



Environment and Water Engineering

Homepage: www.jewe.ir



ISSN: 2476-3683

Research Paper

Adsorption of Methylene Blue from Aqueous Media Using Carbon-Alginate Granules

Maryam Fayazi^{1*}

¹Assist. Professor, Department of Environment, Institute of Science and High Technology and Environmental Sciences, Graduate University of Advanced Technology, Kerman, Iran

Article information

Received: November 30, 2021

Revised: January 15, 2022

Accepted: January 15, 2022

Keywords:

Alginate

Absorption

Activated Carbon

Dye

Polyethylene Terephthalate

*Corresponding author:

m.fayazi@kgut.ac.ir



Abstract

In this study, the adsorption of methylene blue (MB) from an aqueous solution on copper-alginate (Cu(II)-A) granules containing activated carbon derived from polyethylene terephthalate (PETAC) with different experimental conditions was investigated. The composition and structure of the granules were characterized by SEM and BET methods. The effect of various variables including dye concentration, pH, adsorbent amount, and contact time was investigated by batch method. Equilibrium data were evaluated using Langmuir, Freundlich, and Temkin isotherms. The adsorption isotherm fits well with the Langmuir model (0.9973), which shows that the MB dye adsorption on the granules is homogeneous. The maximum adsorption capacity under optimal conditions for the removal of MB was 86.96 mg/g. Kinetic data were analyzed using the first-order and second-order Lagergren equations. The quasi-second-order model showed the best fit for the synthetic studies ($R^2 = 0.9997$). In addition, no obvious decrease was observed after up to five adsorption cycles, indicating that the PETAC/Cu (II) -A adsorbent has good stability and reusability. Overall, the results show that the prepared granules can be used as an efficient adsorbent for the treatment of colored effluents.

© Authors, Published by **Environment and Water Engineering** journal. This is an open-access article distributed under the CC BY (license <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).



Introduction

Various pollutants such as dyes and heavy metal ions following the arrival to ecosystems lead to serious global environmental pollution. Large amounts of dyes are used in the textile, leather, paper, rubber, cosmetics, and synthetic detergents industries. Dye effluents discharged from mentioned industries possess serious environmental and health problems. Colored substances like dyes usually have a synthetic origin and complex aromatic molecular structure which makes them highly resistant to

biodegradation with conventional physical and biological oxidation treatment processes. Methylene blue (3, 7-Bis (dimethylamino) phenothiazin-5-ium chloride, MB) is a water-soluble organic dye, widely used in textile industries and is the most commonly used substance for dyeing cotton, wood, and silk. However, MB can cause eye burns which may be responsible for permanent injury to the eyes of humans and animals. It can result in nausea, diarrhea, vomiting, breathlessness, and mental confusion. Accordingly, the effective removal of MB in the environmental area has attracted



considerable attention. Dyes cannot be completely removed by means of conventional biological treatment processes, such as activated sludge and anaerobic digestion; due to their low biodegradability, nearly 90% of reactive dyes remain unchanged after undergoing an activated sludge process. Several physicochemical technologies including coagulation/flocculation, membrane separation, ion exchange, chemical oxidation, electrochemical techniques, and photocatalysis protocols have been studied for the purpose of removing dye from wastewater. Compared with these methods, the adsorption of dyes from an aqueous solution has proven to be an excellent approach to treating effluents as well as a cost-effective technique. Among different adsorbents, activated carbons (ACs) have received significant attention due to their unique properties such as chemical stability, low price, high specific surface area, and outstanding adsorption capacity.

Material and Methods

Sodium alginate (Na-A) and cupric chloride dihydrate ($\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 99%) were purchased from Merck and methylene blue was supplied from Sigma Aldrich.

The adsorption of methylene blue from aqueous solution on copper (II)-alginate (Cu(II)-A) granules containing activated carbon derived from polyethylene terephthalate (PETAC/ Cu(II)-A) with different experimental conditions was investigated. The composition and structure of the PETAC/ Cu(II)-A granules were characterized by scanning electron microscopy (SEM) and the N_2 adsorption-desorption test. To study the effect of important parameters like the initial dye concentration, pH, adsorbent amount, and contact time on the adsorptive removal of MB, batch experiments were conducted. For each experimental run, 10 mL of MB solution at a specified optimum concentration and pH was mixed completely with adsorbent over a fixed time. The residual concentration of MB in the solution was monitored every 5 min intervals using the UV-vis spectrophotometer at 655 nm (λ_{max} of the dye).

Results

SEM analysis was performed to study the structure and morphology of the prepared granules. SEM images of the PETAC and PETAC/ Cu(II)-A sample are shown in Fig. 1. As shown in Fig. 1a, it can be seen that the carbon particles with a mean dimension of

several tens of micrometers were prepared. The outer surface of PETAC/ Cu(II)-A granules displays a characteristic rough and porous structure.

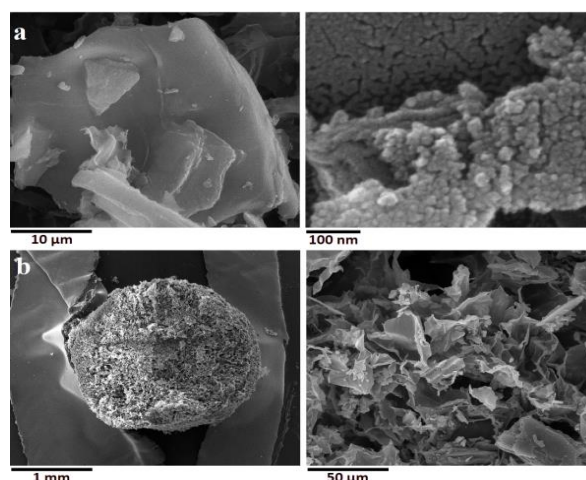


Fig. 1: a) FE-SEM images of PETAC and b) PETAC/ Cu-A

Fig. 2 illustrates the N_2 adsorption and desorption isotherms of the PETAC/ Cu(II)-A . The typical type I isotherm of the Brunauer-Deming-Deming-Teller (BDDT) classification system is observed for prepared product.

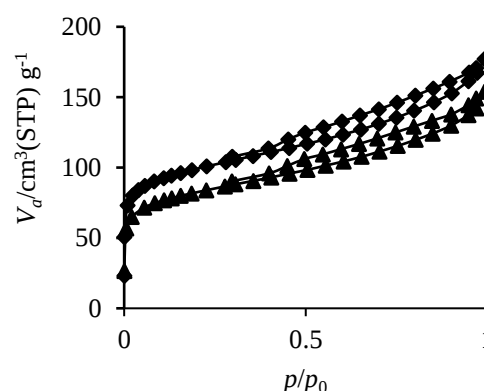


Fig. 2 N_2 adsorption/desorption isotherms of the prepared products

Adsorption properties and equilibrium parameters of each isotherm model indicate the interaction of adsorbent-adsorbate and give comprehensive information about the nature of the interaction. Equilibrium data were evaluated by the well-known Langmuir, Freundlich, and Tamkin isotherms. The Langmuir model best describes the MB dye adsorption, which shows that the MB dye adsorption on the granules is homogeneous. The maximum adsorption capacity under optimal conditions (adsorbent: 0.04 g, contact time: 3 h, $\text{pH} \sim 6$, temperature: 25°C) for the removal of MB was 86.96 mg/g. The

corresponding isotherm parameters from models are listed in Table 1.

