

بررسی میزان جذب دیازینون از محلول های آبی با استفاده از نانو

لوله های کربنی مغناطیسی شده با Fe_3O_4

انوشیروان محسنی بند پی^۱، مسعود فتاح زاده^{۱*}، روشنگر رضایی کلانتری^۲، اکبر اسلامی^۱

^۱ گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی، تهران، ایران

^۲ گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۴/۲/۲ : تاریخ پذیرش: ۱۳۹۴/۶/۲

چکیده

زمینه و هدف: سموم حشره کش یکی از مهمترین آلاینده های آبی هستند. دیازینون یک آفت کش فسفره است که در اکوسیستم های آبی ایران یافت می شود. اثر سمی دیازینون در ارتباط با بازدارندگی آنزیم استیل کولین استراز می باشد. در این مطالعه کارایی نانولوله های کربنی مغناطیسی شده با Fe_3O_4 مورد بررسی قرار گرفت. **مواد و روشها:** در این مطالعه از روش هم ترسیمی برای سنتز Fe_3O_4 بر روی نانولوله های کربنی چند جداره استفاده شد. پارامترهای pH، زمان تماس، دز جاذب، غلظت آلاینده و دمای محلول مورد بررسی قرار گرفت. غلظت دیازینون باقی مانده با استفاده از دستگاه کروماتوگرافی گازی اندازه گیری شد. **یافته ها:** نتایج این تحقیق نشان داد که شرایط بهینه برای حذف دیازینون $\text{pH}=6$ ، زمان تماس ۱۵ دقیقه، دز جاذب ۰/۶ گرم بر لیتر است. همچنین با افزایش دما و کاهش غلظت آلاینده، میزان جذب افزایش پیدا می کرد و فرآیند جذب تطابق بیشتری با مدل ایزوترم فروندلیچ ($R^2>0.99$) نسبت به ایزوترم لانگمویر ($R^2>0.90$) داشته است. **نتیجه گیری:** نتایج این تحقیق نشان داد که نانولوله های کربنی مغناطیسی شده با Fe_3O_4 می تواند به عنوان جاذب مناسبی برای حذف دیازینون از محیط های آبی باشد.

کلمات کلیدی: دیازینون، نانولوله های کربنی، Fe_3O_4 ، جذب

مقدمه

ارگانوفسفره ها هستند. ترکیبات ارگانوفسفره، بزرگترین و متنوع ترین گروه آفت کش های موجود هستند که حدود ۴۰٪ از آفت کشهای ثبت شده در جهان را تشکیل می دهند^{۱،۲}. یکی از دلایل استفاده بیش از حد از این آفت کش ها، ممنوع شدن استفاده از حشره کشهای ارگانوکلره است. حشره کشهای

در طول دهه های اخیر رودخانه ها به وسیله صنایع، معادن، فاضلابهای شهری و روان آبهای ناشی از کشاورزی به شدت آلوده شده اند. روان آبهای سطحی کشاورزی، منبع اصلی آفت کش ها هستند^۱. یکی از گروه های مهم آفت کش ها،

* شیراز، بلوار استقلال (زهری)، نبش بلوار بعثت، سازمان مدیریت پسماند، کدپستی: ۷۱۸۴۶-۸۷۷۸۱
ایمیل: mf6744@yahoo.com

