5/39 X_{22} - 2/38 X_{33} - 9/61 X_{12} + 1/90 X_{13} + 2/97 X_{23} + 1/79 X_{34} \quad (7)$$

همچنین معنی‌دار بودن هر فاکتور را می‌توان از طریق محاسبه درصد اثر هر ضریب روی پاسخ محاسبه کرد که به‌عنوان نمودار

پارتو<sup>۱</sup> شناخته شده است. درصد اثر هر فاکتور ( $P_i$ ) را می‌توان با استفاده از رابطه (۸) محاسبه کرد [۱۷].

$$P_i = \frac{b_i^2}{\sum_{i=1}^n b_i^2} \quad (8)$$

نمودار پارتو برای فرآیند جذب در شکل (۳) آورده شده است.



شکل (۳): نمودار پارتو برای حذف رنگزای MG با استفاده از تولید طبیعی

همان‌طور که از شکل (۳) مشخص است فاکتورهای pH (۵۵/۳۷)، زمان (۲۷/۳۱)، مقدار ژئولیت (۱۳/۰۳) و  $pH \times pH$

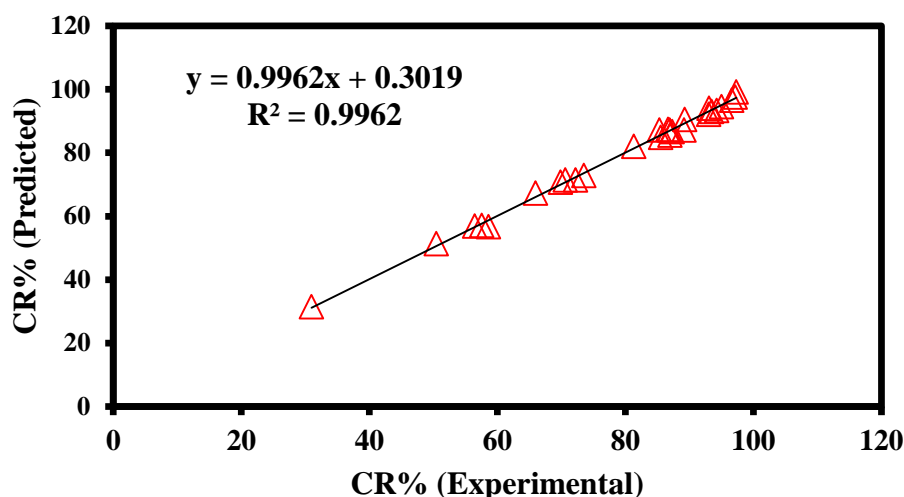
(۱۲/۷۹) و  $pH \times m$  (۱۲/۹۰) تأثیرگذارترین پارامترها روی حذف رنگزای MG می‌باشند. مقادیر واقعی و پیش‌بینی شده از

متغیر پاسخ (بازده حذف رنگ) برای فرآیند در شکل (۴) آورده شده است مقادیر بالای  $R^2$  به این معنی است که نتایج

آزمایشگاهی توافق خوبی با نتایج پیش‌بینی شده دارند [۱۷].

<sup>1</sup> . Pareto plot

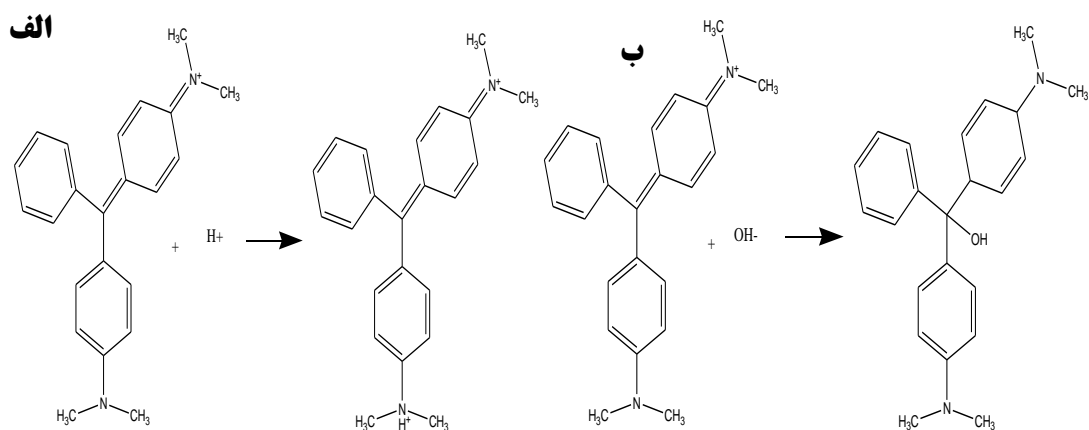




شکل (۴): مقادیر آزمایشگاهی متغیر پاسخ نسبت به مقادیر پیش‌بینی شده آن برای حذف رنگزای MG