Table 1 Calculated parameters of adsorption isotherm models of MB on PETAC/Cu(II)-A

Model	Parameters		
Langmuir	K_L (l/mg)	q_m (mg/g)	R^2
	0.1742	86.96	0.9973
Freundlich	K_f (mg/g (l/mg) ^{1/n})	n	R^2
	20.011	3.23	0.9542
Temkin	B_t	K_t	R^2
	9.453	22.34	0.8618

To explore the potential of using a solid adsorbent such as PETAC/Cu(II)-A adsorbent, it is very important to investigate the kinetics of the adsorption. This involves studying the adsorption rate to determine the effects of various factors on the process. This usually occurs through careful monitoring of the experimental conditions that affect the speed of the adsorption process, until it reaches equilibrium. The kinetic data obtained is then used to develop appropriate mathematical models to describe the interactions between the adsorbate molecule and the solid adsorbent. Two of the most widely used kinetic models, i.e. Lagergren pseudo-first-order equation and pseudo-second-order equation were used to research the adsorption kinetic behavior of MB onto PETAC/Cu(II)-A adsorbent. The consistency between the experimental and the model-predicted data was investigated by calculating correlation coefficients (R^2 values closer to 1 means more applicability of the model) and by observing the extent to which the experimental adsorption capacity is close to the theoretical value. The linear correlation coefficient value (R^2) for the pseudo-second-order adsorption model has a high value (>99%) for PETAC/Cu(II)-A adsorbent. the best fit of the pseudo-second-order kinetic model in the present system ($R^2 = 0.9997$), indicates that MB adsorption is limited by the chemical adsorption process.

The cycle performance of adsorbent is critical for practical application. Reusability of PETAC/Cu(II)-A adsorbent was evaluated by MB removal under identical experimental conditions. At the end of one experiment, the adsorbent was separated and subsequently washed with ethanol. Then, the adsorbent was dried under a vacuum at 60 °C overnight before another reaction cycle. As shown in Fig. 3, the proposed adsorbent retained 85% MB removal efficiency after five adsorption cycles. It means that the PETAC/Cu (II) -A adsorbent was able to

be reused for at least five cycles and exhibited no significant loss of activity.

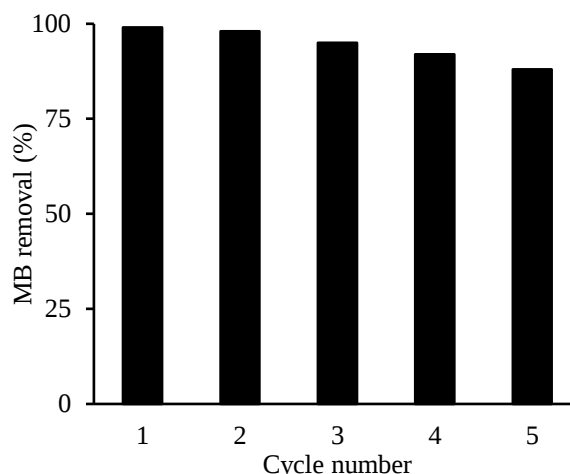


Fig. 3 Reuse of PETAC/Cu (II) -A adsorbent for the removal of MB

Conclusion

In summary, microsphere adsorbents based on ACs derived from plastic wastes were prepared and employed for the removal of MB. The maximum monolayer adsorption capacity of MB was 86.96 mg/g and the pseudo-second-order kinetic model agreed well with the MB adsorption Data. The driving force for the adsorption is the strong tendency of Lewis acid Cu(II) centers to bind with Lewis basic N atoms, as well as π - π interaction between basal planes of the carbon and MB. The spent PETAC/Cu (II) -A can easily be reused by organic solvent washing and can be regenerated effectively with some loss in adsorption performance.

Data Availability

The data used in this research are presented in the paper.

Conflicts of interest

The author of this article declared no conflict of interest regarding the authorship or publication of this article.



ISSN: 2476-3683

محیط زیست و مهندسی آب

Homepage: www.jewe.ir

مقاله پژوهشی

جذب متیلن بلو از محیط‌های آبی با استفاده از گرانول‌های کربن - آلزینات

مریم فیاضی^{*}

استادیار، گروه محیط‌زیست، پژوهشگاه علوم و تکنولوژی پیشرفته و علوم محیطی، دانشگاه تحصیلات تکمیلی صنعتی و فناوری پیشرفته، کرمان، ایران

اطلاعات مقاله

چکیده

تاریخ دریافت: [۱۴۰۰/۰۹/۰۹]

تاریخ بازنگری: [۱۴۰۰/۱۰/۲۵]

تاریخ پذیرش: [۱۴۰۰/۱۰/۲۶]

واژه‌های کلیدی:

آلزینات

پلی اتیلن ترفتالات

جذب سطحی

رنگ‌زا

کربن فعال

*نویسنده مسئول:

m.fayazi@kgut.ac.ir

در این پژوهش، جذب متیلن بلو (MB) از محلول آبی بر روی گرانول‌های مس (II)-آلزینات (A)-(Cu (II)) حاوی کربن فعال مشتق شده از پلی اتیلن ترفتالات (PETAC) تحت شرایط تجربی مختلف مورد بررسی قرار گرفت. ترکیب و ساختار گرانول‌ها با روش‌های SEM و BET مورد مشخصه‌یابی قرار گرفت. تأثیر پارامترهای مختلف از قبیل غلظت رنگ‌زا، pH، مقدار جاذب و زمان تماس به وسیله روش ناپیوسته بررسی شد. داده‌های تعادلی با استفاده از ایزوترم لانگمویر، فرندلیچ و تمکین مورد ارزیابی قرار گرفت. ایزوترم جذب تطابق خوبی با مدل لانگمویر دارد ($R^2=0.9973$)، که نشان دهنده همگن بودن فرآیند جذب MB بر روی گرانول‌ها می‌باشد. بیشینه ظرفیت جذب تحت شرایط بهینه برای حذف متیلن بلو مقدار $86/96 \text{ mg.g}^{-1}$ به دست آمد. داده‌های سینتیکی با استفاده از معادله شبه مرتبه اول و شبه دوم لاگ‌گرن مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت. مدل شبه مرتبه دوم بهترین تناسب را برای مطالعات سینتیکی نشان داد ($R^2=0.9997$). علاوه بر این، هیچ کاهش آشکاری پس از پنج چرخه جذب مشاهده نشد، که نشان می‌دهد جاذب A-(Cu (II)) PETAC پایدار و قابلیت استفاده مجدد خوبی دارد. در مجموع، نتایج نشان داد که گرانول‌های آماده شده می‌تواند به عنوان یک جاذب کارآمد برای تصفیه پساب‌های رنگی مورد استفاده قرار گیرد.

۱- مقدمه

رنگ‌زاها قرار می‌گیرد. در واقع رنگ اولین آلودگی قابل تشخیص در آب است. حتی حضور مقدار بسیار کم مواد رنگی در پساب هم نامطلوب است. بیش از ۱۰۰۰۰۰ نوع رنگ‌زای تجاری موجود است که سالیانه در صنایع مختلف مورد استفاده قرار می‌گیرد که مقدار قابل توجهی پساب با آلودگی رنگی تولید می‌کنند (Ai et al. 2010). صنعت نساجی منبع اصلی رنگ‌ها و تولید فاضلاب رنگی است که

رنگ‌زاها ترکیباتی با ساختار آروماتیکی پیچیده‌ای هستند که موجب پایداری و تجزیه‌ناپذیری آن‌ها می‌شود (Fayazi et al. 2016). بسیاری از صنایع نظیر کاغذسازی، رنگرزی، پارچه‌بافی، نساجی و پلاستیک‌سازی از رنگ‌زاها برای رنگ کردن محصولاتشان استفاده و همچنین حجم قابل توجهی آب مصرف می‌کنند. در نتیجه مقدار زیادی پساب رنگی تولید می‌شود و بخش عمده‌ای از کیفیت آب تحت تأثیر این



معدنی، محصولات زائد کشاورزی و ضایعات حاصل از فرآیندهای صنعتی مختلف (Ngulube et al. 2017) ارائه شده است. علاوه بر این، (Sobhanardakani et al. 2017) از نانولوله‌های کربنی به منظور حذف رنگزای آنیونی، (Rachna et al. 2018) از $ZnFe_2O_4$ جهت حذف رنگزای کاتیونی رودامین بی، (Gupta and Khatri. 2019) از جاذب‌های کربنی متخلخل به منظور حذف رنگ‌زاهای کاتیونی استفاده کردند.