ارگانوفسفره به طور وسیعی برای کنترل حشرات در سطح جهان استفاده می شود.^۴ دیازینون یکی از حشره کشهای ارگانوفسفره است که به طور وسیعی در کشاورزی استفاده می شود. دیازینون به آسانی از آب یا خاک بخار نمی شود و از طریق مهار آنزیم کولین استراز، باعث اختلال در سیستم عصبی انسان می شود و به دلیل این تاثیر روی سیستم عصبی، نگرانی های زیادی در مورد آن مطرح می شود.^{۵-۶} برای حذف سموم و آلاینده های آلی خطرناک مانند سموم ارگانوفسفره، اغلب از روش های مانند ازن زنی، اشعه UV، هیدروژن پراکسید، کوآگولاسیون، فنتون، جذب و غیره استفاده شده است. در بین این روشها، جذب با توجه به محدودیتهای تکنولوژیکی، زیست محیطی و اقتصادی، ارجح تر است.^۷ مقایسه جاذب های مختلف نشان می دهد که نانو لوله های کربنی نسبت به سایر جاذب ها، در حذف ترکیبات آلی و حفاظت از محیط زیست پتانسیل بیشتری دارند.^۸ نانو لوله های کربنی دارای سطح ویژه بسیار بالا، نفوذ پذیری زیاد و پایداری حرارتی و مکانیکی خوبی هستند و به دلیل سطح ویژه زیاد و ساختار لایه لایه و تو خالی، ظرفیت جذب بالایی دارند و می توانند به عنوان جاذب مواد آلی و غیر آلی مورد استفاده قرار بگیرند.^{۹-۱۱} علیرغم اهمیت نانولوله های کربنی (CNTs) در زلال سازی و تصفیه آب، عدم قابلیت جداسازی این جاذب از محلول ها پس از انجام فرآیند جذب و ایجاد آلودگی ثانویه از مهمترین مشکلات این جاذب ها است. بنابراین ایجاد شرایطی جهت استفاده بهینه از نانولوله های کربنی و تولید پساب شفاف ضروری است. از جمله این شرایط، مغناطیسی کردن و جداسازی آن با کمک یک آهنربای خارجی می باشد. نانو ذرات مغناطیسی آهن عمدتاً به شکل Fe_3O_4 هستند که این ذرات همراه با آلاینده هدف توسط یک آهنربا جداسازی و نهایتاً از محلول حذف می شوند. علاوه بر این حضور مواد اکسید آهن نظیر Fe_3O_4 منجر به پایداری شیمیایی، کاهش سمیت و قابلیت و بازیافت عالی جاذب ها می گردد.^{۱۲، ۱۳} در

تحقیقی توسط موسوی و همکارانش در حذف دیازینون با استفاده از کربن فعال حاوی NH_4CL از آب آلوده مورد بررسی قرار گرفت، نتایج نشان داد که حداکثر جذب $97/5\%$ درصد در زمان 30 دقیقه و در pH خنثی از 20mg/L دیازینون به دست آمده است.^۴

در مطالعه ای توسط S.Nethaji و همکارانش، کربن فعال پودری تهیه شده از بایومس ذرت که به وسیله نانو ذرات مغناطیسی پوشش داده شده بود برای جداسازی Cr(VI) از محلول های آبی به کار بردند. اندازه نانو ذرات 50nm بوده است که حداکثر جذب در $\text{pH}=2$ رخ داده است و میزان آن $57/37\text{mg/g}$ بوده است.^۷ در تحقیقی توسط کاکاونندی و

همکاران، کربن فعال پودری مغناطیسی شده با Fe_3O_4 برای حذف آموکسی سیلین استفاده شد. نتایج نشان داد زمان تعادل فرآیند جذب 90 دقیقه بوده است. داده های تعادلی جذب منطبق بر ایزوترم لانگمویر و فروندلیچ بوده و سینتیک جذب با معادله سینتیکی شبه درجه دوم سازگار بوده است.^{۱۴}

با توجه به مشکلاتی که در زمینه پراکندگی نانو ذرات وجود دارد، در این مطالعه سعی بر آن است تا با استفاده از نانو لوله های کربنی چند جداره مغناطیسی شده با Fe_3O_4 ، مشکلات جدی ناشی از آن برطرف گردد.

روش کار

در مطالعه حاضر دیازینون برای تهیه محلول مادر از نمایندگی شرکت سیگما آلد ریچ خریداری شد. همچنین مواد شیمیایی مورد نیاز برای سنتز جاذب مغناطیسی، شامل نیترات آهن $(\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O})$ ، نانولوله های کربنی و اسید نیتریک $(\text{HNO}_3\ 65\%)$ از شرکت مرک خریداری شد.

کامپوزیت مغناطیسی نانولوله های کربنی - Fe_3O_4 با اندکی تغییرات در روش ارائه شده توسط دو و همکارانش، سنتز گردید.^{۱۵} در این روش، ابتدا مقدار مشخصی از نانولوله های کربنی چند جداره در 20cc اسید نیتریک 65% اشباع و به مدت

کلیه آزمایش های جذب سه بار تکرار و میانگین مقادیر آنها به صورت نتایج نهایی در محاسبات مورد استفاده قرار گرفت.