### ۳-۲- اثر پارامترهای عملیاتی روی حذف رنگزای MG

برهم‌کنش مقدار ژئولیت و pH بر روی بازده حذف رنگزا در شکل (۵ الف)) نشان داده شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، با افزایش pH میزان حذف رنگزا افزایش می‌یابد و در محدوده pH=۹ ماکزیمم حذف اتفاق می‌افتد. در مقادیر pH پایین، رنگزای مالاشیت سبز به فرم پروتونه می‌باشد شمای (۱ الف)). در فرم پروتونه بار مثبت مولکول زیاد است و به همین دلیل با توجه به مثبت بودن سطح جاذب در pH های پایین احتمال جذب رنگزا روی سطح ژئولیت کاهش می‌یابد. با افزایش مقدار pH سطح جاذب از نظر بار الکتریکی منفی است و رنگزا به فرم دپروتونه درمی‌آید (شمای (ب))، بنابراین با افزایش تراکم بار منفی در سطح جاذب، میزان ماده رنگزای جذب‌شده در سطح جاذب افزایش یافته و درصد حذف افزایش می‌یابد [۱۸]. همچنین، نتایج ارائه شده در شکل (۵ الف)) نشان می‌دهد که با افزایش مقدار جاذب، درصد حذف رنگزا افزایش می‌یابد که به دلیل افزایش جایگاه‌های خالی و اشغال نشده با افزایش مقدار جاذب می‌باشد. به‌طور کلی میزان جذب سطحی رنگزاها با افزایش مقدار جاذب افزایش می‌یابد زیرا مکان‌های جذبی بیشتری در دسترس خواهد بود. در مقادیر کم جاذب احتمالاً به دلیل ناکافی بودن جایگاه‌های فعال و اشباع شدن سطح جاذب درصد حذف رنگزا کاهش می‌یابد [۱۹, ۲۰].