در میان جاذب‌های مختلف، کربن فعال (AC) به دلیل ویژگی‌های منحصربه‌فرد مانند پایداری شیمیایی، قیمت پایین، مساحت سطح ویژه و ظرفیت جذب بالا مورد توجه قرار گرفته است. علاوه بر این، استفاده از ضایعات صنعتی و کشاورزی به عنوان پیش ماده جاذب‌های AC، از مزایای مهم دیگر آن می باشد (Ahmad 2009).

در چند دهه گذشته، مصرف محصولات پلیمری و در نتیجه تولید ضایعات حاصل از پلیمرها به طرز چشمگیری افزایش یافته است (Al-Salem et al. 2009). پلی اتیلن ترفتالات به دلیل برخی از ویژگی‌های منحصربه‌فرد، به عنوان مؤثرترین ماده بسته‌بندی در چند سال گذشته مورد استفاده قرار گرفته است (Awaja et al. 2005). با این حال، پلی اتیلن ترفتالات به دلیل تجزیه پذیری طبیعی پایین، یکی از فراوان‌ترین مواد زائد پلاستیکی به حساب می آید. متداول‌ترین راه‌های از بین بردن زباله‌های پلی اتیلن ترفتالات سوزاندن و بازیافت آن‌ها است. استفاده از زباله‌های پلی اتیلن ترفتالات به عنوان پیش ماده برای تهیه AC (به دلیل محتوای کربنی بالا، ناخالصی‌های معدنی کم و پایداری چرخه‌ای بالا) یک گزینه بسیار مناسب جهت بازگشت به چرخه چنین ضایعاتی می باشد (Mallakpour et al. 2017).

متیلن بلو (MB) با فرمول مولکولی $C_{16}H_{18}N_3SCl$ یک رنگزای کاتیونی محلول در آب است که با وجود کاربرد گسترده در صنایع نساجی، کاغذسازی و چرم‌سازی (Oz et al. 2010)، دارای عوارض جانبی از جمله تهوع، اسهال، سردرد، سرگیجه، تنگی نفس، تغییر در رنگ ادرار، فلج شدگی و نفرس است (Niazi et al. 2008). حذف MB، به عنوان یکی از گسترده‌ترین رنگ‌های نساجی، از محیط‌های آبی اخیراً توسط Kannan and Sundaram (2001) بر روی کربن فعال و توسط Rafatullah et al. (2010) استفاده از جاذب‌های ارزان قیمت بررسی شده است.

می‌تواند باعث آلودگی شدید آب شود. رنگزای ۱ kg پنبه به‌طور متوسط به ۷۰-۱۵۰ l آب، ۰/۶ kg نمک طعام و ۴۰ رنگ‌زا نیاز دارد (Allegre et al. 2006). بیش از ۸۰۰۰۰ رنگ‌زا هر سال تولید و مصرف می‌شود و حدود ۲۰ تا ۳۰٪ از این رنگ‌زاها (تقریباً ۲ g/l) روی پارچه تثبیت نمی‌شود که در نتیجه منجر به سمیت پساب می‌شود. چنین فاضلابی معمولاً با pH بالا (۱۱-۱۰) همراه می‌باشند. پساب‌های رنگی به‌طور کلی برای حیات جانوری و گیاهی سمی در نظر گرفته می‌شوند. علاوه بر این، تقریباً همه رنگ‌زاها مقاوم به شرایط محیطی هستند و بنابراین، مشکلات عمده‌ای در تصفیه فاضلاب ناشی از صنعت رنگ‌سازی ایجاد می‌کنند (Hao et al. 2000). در نتیجه لازم است که پیش از تخلیه پساب تا حد ممکن رنگ‌های آن حذف شوند. بسیاری از این رنگ‌زاها سمی و سرطان‌زا هستند. با توجه به اثرات مخرب رنگ‌ها بر سلامت بشر و سایر موجودات و نیز دشواری پاک‌سازی منابع طبیعی از آلاینده‌های رنگی، می‌توان به لزوم تحقیق و پژوهش هر چه بیشتر پیرامون این مقوله پی برد. طیف گسترده‌ای از فرآیندهای فیزیکی و شیمیایی مانند لخته‌سازی، انعقاد، رسوب، جذب، فیلتراسیون غشایی و فن‌های الکتروشیمیایی به‌طور گسترده برای حذف رنگ‌زاها از محیط‌های آبی مورد بررسی قرار گرفته است. اغلب روش‌های ذکر شده دارای معایبی مانند قابلیت استفاده برای غلظت‌های محدودی از آلاینده‌ها، هزینه بالای تصفیه، نیاز به یک مرحله اضافی جهت تصفیه نهایی، تشکیل محصولات جانبی خطرناک و راندمان پایین هستند (Dąbrowski et al. 2001).

در مقایسه با روش‌های ذکر شده در بالا، جذب سطحی رنگ‌زاها از محلول آبی، به عنوان یک روش مناسب و مقرون به صرفه برای تصفیه پساب حاوی رنگ‌زا پیشنهاد شده است. ترکیبات رنگی موجود در فاضلاب، به سادگی به فاز جامد منتقل می‌شوند. از طرفی، مواد جاذب قابلیت استفاده مجدد بعد از فرآیند جذب را دارند. در عین حال استفاده از جاذب‌های گران قیمت خود می‌تواند یک عامل محدود کننده در فرآیندهای جذبی محسوب شود. بنابراین استفاده از مواد ارزان قیمت نظیر باقیمانده‌های محصولات کشاورزی و صنعتی، جهت تولید جاذب همواره مدنظر قرار گرفته است. تاکنون تحقیقات زیادی به منظور حذف رنگ‌زاها از پساب با استفاده از جاذب‌های ارزان قیمت انجام شده است. به عنوان مثال گزارش‌های متعددی از حذف رنگ‌زاها به وسیله مواد

دست‌آمده به‌صورت قطره‌قطره به ۵۰۰ ml محلول کلرید مس (۱٪ وزنی/حجمی)، تحت هم‌زدن مغناطیسی اضافه تا گرانول‌های PETAC/Cu(II)-A به‌دست آید. گرانول‌های حاصل برای ایجاد اتصالات بیش‌تر به‌مدت ۲۴ hr در دمای اتاق در محلول مس کلرید باقی ماندند. در نهایت محصول کاملاً با آب مقطر شستشو داده شد و سپس با استفاده از دستگاه فریز درای خشک گردید.

۲-۴- بررسی فرآیند حذف MB

آزمایش‌های جذب MB با استفاده از ۱۰ ml از محلول رنگ‌زا با غلظت‌های اولیه مختلف MB (۲۵ تا ۵۰۰ mg/l) و مقدار جاذب مشخص (۰/۰۴ g) تحت هم‌زدن مداوم (۳۰۰ rpm) در دمای محیط انجام شد. غلظت MB باقیمانده در مایع رویی توسط دستگاه اسپکتروفوتومتر UV-Vis در طول موج ۶۵۵ nm مورد آنالیز قرار گرفت. در نهایت، ظرفیت جذب MB (q_e , mg/g) طبق رابطه (۱) محاسبه شد.

$$q_e = \frac{(C_i - C_e)V}{m} \quad (1)$$

که، q_e (mg/g) ظرفیت جذب، C_i و C_e (mg/l) به ترتیب غلظت اولیه و تعادلی جذب شونده، m (g) و V (l) مقدار جاذب و حجم محلول را نشان می‌دهد (Fayazi and Ghanbarian, 2020). همچنین داده‌های سنتیکی روش با استفاده از معادلات شبه مرتبه اول و شبه مرتبه دوم و داده‌های تعادلی با استفاده از ایزوترم لانگمویر و فروندلیچ مورد بررسی قرار گرفت.