نتایج و بحث

نتایج حاصل از آنالیز XRD با استفاده از پرتو Cu Ka تحت دمای 25°C در شکل ۱a نشان می دهد که حداکثر پیک 35.5° با توجه به استاندارد (JCPDS NO-01-088-0866) مربوط به بلورهای مکعبی شکل ذرات اکسید آهن یا Fe_3O_4 بوده، که این آنالیز در واقع وجود و یا حضور ذرات Fe_3O_4 در ساختار نانو لوله کربنی (جاذب) را تایید می کند. نتایج مشابه همچنین توسط Cunha و همکارانش گزارش شده است.^{۱۸} ویژگی های سطحی کامپوزیت مغناطیسی $\text{MWCNT/Fe}_3\text{O}_4$ توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مورد آنالیز قرار گرفت. شکل ۱b، تصویر SEM مربوط به جاذب سنتز شده را در 10 keV نشان می دهد. تصویر SEM نشان می دهد که توزیع عنصر آهن روی سطح جاذب، تقریباً یکنواخت است. با وجود اینکه در آزمایش XRD، وجود کریستالهای Fe_3O_4 در ساختار MWCNT واضح است، اما در آزمایش SEM به آسانی قابل مشاهده نیست. شاید این به این دلیل باشد که بیشتر نانو ذرات اکسید آهن در فضاهای خالی نانو لوله های کربنی جایگزین شده اند.^{۱۹}

برای بررسی ساختار و اندازه گیری گونه های شیمیایی از آنالیز طیف سنجی مادون قرمز (FTIR) استفاده شد. شکل ۱c آنالیز حاصل از طیف FTIR را نشان می دهد. طیف FTIR، از هیبرید $\text{MWCNT/Fe}_3\text{O}_4$ نشان می دهد که باند 597 cm^{-1} مربوط به ارتعاش کششی Fe-O-Fe مشخصه است.

تأثیر pH

در فرآیند جذب، pH محلول نقش مهم و کلیدی را بر ظرفیت جذب دارد و می تواند بار سطحی جاذب و گروه های عاملی روی جایگاه های فعال و همچنین شیمی را تحت تأثیر