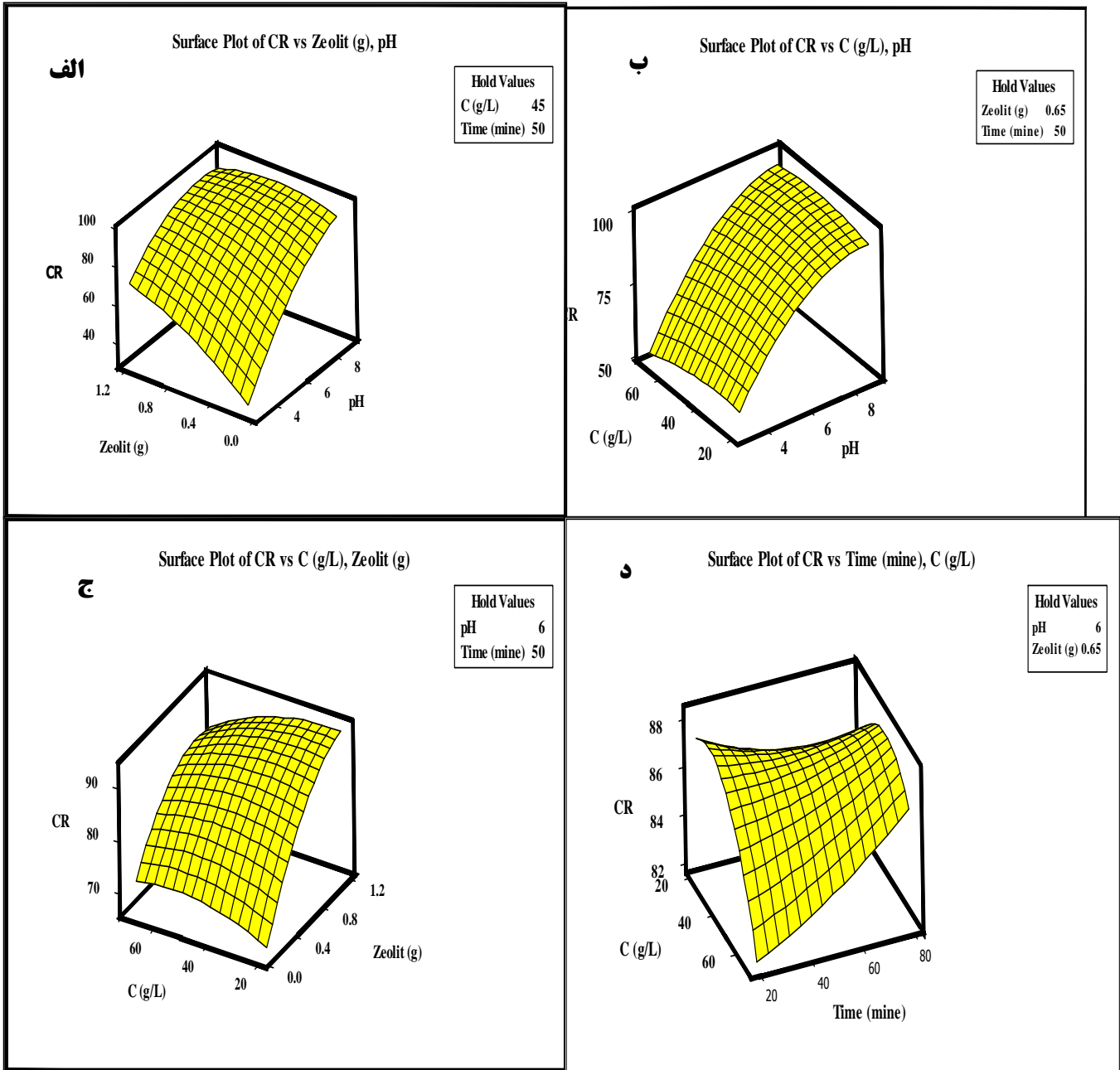


شمای ۱: تبدیل مولکول رنگزا به فرم الف) پروتونه آن در محیط اسیدی، ب) دپروتونه آن در محیط بازی

در شکل (۵ ب)) مشخص است که با افزایش غلظت اولیه رنگزا، در یک مقدار جاذب مشخص میزان حذف کاهش می‌یابد که به دلیل افزایش مولکول‌های رنگزا با افزایش غلظت رنگزا و ثابت بودن سایت‌های فعال جذبی می‌باشد، به عبارت دیگر، با افزایش غلظت اولیه رنگزا، نسبت سایت‌های فعال به مولکول‌های ماده رنگزا کاهش یافته و منجر به کاهش راندمان حذف می‌گردد [۲۰].

در شکل (۵ ج)) بررسی تأثیر برهمکنش مقدار زئولیت و غلظت اولیه رنگزا نشان می‌دهد که با افزایش مقدار جاذب به دلیل افزایش سایت‌های فعال جذبی راندمان حذف رنگزا افزایش می‌یابد و با افزایش غلظت اولیه رنگزا میزان حذف کاهش می‌یابد که دلایل آن در بالا توضیح داده شد.

شکل (۵ د)) اثر غلظت اولیه رنگزا و زمان واکنش را روی راندمان حذف نشان می‌دهد، از شکل مشخص است که با افزایش زمان واکنش راندمان حذف رنگزا افزایش می‌یابد؛ زیرا با گذشت زمان با تجمع مولکول‌های رنگزا در جایگاه‌های خالی و اشغال نشده غلظت رنگزا کاهش و میزان رنگبری افزایش می‌یابد [۲۱].



شکل (۵): منحنی پاسخ سطح برای حذف رنگزای MG برحسب الف) pH و مقدار زئولیت در مقادیر ثابت غلظت اولیه رنگزا (۴۵ گرم بر لیتر) و زمان

(۵۰ دقیقه، ب) غلظت اولیه رنگزا و pH در مقادیر ثابت زئولیت (۰/۶۵ گرم) و زمان (۵۰ دقیقه، ج) مقدار زئولیت و غلظت اولیه رنگزا در مقادیر ثابت

pH (۶) و زمان (۵۰ دقیقه، د) زمان و غلظت اولیه رنگزا در مقادیر ثابت pH (۶) و زئولیت (۰/۶۵ گرم)

## ۳-۳- تعیین شرایط بهینه برای حذف رنگزای MG

هدف اصلی از طراحی آزمایش و بهینه‌سازی دستیابی به مقادیر بهینه متغیرها برای رنگبری پساب می‌باشد. نتایج بهینه‌سازی در جدول (۴) آورده شده است. برای تأیید نتیجه حاصل از پیش‌بینی مدل، آزمایشی در شرایط بهینه انجام شد. نتیجه آزمایش، توافق خوبی با مقدار حذف رنگزای پیش‌بینی شده توسط مدل در شرایط بهینه دارد.