۳- یافته‌ها و بحث

۳-۱- مشخصه‌یابی جاذب

تصاویر SEM نمونه PETAC و PETAC/Cu-A به ترتیب در شکل (۱-الف) و شکل (۱-ب) نشان داده شده است. شکل (۱-الف) تشکیل ذرات کربن با اندازه میانگین چند ده میکرومتر را نشان می‌دهد. سطح بیرونی گرانول‌های PETAC/Cu-A (شکل ۱-ب) یک ساختار ناهموار و متخلخل را نشان می‌دهد.

شکل (۱-ج) ایزوترم جذب و واجذب نیتروژن نمونه‌های PETAC و PETAC/Cu-A را نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود ایزوترم جذب از نوع I است که نشان‌دهنده ساختار میکرو متخلخل جاذب است.

در پژوهش حاضر، گرانول‌های پایدار مس (II)-آلژینات (Cu A-II) حاوی کربن فعال مشتق شده از پلی‌اتیلن ترفتالات (PETAC) با مساحت سطح ویژه و ظرفیت جذب بالا برای حذف MB مورد استفاده قرار گرفت. سنتیک و ایزوترم‌های جذب رنگ‌زا بر روی جاذب تحت شرایط بهینه بررسی شد. همچنین قابلیت استفاده مجدد گرانول‌های حاصل مورد بررسی قرار گرفت.

۲- مواد و روش‌ها

۲-۱- مواد شیمیایی

سدیم آلژینات (Na-A) و مس کلرید دو آبه ($\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) از شرکت مرک و MB از شرکت سیگما آلدْرِیج خریداری شد. برای تهیه کربن فعال، ضایعات بطری-های معدنی به قطعاتی با اندازه دلخواه (۱/۰-۲/۰ cm) برش داده شدند.

۲-۲- وسایل و تجهیزات آزمایشگاهی

میکروسکوپ الکترونی روبشی نشر میدانی مدل MIRA3 LM TESCAN به‌منظور تصویربرداری و مطالعه ساختار و مورفولوژی نمونه مورد استفاده قرار گرفت. روش جذب بورنر-ایمت-تِلر (BET) برای بررسی متخلخل بودن جاذب‌های سنتز شده به کار برده شد. غلظت MB با استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر واریان مدل Cary 50 اندازه‌گیری شد.

۲-۳- آماده‌سازی جاذب

۲-۳-۱- کربن فعال مشتق شده از پلی‌اتیلن ترفتالات

جهت تهیه کربن فعال مشتق شده از پلی‌اتیلن ترفتالات (PETAC)^۱، بطری‌های آب معدنی جمع‌آوری و پس از شستشو به قطعات کوچک برش داده شدند. در ادامه ۴ g از پلی‌اتیلن ترفتالات قطعه شده در دمای ۵۰۰ °C و تحت جو نیتروژن به مدت ۱ h حرارت داده شد. در مرحله بعد، محصول پیرولیز شده آسیاب و الک (۲۵/۰-۴۲/۰ mm) شد، سپس در دمای ۷۰۰ °C به مدت ۱ h تحت جریان ثابت گاز نیتروژن مورد فعال‌سازی قرار گرفت.

۲-۳-۲- گرانول‌های A-PETAC/Cu(II)

به‌طور خلاصه، پودر PETAC حاصل از مرحله قبل با نسبت جرمی (۱/۵ : ۱) $m(\text{PETAC}):m(\text{Na-A})$ به ۱۰۰ ml محلول Na-A (۱٪ وزنی/حجمی) اضافه و به مدت ۳۰ min به‌وسیله همزن مغناطیسی مخلوط شد. مخلوط همگن به-

²Polyethylene terephthalate-derived activated carbon/copper (II)-alginate (PETAC/Cu(II) -A)

¹Polyethylene terephthalate-derived activated carbon

سریع MB از محلول بر روی سطح خارجی جاذب است. در نهایت سایت‌های در دسترس به تدریج اشغال می‌شوند و به این ترتیب سرعت نفوذ کم شده و باعث کند شدن سرعت جذب MB می‌شود. برای اطمینان از حذف کامل MB، زمان ۳ h برای آزمایش‌های بعدی انتخاب شد.

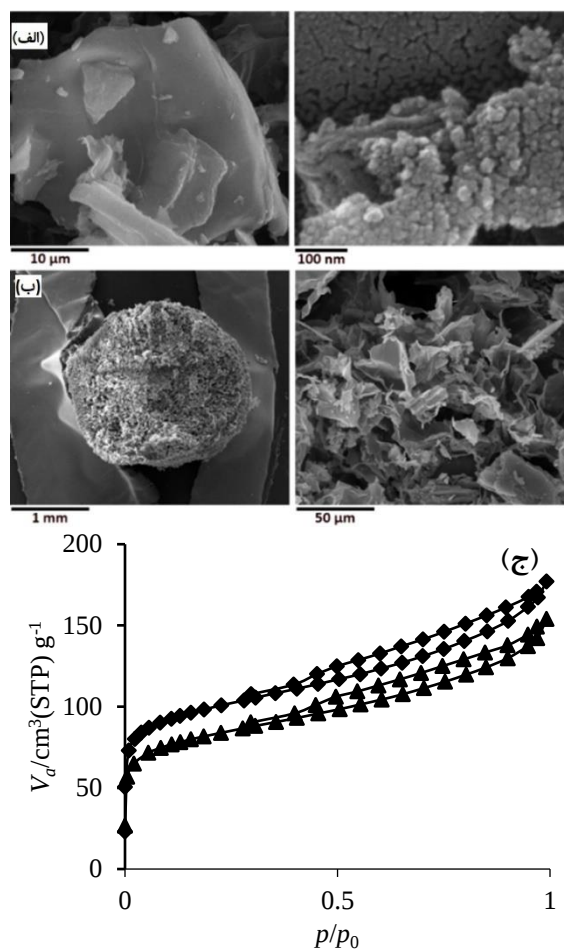
قابل ذکر است که جذب سریع MB به وسیله نمونه PETAC ممکن است به خاطر مساحت سطح ویژه بالاتر آن باشد که سایت‌های جذب بیش‌تری را در مراحل اولیه فراهم می‌کند. با این حال، ظرفیت جذب این جاذب از نمونه A-PETAC/Cu (II) کمتر است. به عبارت دیگر، مساحت سطح ویژه و حجم کل حفرات متغیرهای اصلی تعیین‌کننده توانایی جاذب برای حذف رنگ‌زا نیستند. این نشان می‌دهد حضور مس (II) به عنوان مراکز اسید لوئیس در گرانول‌های جاذب نقش مهم‌تری در روند جذب دارند. بدین ترتیب A-PETAC/Cu (II) در آزمایش‌های بعدی به عنوان جاذب انتخاب شد.

۳-۳- اثر pH

تأثیر pH بر حذف MB در گستره pH ۲/۰ تا ۸/۰ در حالی که سایر پارامترها ثابت نگه داشته شده بودند، مورد مطالعه قرار گرفت. همان‌طور که در شکل (۲-ب) مشاهده می‌شود، با افزایش pH از ۲/۰ تا ۴/۰ مقدار رنگ‌زای حذف شده افزایش و بعد از آن تقریباً ثابت باقی می‌ماند. برای آزمایش‌های بعدی در pH اولیه محلول (pH~۶) کار شد.