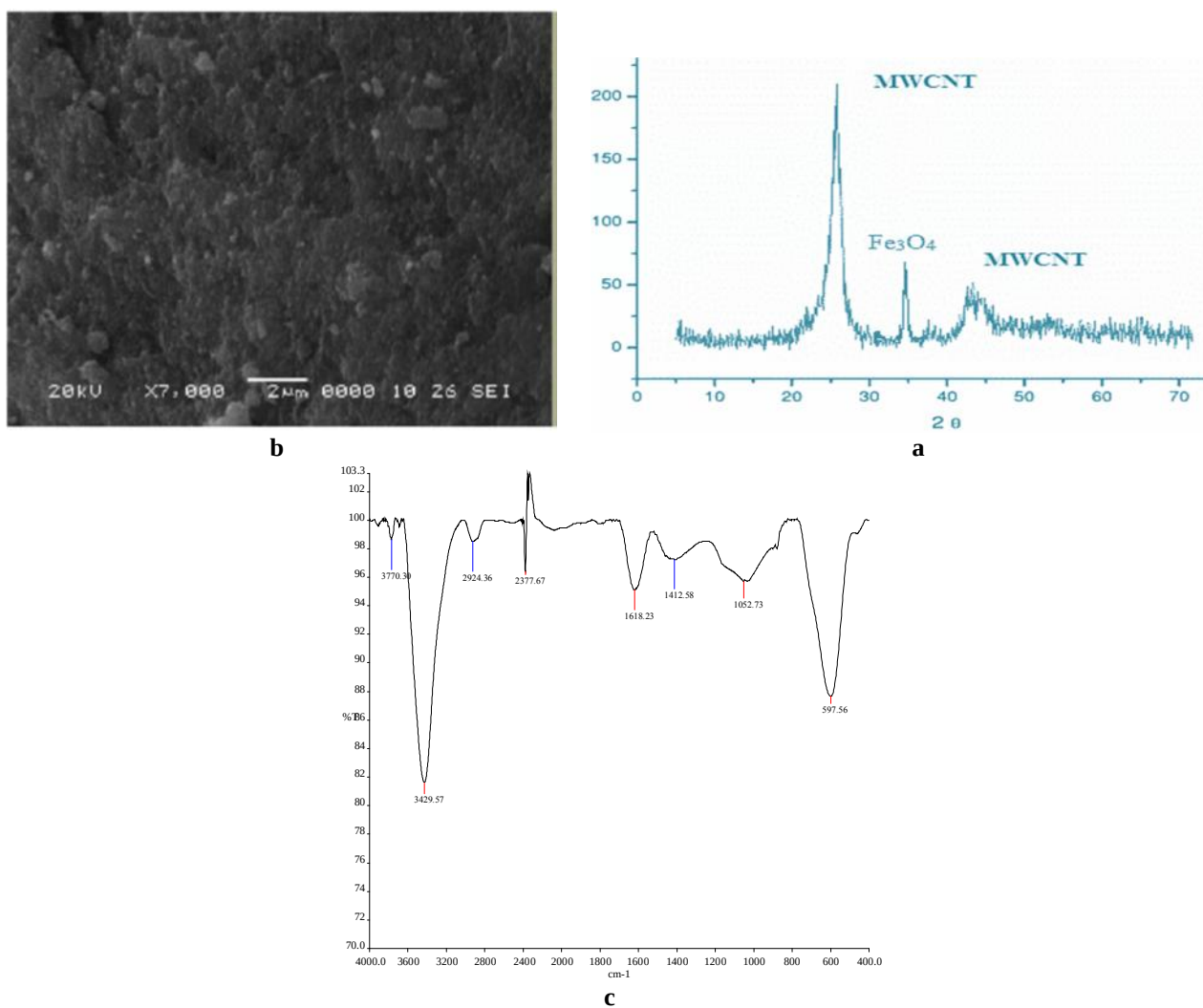
۳ ساعت تحت دمای 80°C توسط دستگاه حمام فراصوت، یکنواخت شد. سپس نمونه با پمپ خلاء صاف و پودر حاصله در محلول نیترات آهن (0.4 g/L) اشباع گردید و پس از پراکنده سازی مجدد، نمونه به کمک صافی کاغذی (واتمن) صاف شد. موهان و همکارانش و ليو و همکاران از فرو سولفات آهن، کلرید آهن (III) و اسید سولفوریک استفاده کردند.^{۱۷، ۱۶} پس از صاف کردن، نمونه در داخل کوره الکتریکی قرار داده شد. جاذب سنتز شده بعد چندین بار شستشو با آب مقطر و جداسازی آن در مجاورت آهنربا (آهنربا مکعبی شکل با شدت مغناطیسی $1/3$ تسلا و ابعاد $4 \times 4 \times 5$ سانتی متر)، نهایتاً تحت دمای 105°C خشک و برای استفاده های بعدی در داخل دسیکاتور نگهداری شد.

در مطالعه حاضر از دستگاه تفرق پرتو ایکس (XRD) مدل (Quanta chrome, NOVA2000) به منظور تعیین الگوی پراش پرتو ایکس جاذب استفاده شد. ریخت شناسی سطح جاذب و شکل و اندازه ذرات مغناطیسی Fe_3O_4 روی کربن فعال توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مدل (PHILIPS, XL-) تعیین گردید.³⁰

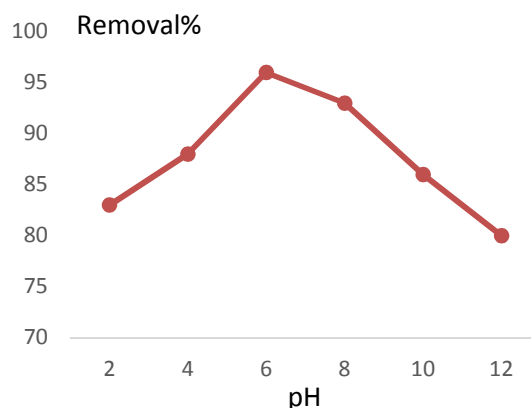
مطالعات جذب دیازینون روی کامپوزیت مغناطیسی $\text{MWCNT/Fe}_3\text{O}_4$ در یک راکتور بسته انجام گرفت. آزمایشات جذب در داخل ارلن های با حجم 100 mL حاوی 50 mL از غلظت های مختلفی از دیازینون به همراه مقادیر مشخصی از جاذب در pH، دما و زمان های مختلف انجام شد. pH محلول ها با استفاده از اسید کلریدریک 0.1 Molar (HCl) و هیدروکسید سدیم 0.1 Molar (NaOH) تنظیم و با استفاده از pH متر مدل (HACH-HQ-USA) سنجش شدند. به منظور اختلاط مناسب ماده جذب شونده و جاذب، نمونه ها به داخل دستگاه تکاننده با دور 240 rpm منتقل شدند و پس از زمان 180 دقیقه، با کمک آهنربا جاذب به روش مغناطیسی در زمان کمتر از یک دقیقه از محلول جدا گردید. غلظت های باقی مانده دیازینون در محلول، با استفاده از کروماتوگرافی گازی (GC) آنالیز شد.