جدول (۴) مقادیر بهینه پارامترها و متغیر پاسخ در شرایط بهینه حذف رنگزای MG

مشاهده شده CR%	پیش‌بینی شده CR%	زمان (دقیقه)	غلظت اولیه رنگزا (mg/L)	مقدار زئولیت (g)	pH اولیه
۱۰۰	۹۹/۱۷	۸۰	۴۵	۰/۶۵	۹

## ۴- نتیجه گیری

نتایج حاصل از این تحقیق نشان داد که استفاده از زئولیت طبیعی به‌عنوان یک جاذب برای حذف رنگزای MG روشی کارآمد و مؤثر می‌باشد. همچنین، طراحی آزمایش‌ها، توسط یک روش آماری پاسخ سطح به نام باکس بنکن صورت پذیرفت و در همین راستا مدل‌سازی فرآیند و بهینه‌سازی پارامترهای عملیاتی به انجام رسید. در مدل ریاضی پیشنهادی برای حذف رنگزای MG با استفاده از زئولیت طبیعی، جمله‌های مربوط به برهم‌کنش pH - مقدار زئولیت، pH - غلظت اولیه رنگزا، مقدار جاذب - غلظت اولیه رنگزا و زمان - غلظت اولیه رنگزا در عملکرد مدل نقش مهمی ایفا می‌کنند. شرایط بهینه پیشنهاد شده برای حذف رنگزای MG، pH اولیه ۹، مقدار زئولیت ۰/۶۵ گرم، غلظت اولیه رنگزا ۴۵ میلی‌گرم بر لیتر و زمان واکنش ۸۰ دقیقه می‌باشد.

## ۵- تقدیر و تشکر

نویسندگان مقاله از حمایت‌های مالی معاونت پژوهشی و فناوری دانشگاه سمنان صمیمانه تشکر می‌نمایند.

## ۶- مراجع

- [1] I. Tan, B. Hameed, A. Ahmad. *Chem. Eng. J.*, **127** (2007) 111-119.
- [2] P. Kumar, R. Agnihotri, K.L. Wasewar, H. Uslu, C. Yoo. *Desalination. Water. Treat.*, **50** (2012) 226-244.
- [3] Z.-Y. Yao, J.-H. Qi, L.-H. Wang. *J. Hazard. Mater.*, **174** (2010) 137-143.
- [4] S.S. Moghaddam, M.A. Moghaddam. M. Arami. *J. Hazard. Mater.*, **175** (2010) 651-657.
- [5] A. Aleboeyeh, N. Daneshvar, M. Kasiri. *Chem. Eng. Process*, **47** (2008) 827-832.
- [6] F. Yu, C. Li, S. Kang. *Environ. Technol.*, **26** (2005) 537-544.
- [7] M. Kasiri, A. Khataee. *Environ. Technol.*, **33** (2012) 1417-1425.

- [8] N. Harruddin, N. Othman, A. Lim Ee Sin, R.N. Raja Sulaiman. *Environm. Technol*, **36** (2015) 271-280.
- [9] S. Raghu, C.A. Basha. *J. Hazard. Mater*, **149** (2007) 324-330.
- [10] E. Bizani, K. Fytianos, I. Poullos, V. Tsiridis. *J. Hazard. Mater*, **136** (2006) 85-94.
- [11] D. Karadag, E. Akgul, S. Tok, F. Erturk, M.A. Kaya, M. Turan. *J. Chem. Eng. Data*, **52** (2007) 2436-2441.
- [12] S.K. Alpat, Ö. Özbayrak, Ş. Alpat, H. Akçay. *J. Hazard. Mater*, **151** (2008) 213-220.
- [13] S.A. Kim, S. Kamala-Kannan, K.-J. Lee, Y.-J. Park, P.J. Shea, W.-H. Lee, H.-M. Kim, B.-T. Oh. *Chem. Eng. J*, **217** (2013) 54-60.
- [14] S.M. Beck, H. Sabarez, V. Gaukel, K. Knoerzer. *Ultrason. Sonochemi*, **21** (2014) 2144-2150.
- [15] W. Haddar, N. Baaka, N. Meksi, I. Elksibi, M.F. Mhenni. *J. Clean. Prod*, **66** (2014) 546-554.
- [16] A. Amani-Ghadim, S. Aber, A. Olad, H. Ashassi-Sorkhabi. *Chem. Eng. Process: Pro.Int*, **64** (2013) 68-78.
- [17] A.R. Khataee, M. Zarei, L. Moradkhannejhad. *Desalination*, **258** (2010) 112-119.
- [18] B. Samiey, A.R. Toosi. *Bull. Korean. Chem. Soc*, **30** (2009) 2051-2056.
- [19] N. Esfandiar, B. Nasernejad, T. Ebadi. *J. Ind. Eng. Chem*, **20** (2014) 3726-3736.
- [20] N. Sapawe, A.A. Jalil, S. Triwahyono, M.I.A. Shah, R. Jusoh, N.F.M. Salleh, B.H. Hameed, A.H. Karim. *Chem. Eng. J*, **229** (2013) 388-398.
- [21] R. Dutta, T.V. Nagarjuna, S.A. Mandavgane, J.D. Ekhe. *Ind. Eng.Chem. Res*, **53** (2014) 18558-18567.