۳-۴- اثر مقدار جاذب

اثر مقدار جاذب بر میزان MB جذب‌شده توسط جاذب در دمای اتاق مورد بررسی قرار گرفت. نتایج به دست آمده از بررسی اثر میزان جاذب روی فرآیند جذب MB در شکل (۲-ج) نشان داده شده است. ابتدا با افزایش میزان جاذب به دلیل اینکه مساحت سطح بیش‌تر و در نتیجه سایت‌های جذب بیش‌تری در اختیار است جذب افزایش پیدا می‌کند. اما این میزان از یک مقدار به بعد روند ثابتی پیدا می‌کند که می‌توان آن را به عنوان مقدار بهینه جاذب در نظر گرفت. بنابراین مقدار ۰/۰۴ جاذب در آزمایش‌های بعدی مورد استفاده قرار گرفت.



شکل ۱- تصاویر FE-SEM: الف- PETAC و ب- PETAC/Cu-A و ج- ایزوترم جذب/واحد نیتروژن نمونه‌های آماده شده

Fig. 1 FE-SEM images of: a) PETAC and b) PETAC/Cu-A, and c) N_2 adsorption/desorption isotherms of the prepared products

۳-۲- اثر زمان تماس

اثر زمان هم‌خوردن در مقدار جذب MB بر روی سطح جاذب PETAC و PETAC/Cu(II)-A در گستره صفر تا ۳۰۰ min در دمای ثابت برای ۱۰ ml از محلول با غلظت مشخص مورد بررسی قرار گرفت و نتایج در شکل (۲-الف) نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، فرآیند جذب رنگ‌زا از طریق یک فرآیند دو مرحله‌ای پیش می‌رود. در مرحله اول جذب سریع MB بر روی سطح جاذب رخ می‌دهد و در مرحله دوم سرعت جذب MB بسیار کندتر می‌شود. این پدیده نشانگر این است که بیشتر MB در مدت‌زمان کوتاهی حذف می‌شود، به‌طوری که تقریباً جذب MB با افزایش زمان تماس بکندی تغییر می‌کند. سرعت بالای حذف اولیه احتمالاً به دلیل نفوذ

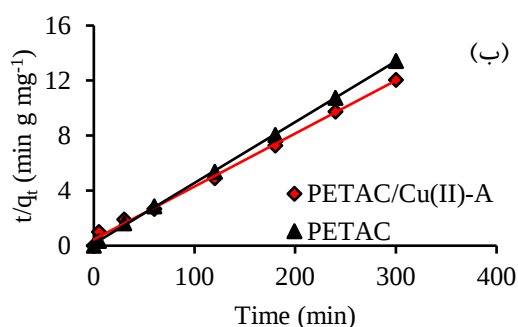
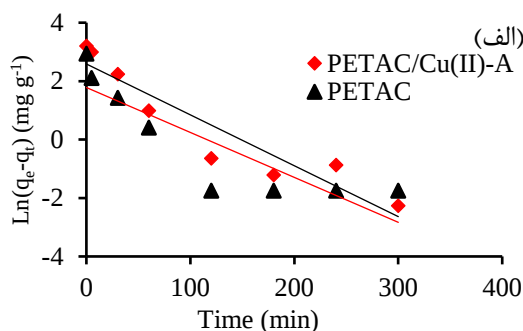
مدل شبه مرتبه اول از رابطه (۲) محاسبه شد (Fayazi et al. 2019). q_e و K_1 مربوط به این مدل از شیب و عرض از مبدأ منحنی $\ln(q_e - q_t)$ بر t به دست می آید (شکل ۳-الف).

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - K_1 t \quad (2)$$

و همچنین مدل شبه مرتبه دوم از رابطه (۳) پیروی می کند (Fayazi et al. 2019). که، از شیب و عرض از مبدأ منحنی $\frac{t}{q_t}$ در مقابل t (شکل ۳-ب) برای محاسبه ثابت سرعت استفاده می شود.

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{K_2 q_e^2} + \left(\frac{1}{q_e}\right) t \quad (3)$$

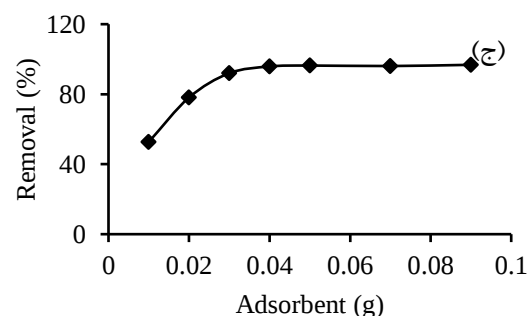
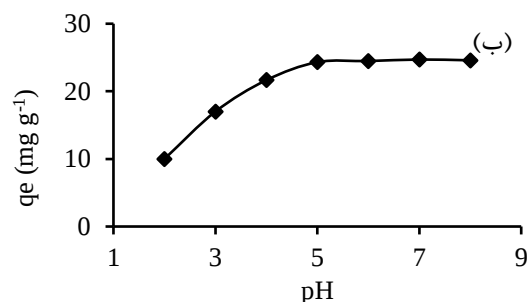
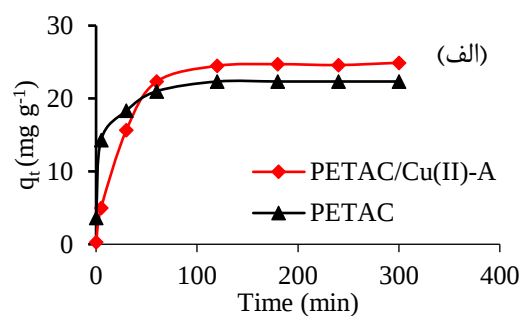
که، q_e (mg/g) مقدار ماده جذب شده در حالت تعادل، q_t (mg/g) مقدار ماده جذب شده در زمان t و K_1 (min^{-1}) و K_2 (g/mg.min) ثابت سرعت جذب است.



شکل ۳- سنتیک جذب مدل شده: الف) شبه درجه اول و ب) شبه درجه دوم

Fig. 3 The adsorption kinetics modeled: a) pseudo-first-order and b) pseudo-second-order

پارامترهای سینتیکی هر دو مدل در جدول (۱) آورده شده است. همان طور که در جدول (۱) مشاهده می شود، مقدار R^2 برای مدل مرتبه دوم از مقدار مربوط به مدل مرتبه اول بهتر است، که نشان می دهد روند جذب MB بر روی جاذب PETAC/Cu (II) - A غالباً به وسیله جذب شیمیایی است که شامل نیروهای والانس ناشی از به اشتراک گذاشتن یا



شکل ۲- اثر پارامترهای الف) زمان تماس (غلظت اولیه: ۱۰۰ mg/l، حجم: ۱۰ ml، دما: ۲۹۸ K، مقدار جاذب: ۰/۰۴ g، pH غلظت اولیه: ۱۰۰ mg/l، حجم: ۱۰ ml، زمان: ۳ h، مقدار جاذب: ۰/۰۴ g و دما: ۲۹۸ K) و ج) دزاج جاذب روی راندمان حذف (غلظت اولیه: ۱۰۰ mg/l، حجم: ۱۰ ml، زمان: ۳ h، دما: ۲۹۸ K)

Fig. 2 Effect of different parameters: a) contact time (concentration: 100 mg/l, volume = 10 ml, T = 298 K, adsorbent dosage = 0.04 g), b) pH (concentration = 100 mg/l, volume = 10 ml, time = 3 h, adsorbent dosage = 0.04 g and T = 298 K) and c) concentration = 100 mg/l, volume = 10 ml, time = 3 h and T = 298 K)

۳-۵- سینتیک جذب

مدل سینتیکی جذب حل شونده در سطح مشترک جامد/محلول معمولاً پیچیده است. سرعت جذب به شدت به پارامترهای مختلف مانند وضعیت ماتریس جامد و شرایط فیزیکوشیمیایی جذب، وابسته است. دو مدل سینتیکی که به طور گسترده استفاده می شوند، یعنی مدل شبه مرتبه اول و مدل شبه مرتبه دوم معمولاً برای بررسی رفتار سینتیکی جذب رنگزا بر روی جاذب به کار می روند. مقادیر مربوط به

تبادل الکترون بین سطح جذب و مولکول‌های جاذب است (Mayakaduwa et al. 2016).