بررسی میزان جذب دیازینون از محلول های آبی با استفاده از نانو لوله های کربنی مغناطیسی شده با Fe_3O_4

قرار دهد.^{۲۰}



شکل ۱: a: تصویر XRD، b: تصویر SEM، c: تصویر FTIR حاصل از جاذب سنتز شده



شکل ۲: تاثیر pH بر فرآیند جذب دیازینون با MWCNT/Fe₃O₄ بر حسب درصد حذف

جاذب و یا کامل شدن ظرفیت جاذب باشد^{۲۲}. بنابراین در مطالعه حاضر، زمان ۱۵ دقیقه به عنوان زمان تعادل برای ادامه آزمایشات فرآیند جذب انتخاب گردید. کاکاوندی و همکارانش در مطالعه حذف رنگ با استفاده از کامپوزیت مغناطیسی کربن فعال و نانو ذرات Fe₃O₄ زمان ۱۵ دقیقه را به عنوان زمان تعادل برای آزمایشات خود برگزیدند^{۲۳}.

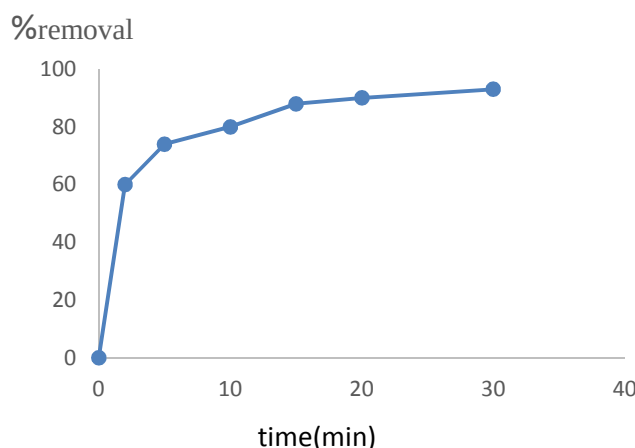
بررسی تاثیر دز جاذب و غلظت آلاینده بر فرآیند جذب

تاثیر دز جاذب یعنی نانو لوله های کربنی چند جدار مغناطیسی شده با Fe₃O₄ در غلظت های ۰/۱، ۰/۳، ۰/۶ و ۰/۹ گرم بر لیتر، در pH برابر با ۶ و زمان تماس ۱۵ دقیقه با غلظت های ۱۰، ۲۰، ۳۰ و ۴۰ میلی گرم بر لیتر از آلاینده بررسی شد. همانگونه که در شکل ۴ مشاهده می شود، با افزایش غلظت جاذب از ۰/۱ g/L به ۰/۹ g/L، در همه غلظت های آلاینده میزان جذب افزایش پیدا کرد. افزایش درصد جذب در این مورد به دلیل افزایش سطح جاذب و به دنبال آن افزایش دسترسی مولکول های ماده جذب شونده به مکان های جذب روی MWCNT/Fe₃O₄ است^{۲۳}.

به منظور مطالعه تاثیر این عامل بر فرآیند جذب محدوده ۲ تا ۱۲ بر روی ۰/۵ g/L از نانولوله های کربنی چند جداره مغناطیسی شده با Fe₃O₄ در زمان ۱۵ دقیقه و با غلظت ppm ۲۰ از دیازینون مورد آزمایش قرار گرفت.