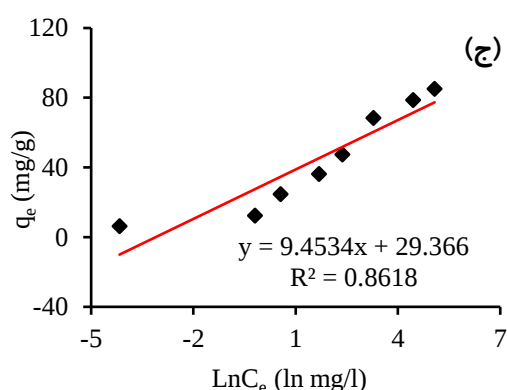
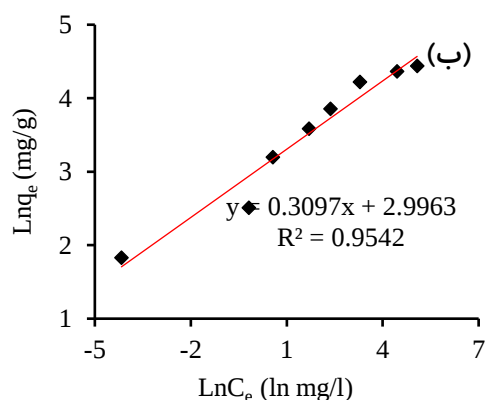
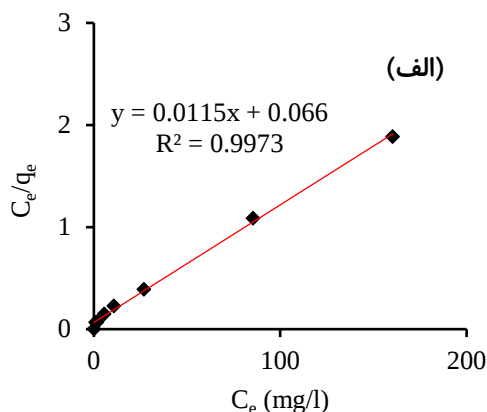
جدول ۱- پارامترهای محاسبه شده از مدل‌های سینتیک جذب MB بر روی جاذب PETAC/Cu (II) -A

Table 1 Calculated parameters of adsorption kinetics models of MB on PETAC/Cu(II)-A

Adsorbent	pseudo-first-order			pseudo-second-order		
	k_1 (min ⁻¹)	q_e (mg/g)	R^2	k_2 (g/mg.min)	q_e (mg/g)	R^2
PETAC	0.0154	13.29	0.77	0.0141	22.62	0.9977
PETAC/Cu (II) -A	0.0174	5.94	0.8899	0.00328	25.97	0.9964

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln C_e$$

(۵)



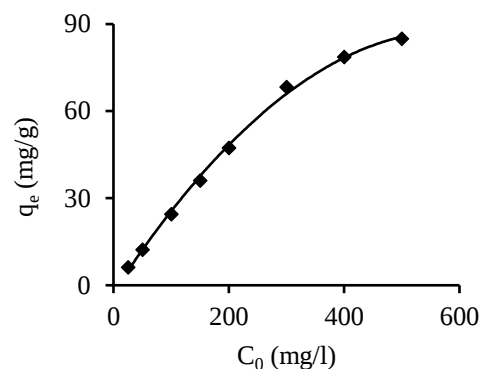
شکل ۵- مدل‌های جذب MB روی گرانول‌های

PETAC/Cu(II)-A: (الف) لانگمویر، (ب) فروندلیچ، و (ج) تمکین

Fig. 5 Models for MB adsorption on PETAC/Cu(II)-A beads: a) Langmuir, b) Freundlich, and c) Temkin

۳-۶- ایزوترم جذب

فرآیند جذب سطحی معمولاً از طریق ایزوترم جذب شرح داده می‌شود، که مقدار ماده جذب شده در جاذب به‌عنوان تابع غلظت در دمای ثابت است. ایزوترم‌های جذب PETAC/Cu (II) -A در دمای اتاق به مدت ۱۸۰ min مورد بررسی قرار گرفت. نتایج در شکل (۴) نشان داده شده است. با افزایش غلظت اولیه MB، ابتدا میزان جذب به‌سرعت افزایش پیدا می‌کند، پس از آن سرعت جذب کند شده تا اینکه در نهایت جاذب اشباع می‌شود و میزان جذب ثابت باقی می‌ماند.



شکل ۴- ایزوترم جذب MB روی گرانول‌های

PETAC/Cu(II)-A

Fig. 4. Adsorption isotherm of MB adsorption on PETAC/Cu(II)-A beads

ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیچ و تمکین به‌طور وسیعی برای توصیف فرآیند جذب در حد فاصل جامد-مایع مورد استفاده قرار می‌گیرند. جهت به‌دست‌آوردن ثابت‌های لانگمویر طبق رابطه (۴) نمودار C_e/q_e بر حسب C_e رسم و نتایج در شکل (۵-الف) گزارش شده است.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{q_{max}K_L} + \frac{C_e}{q_{max}} \quad (۴)$$

ایزوترم فروندلیچ از رابطه (۵) پیروی می‌کند و جهت به دست آوردن ثابت‌های فروندلیچ نمودار $\ln q_e$ بر حسب $\ln C_e$ رسم شده است (شکل ۵-ب).

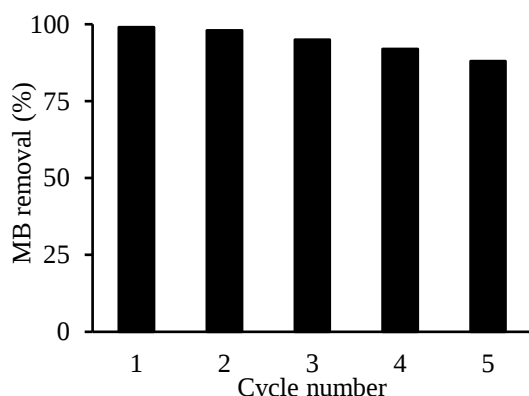
جدول ۳- مقادیر فاکتور جداسازی بر اساس معادله لانگمویر

Table 3 Separation factor values based on the Langmuir equation

Concentration (mg/l)	R_L
50	0.10
100	0.054
150	0.037

۳-۷- قابلیت استفاده مجدد از جاذب

به منظور بررسی پایداری و توانایی بازیابی جاذب A-PETAC/Cu (II)، جاذب مورد نظر طی ۵ دوره جذب و واجذب بر طبق روش پیشنهادی به کارگیری شد. به این منظور، هر بار در پایان آزمایش، جاذب جمع آوری و پس از آن با اتانول به خوبی شسته و سپس با درجه حرارت $^{\circ}\text{C}$ ۶۰ به مدت یک شبانه روز در آن خشک گردید. نتایج حاصل در شکل (۶) نشان داده شده است. همان طور که مشاهده می شود ظرفیت جذب جاذب مورد استفاده در طول چرخه استفاده مجدد کمی کاهش یافته است، اما در سطح بالایی، بیش از ۸۵٪، در چرخه پنجم باقی مانده است. بنابراین، جاذب A-PETAC/Cu(II) می تواند برای چند بار بدون کاهش قابل توجهی در ظرفیت جذب مورد استفاده قرار گیرد.



شکل ۶- قابلیت استفاده مجدد A-PETAC/Cu (II) جاذب

برای حذف MB

Fig. 6 Reuse of PETAC/Cu (II) -A adsorbent for the removal of MB

۳-۸- مقایسه با دیگر روش ها

در این تحقیق جذب MB از محلول آبی توسط جاذب A-PETAC/Cu(II) بررسی شد. مشخص شد که A-PETAC/Cu(II) یک جاذب ارزان قیمت و مؤثر برای حذف رنگزای کاتیونی MB از آب در محدوده pH های خنثی تا قلیایی است. حداکثر ظرفیت جذب MB بر روی جاذب با استفاده از مدل لانگمویر $86/96 \text{ mg/g}$ به دست آمد

ایزوترم تمکین نیز برای جذب MB توسط جاذب A-PETAC/Cu (II) اعمال شد (شکل ۵-ج). این مدل با فرم خطی رابطه (۶) ارائه می شود.

$$q_e = B_t \ln K_f + B_t \ln C_e \quad (6)$$

که، C_e (mg/l) غلظت تعادلی آنالیت در محلول، q_e (mg/g) مقدار جذب شده به ازای واحد وزن جاذب، $q_{\max}$ ظرفیت جذب بیشینه تئوری، K_f (mg g⁻¹ (l/mg)^{1/n}) ثابت لانگمویر، n ثابت های فروندلیچ و B_t و K_f ثابت های تمکین هستند (Fayazi et al. 2015a).

نتایج حاصل از آنالیز لانگمویر، فروندلیچ و تمکین در جدول (۲) آورده شده است. همان طور که مشاهده می شود ضریب همبستگی به دست آمده برای مدل لانگمویر ۰/۹۹۷۳ بوده و نشان دهنده این واقعیت است که جذب مولکول MB به خوبی به خوبی از مدل پیشنهادی لانگمویر پیروی می کند. علاوه بر این، از ویژگی های اساسی مدل جذب لانگمویر فاکتور جداسازی (R_L) است که با رابطه (۷) بیان می شود (Fayazi et al. 2015b).

جدول ۲- پارامترهای ایزوترم جذب MB روی جاذب

PETAC/Cu (II) -A

Table 2 Calculated parameters of adsorption isotherm models of MB on PETAC/Cu(II)-A

Model	Parameters	Value
Langmuir	K_L (L/mg)	0.1742
	q_m (mg/g)	86.96
	R^2	0.9973
Freundlich	K_f (mg/g (l/mg) ^{1/n})	20.011
	N	3.23
	R^2	0.9542
Temkin	B_t	9.453
	K_t	22.34
	R^2	0.8618

$$R_L = \frac{1}{1 + K_L C_0} \quad (7)$$

که، K_L (l/mg) ثابت لانگمویر و C_0 (mg/l) غلظت اولیه در فاز مایع است. مقدار R_L نشان می دهد که شکل ایزوترم نامطلوب ($R_L > 1$)، خطی ($R_L = 1$)، مطلوب ($0 < R_L < 1$) یا برگشتناپذیر ($R_L = 0$) است. با توجه به اینکه مقادیر R_L گزارش شده در جدول (۳) در محدوده صفر تا یک است، بنابراین جذب MB بر روی جاذب یک فرآیند مطلوب است.

که در مقایسه با دیگر روش‌های گزارش شده در جدول (۴) بیش‌تر است و نشان از کارایی بالای جاذب پیشنهادی دارد.

جدول ۴- حداکثر ظرفیت جذب رنگ‌زا MB با استفاده از جاذب‌های مختلف

Table 4 Maximum adsorption capacity of MB dye using various adsorbents

Adsorbent	q_m (mg/g)	C_0 m(g/l)	pH	Reference
Fe ₃ O ₄ @hierarchical hollow silica spheres	71.45	40	7	(Zhang et al. 2014)
MWCNT	59.7	10	6	(Wang et al. 2012)
Kaolin	52.76	100	6	(Mouni et al. 2018)
Iron based metal organic framework	8.65	5	-	(Arora et al. 2019)
Magnetic graphene oxide modified zeolite	82.15	40	pH > 9	(Huang et al. 2019)
Rejected tea	147	100	6	(Nasuha et al. 2010)
Rice husk	40.6	100	8	(Vadivelan and Kumar 2005)
Fe ₃ O ₄ @Guanidine	1.37	10	6	(Najafi et al. 2018)
Vegetal fiber activated carbons	40	20	4	(Cherifi et al. 2013)
Sawdust/MgO	59.17	100	12	(Ansari et al. 2018)
PETAC/Cu (II) -A	86.96	100	6	This Research

۴- نتیجه‌گیری

در پژوهش حاضر، جاذب میکرو متخلخل جدید بر پایه کربن فعال حاصل از مواد زائد پلاستیکی تهیه و از آن برای حذف رنگ‌زا استفاده شد. نتایج مطالعه نشان داد که:

۱- بالاترین کارایی حذف متیلن بلو در pH های قلیایی حاصل شد و در محدوده اسیدی کارایی حذف آلاینده کاهش یافت.

۲- داده های تعادلی با استفاده از ایزوترم لانگمویر، فروندلیچ و تمکین ارزیابی شد. با توجه به ضرایب تعیین، داده‌های تعادلی از ایزوترم لانگمویر تبعیت کردند.

۳- حداکثر ظرفیت جذب MB بر روی جاذب با استفاده از مدل لانگمویر ۸۶/۹۶ mg/g بدست آمد.

۴- داده‌های سینتیکی با استفاده از معادله شبه مرتبه اول و شبه دوم لاگ‌گرن مورد تحلیل قرار گرفت. واکنش جذب از مدل شبه مرتبه دوم تبعیت می‌کند (۰/۹۹۶۴).

با توجه به نتایج حاصل، گرانول‌های تولید شده از زباله‌های PETAC می‌توانند به عنوان یک جاذب ارزان قیمت و در دسترس برای حذف آلاینده‌های رنگی مورد استفاده قرار گیرند. با توجه به انجام آزمایش‌ها در شرایط آزمایشگاه، پیشنهاد می‌شود برای تایید نتایج بدست آمده از جاذب سنتز شده برای پساب واقعی استفاده و اثر مواد آلی و سایر آلاینده‌های فاضلاب روی میزان حذف آلاینده را اندازه‌گیری کرد.

دسترسی به داده‌ها

داده‌های استفاده شده یا تولید شده در این پژوهش در متن مقاله ارائه شده است.

تضاد منافع نویسندگان

نویسنده این مقاله اعلام می‌دارد که هیچ‌گونه تضاد منافی در رابطه با نوشتن و یا انتشار این مقاله ندارد.

References

- Ahmad, A. A., Hameed, B. H. and Ahmad, A. L. (2009). Removal of disperse dye from aqueous solution using waste-derived activated carbon: Optimization study. *J. Hazard. Mater.*, 170(2-3), 612-619. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2009.05.021.
- Ai, L. and Jiang, J. (2010). Fast removal of organic dyes from aqueous solutions by AC/ferrospinel composite. *Desalin.*, 262(1-3), 134-40. DOI: 10.1016/j.desal.2010.05.059.
- Al-Salem, S. M., Lettieri, P. and Baeyens, J. (2009). Recycling and recovery routes of plastic solid waste (PSW): A review. *Waste Manage.*, 29(10), 2625-2643. DOI: 10.1016/j.wasman.2009.06.004.