تاثیر زمان تماس

اثر زمان تماس بر جذب دیازینون توسط MWCNT/Fe₃O₄ در pH=۶ و غلظت دیازینون ۲۰ mg/L و ۰/۵ g/L از نانولوله های کربنی چند جداره مغناطیسی شده با Fe₃O₄، در زمان های تماس از صفر دقیقه تا ۳۰ دقیقه مورد آزمایش قرار گرفت. همانطور که در شکل ۳ مشاهده می شود، حذف دیازینون با افزایش زمان تماس افزایش پیدا کرده است. مشاهده می شود که در آزمایش های اولیه منحنی شیب تندی داشته و ظرفیت جذب به سرعت افزایش یافته است. این حالت ممکن است به دلیل وجود مکان های فعال زیاد و اشباع نشده در سطوح خارجی باشد^{۲۱}. اما در ادامه، با افزایش زمان شیب به تدریج کند شده و در نهایت مقدار جذب بعد از زمان ۱۵ دقیقه به طور تقریبی ثابت و به تعادل رسیده است. ثابت شدن ظرفیت جذب و یا دستیابی به نقطه تعادل در زمان های بیشتر از ۱۵ دقیقه، می تواند ناشی از پر شدن مکان های فعال روی سطح



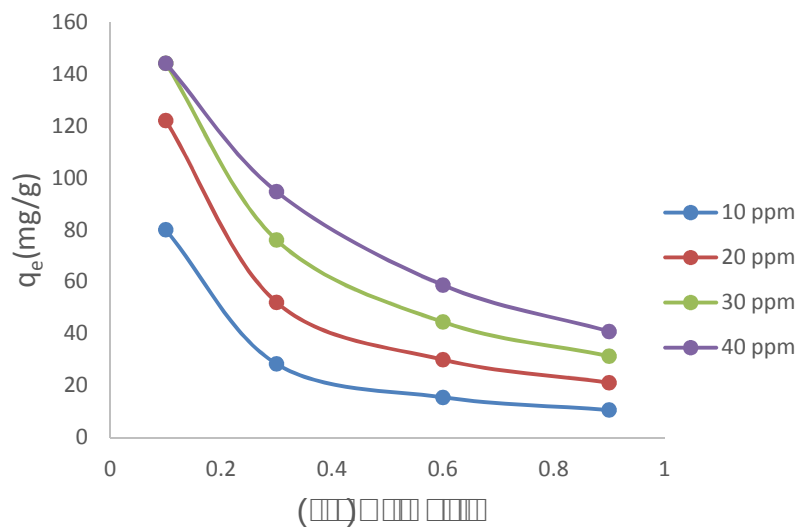
شکل ۳: تاثیر زمان تماس بر فرآیند جذب دیازینون با $\text{MWCNT/Fe}_3\text{O}_4$ بر حسب درصد حذف

جاذب 0.6 گرم بر لیتر به عنوان مقدار بهینه جاذب انتخاب شد.

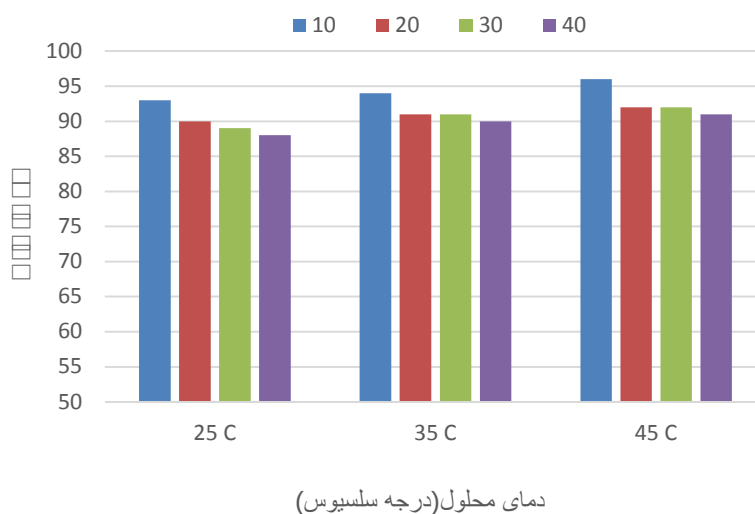
بررسی تاثیر دمای محلول بر فرآیند جذب

تاثیر دماهای مختلف (25 ، 35 و 45 درجه سلسیوس) بر فرآیند جذب، در pH بهینه 6 و زمان تماس بهینه 15 دقیقه و مقدار بهینه جاذب 0.6 گرم بر لیتر، در غلظت های مختلفی از آلایند انجام شد. همانگونه که در شکل ۵ مشاهده می شود، وقتی که دمای محلول از 25 درجه سلسیوس به 45 درجه افزایش پیدا کرد، ظرفیت جذب نیز برای غلظت های اولیه 10 ، 20 ، 30 و 40 میلی گرم بر لیتر از آلایند به ترتیب از 31 ، 60 ، 89 و $117/3$ به 32 ، $61/3$ ، 90 و 120 میلی گرم بر گرم افزایش پیدا کرد. افزایش دما از طریق 1 افزایش حلالیت ماده آلایند و به دنبال آن افزایش برخوردهای موثر بین ماده جاذب شونده و جاذب، و 2 افزایش اندازه منافذ روی سطح جاذب منجر به افزایش جذب آلایند می گردد ^{۲۶}.

همچنین با افزایش مقدار جاذب، ظرفیت جذب کاهش و با افزایش غلظت آلایند ظرفیت جذب افزایش پیدا می کند. چنانچه در غلظت آلایند 10 mg/L ، ظرفیت جذب در مقدار جاذب 0.1 g/L برابر 80 mg/g و در مقدار 0.9 g/L برابر $10/66 \text{ mg/L}$ بوده است. همچنین در غلظت 40 mg/L ، ظرفیت جذب در مقدار جاذب 0.1 g/L برابر 144 mg/g و در مقدار 0.9 g/L برابر $40/88 \text{ mg/g}$ بوده است. افزایش ظرفیت جذب با افزایش غلظت آلایند را می توان به دلیل افزایش فعل و انفعالات بین مولکول های دیازینون و سطح جاذب یا افزایش نیروی رانشی ناشی از گرادیان غلظت دانست ^{۲۴}. کاهش درصد جذب با افزایش غلظت آلایند را می توان ناشی از ثابت بودن تعداد محل های فعال روی جاذب در برابر افزایش تعداد مولکول های آلایند دانست. به عبارت دیگر اشباع شدن سطح جاذب در غلظت های بالای دیازینون دلیل عمده این روند کاهشی بوده است ^{۲۵}. بنابراین در این آزمایش، مقدار



شکل ۴: تاثیر دز جاذب و غلظت آلاینده بر فرآیند جذب دیازینون با MWCNT/Fe₃O₄ بر حسب درصد حذف



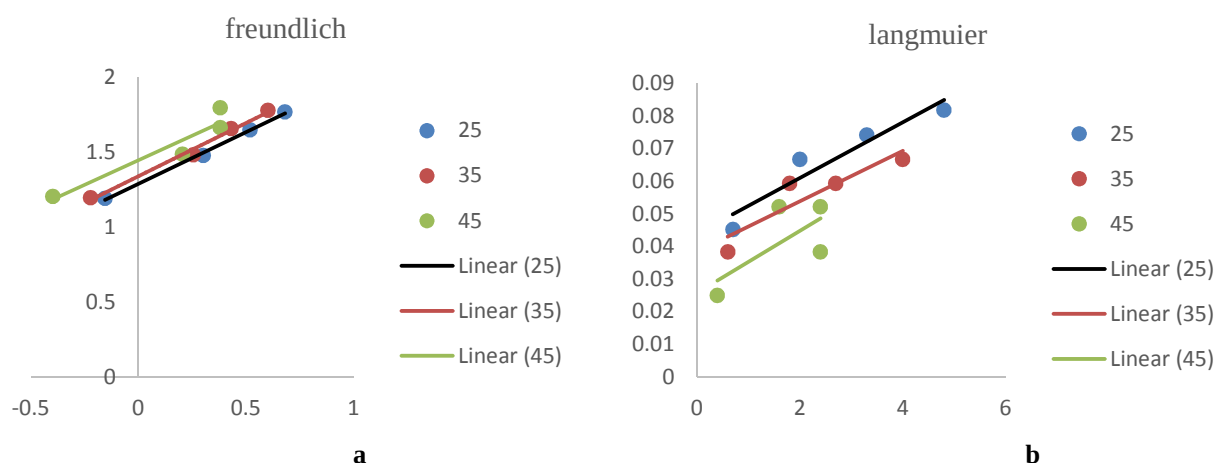
شکل ۵: تاثیر دز جاذب و غلظت آلاینده بر فرآیند جذب دیازینون با MWCNT/Fe₃O₄ بر حسب درصد حذف

ایزوترم های جذب

معادلات سینتیکی به منظور تشریح رفتار انتقال مولکول های ماده جذب شونده در واحد زمان و یا برای بررسی متغیرهای موثر بر سرعت واکنش مورد استفاده قرار می گیرند.