- Allegre, C., Moulin, P., Maisseu, M., Charbit, F. (2006). Treatment and reuse of reactive dyeing effluents. *J. Membr. Sci.*, 269, 15–34. DOI: 10.1016/j.memsci.2005.06.014.
- Ansari, R., Mohammadpur, A., Rasoli Gamarodi, E. and Kermanian, H. (2018) Removal of methylene blue dye by sawdust coated with nanoparticles MgO. *J. Appl. Chem.* 13(46), 219-237. DOI: 10.22075/chem.2017.10419.1014.
- Arora, C., Soni, S., Sahu, S., Mittal, J., Kumar, P. and Bajpai, P. K. (2019). Iron based metal organic framework for efficient removal of methylene blue dye from industrial waste. *J. Mol. Liq.*, 284, DOI: 343-352.10.1016/j.molliq.2019.04.012.
- Awaja, F. and Pavel, D. (2005). Recycling of PET. *Eur. Polym. J.*, 41(7), 1453-1477. DOI: 10.1016/j.eurpolymj.2005.02.005.
- Cherifi, H., Fatiha, B. and Salah, H. (2013). Kinetic studies on the adsorption of methylene blue onto vegetal fiber activated carbons. *Appl. Surf. Sci.*, 282, 52-59. DOI: 10.1016/j.apsusc.2013.05.031.
- Dąbrowski, A. (2001). Adsorption—from theory to practice. *Adv. Colloid Interface Sci.*, 93(1-3), 135-224. DOI: 10.1016/S0001-8686(00)00082-8.
- Fayazi, M. (2019). Facile hydrothermal synthesis of magnetic sepiolite clay for removal of Pb (II) from aqueous solutions. *Anal. Bioanal. Chem. Res.*, 6(1), 125-136. DOI: 10.22036/abcr.2018.141470.1227.
- Fayazi, M. and Ghanbarian, M. (2020). One-pot hydrothermal synthesis of polyethylenimine functionalized magnetic clay for efficient removal of noxious Cr(VI) from aqueous solutions. *Silicon*, 12(1), 125-134. DOI: 10.1007/s12633-019-00105-9.
- Fayazi, M., Taher, M. A., Afzali, D. and Mostafavi, A. (2016). Enhanced Fenton-like degradation of methylene blue by magnetically activated carbon/hydrogen peroxide with hydroxylamine as Fenton enhancer. *J. Mol. Liq.*, 216, 781-787. DOI:10.1016/j.molliq.2016.01.093.
- Fayazi, M., Taher, M. A., Afzali, D. and Mostafavi, A. (2015b). Preparation of molecularly imprinted polymer coated magnetic multi-walled carbon nanotubes for selective removal of dibenzothiophene. *Mater. Sci. Semicond. Process.*, 40, 501-507. DOI: 10.1016/j.mssp.2015.07.018.
- Fayazi, M., Taher, M. A., Afzali, D. and Mostafavi, A. (2015a). Removal of dibenzothiophene using activated carbon/ γ -Fe₂O₃ nano-composite: kinetic and thermodynamic investigation of the removal process. *Anal. Bioanal. Chem. Res.*, 2(2), 73-84. DOI: 10.22036/abcr.2015.10158.
- Gupta, K. and Khatri, O. P. (2019). Fast and efficient adsorptive removal of organic dyes and active pharmaceutical ingredient by microporous carbon: Effect of molecular size and charge. *Chem. Eng. J.*, 378, 122218-122224. DOI: 10.1016/j.cej.2019.122218.
- Hao, O. J., Kim, H. and Chiang, P. C. (2000). Decolorization of wastewater. *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* 30, 449–505. DOI: 10.1080/10643380091184237.
- Kannan, N. and Sundaram, M. M. (2001). Kinetics and mechanism of removal of methylene blue by adsorption on various carbons— a comparative study. *Dye. Pigment.* 51, 25–40. DOI: 10.1016/S0143-7208(01)00056-0.
- Huang, T., Yan, M., He, K., Huang, Z., Zeng, G., Chen, A. and Chen, G. (2019). Efficient removal of methylene blue from aqueous solutions using magnetic graphene oxide modified zeolite. *J. Colloid Interface Sci.*, 543, 43-51. DOI: 10.1016/j.jcis.2019.02.030.
- Mallakpour, S. and Behranvand, V. (2017). Water sanitization by the elimination of Cd²⁺ using recycled PET/MWNT/LDH composite: morphology, thermal, kinetic, and isotherm studies. *ACS Sustain. Chem. Eng.*, 5(7), 5746-5757. DOI: 10.1021/acssuschemeng.7b00344.
- Mayakaduwa, S. S., Kumarathilaka, P., Herath, I., Ahmad, M., Al-Wabel, M., Ok, Y. S. and Vithanage, M. (2016). Equilibrium and kinetic mechanisms of woody biochar on aqueous glyphosate removal. *Chemosphere*, 144, 2516-2521. DOI: 10.1016/j.chemosphere.2015.07.080.
- Mouni, L., Belkhiri, L., Bollinger, J. C., Bouzaza, A., Assadi, A., Tirri, A. and Remini, H. (2018). Removal of Methylene Blue from aqueous solutions by adsorption on Kaolin: Kinetic and equilibrium studies. *Appl. Clay*



- Sci., 153, 38-45. DOI: 10.1016/j.clay.2017.11.034.
- Najafi, S., Salimi, F. and Karami, Ch. (2018). Removal of methylene blue in aqueous solution using modified Fe_3O_4 magnetic nanoparticles by guanidine. *Pet. Res.*, 28(98), 49-52. DOI: 10.22078/pr.2017.2601.2214.
- Nasuha, N., Hameed, B. H. and Din, A. T. M. (2010). Rejected tea as a potential low-cost adsorbent for the removal of methylene blue. *J. Hazard. Mater.*, 175(1-3), 126-132. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2009.09.138.
- Ngulube, T., Ray Gumbo, J., Masindi, V. and Maity, A., (2017). An update on synthetic dyes adsorption onto clay based minerals: a state-of-art review. *J. Environ. Manag.*, 191, 35-57. DOI: 10.1016/j.jenvman.2016.12.031.
- Niazi, A., Jafarian, B. and Ghasemi, J. (2008). Kinetic spectrophotometric determination of trace amounts of palladium by whole kinetic curve and a fixed time method using resazurine sulfide reaction. *Spectrochim. Acta - A: Mol. Biomol. Spectrosc.*, 71(3), 841-846. DOI: 10.1016/j.saa.2008.02.010.
- Oz, M., Lorke, D. E., Hasan, M. and Petronaiou, G. A. (2010). Cellular and molecular actions of methylene blue in the nervous system. *Med. Res. Rev.* 31, 93-117. DOI: 10.1002/med.20177.
- Rachna, Km., Agarwal, A. and Singh, N. B. (2018). Preparation and characterization of zinc ferrite-Polyaniline nanocomposite for removal of rhodamine B dye from aqueous solution. *Environ. Nanotechnol. Monit. Manag.*, 9, 154-163. DOI: 10.1016/j.enmm.2018.03.001.
- Rafatullah, M., Sulaiman, O., Hashim, R. and Ahmad, A. (2010). Adsorption of methylene blue on low-cost adsorbents: a review. *J. Hazard. Mater.* 177, 70-80. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2009.12.047.
- Sobhanardakani, S., Ghoochian, M., Jameh-Bozorghi, S. and Zandipak, R. (2017). Assessing of removal efficiency of indigo carmine from wastewater using MWCNTs. *Iran. J. Sci. Technol. Trans. A: Sci.*, 41, 1047-1053. DOI: 10.1007/s40995-017-0312-z.
- Vadivelan, V. and Kumar, K. V. (2005). Equilibrium, kinetics, mechanism, and process design for the sorption of methylene blue onto rice husk. *J. Colloid Interface Sci.*, 286(1), 90-100. DOI: 10.1016/j.jcis.2005.01.00715848406.
- Wang, S., Ng, C. W., Wang, W., Li, Q. and Hao, Z. (2012). Synergistic and competitive adsorption of organic dyes on multiwalled carbon nanotubes. *Chem. Eng. J.*, 197, 34-40. DOI: 10.1016/j.cej.2012.05.008.
- Zhang, J., Li, B., Yang, W. and Liu, J. (2014). Synthesis of magnetic Fe_3O_4 @ hierarchical hollow silica nanospheres for efficient removal of methylene blue from aqueous solutions. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 53(26), 10629-10. DOI: 10.1021/ie5000533.

How to cite this paper:

Fayazi, M. (2022). Adsorption of methylene blue using carbon-alginate granules. *Environ. Water Eng.*, 8(3), 765-777. DOI: 10.22034/JEWE.2022.317408.1687