در تحقیق حاضر، از مدل های سینتیکی شبه درجه اول و شبه درجه دوم که بیشترین استفاده را دارند، برای بررسی عوامل موثر بر سرعت واکنش فرآیند جذب دیازینون توسط MWCNT/Fe₃O₄ استفاده شد. در شکل ۶، نمودارهای حاصل

از دو مدل ایزوترم لانگمویر و فروندلیچ آورده شده است.



شکل ۶: نمودارهای ایزوترم حاصل از جذب دیازینون با $MWCNT/Fe_3O_4$: نمودار لانگمویر: a، نمودار فروندلیچ: b

جدول ۱: متغیرهای مدل ایزوترم جذب دیازینون با $MWCNT/Fe_3O_4$

مدل ایزوترم			دمای محلول ($^{\circ}C$)
			۴۵
			۳۵
			۲۵
Langmuir			
Qm(mg/g)			۱۱۶/۲۷۹
Kl(l/mg)			۰/۱۹۶
R ²			۰/۹۰۸
Freundlich			
Kf(mg/g)			۰/۱۱
n			۱/۴۴۸
R ²			۰/۹۹۷

مقادیر پارامترهای مربوط به مدل های ایزوترم لانگمویر و فروندلیچ در جدول ۱ ارائه شده است. حداکثر میزان جذب به روش تجربی برای غلظت اولیه ۱۰ میلی گرم در لیتر دیازینون در میزان مقادیر ۰/۱، ۰/۳، ۰/۶ و ۰/۹ گرم در لیتر جاذب و دمای ۲۵ درجه سلسیوس به ترتیب ۸۰، ۲۸/۳۳، ۱۵/۵ و ۱۰/۶ میلی گرم در گرم به دست آمد.

حداکثر ظرفیت جذب محاسباتی حاصل از ثابت لانگمویر برای همان غلظت اولیه دیازینون در دمای ۲۵ درجه سلسیوس ۱۱۶/۲۷ میلی گرم در گرم شد. همچنین در جدول مشاهده می شود که ضریب همبستگی برای مدل فروندلیچ بیشتر از مدل لانگمویر بوده، به طوری که در مدل ایزوترم فروندلیچ در دو دمای ۲۵ و ۳۵ درجه سلسیوس، $R^2 > 0/98$ و در دمای ۴۵

محللول های آبی می باشند. حداکثر جذب در $\text{pH}=6$ رخ داد. زمان تماس بهینه ۱۵ دقیقه و دز جاذب بهینه 0.6 g/L بوده است. میزان جذب با افزایش زمان تماس، غلظت جاذب، کاهش دز آلاینده و افزایش دما بیشتر شد. جذب از ایزوترم فروندلیچ پیروی کرده است. همچنین حداکثر ظرفیت جذب برابر 129.87 mg/g بوده است.

تشکر و قدردانی

این مقاله حاصل بخشی از پایان نامه با عنوان تعیین میزان حذف دیازینون از محللول های آب با استفاده از نانو لوله های کربنی مغناطیسی شده با Fe_3O_4 در مقطع کارشناسی ارشد در سال ۱۳۹۳ است که با حمایت دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی و درمانی شهید بهشتی اجرا شده است. بدینوسیله از همکاری کارشناسان و مسئولین آزمایشگاه های تحقیقاتی دانشکده بهداشت کمال تشکر و قدردانی می گردد.

درجه سلسیوس $R^2 > 0.89$ بوده است، این درحالی است که در مدل ایزوترم لانگمویر در دمای ۲۵ درجه $R^2 > 0.90$ و در دمای ۳۵ درجه $R^2 > 0.82$ و در دمای ۴۵ درجه $R^2 > 0.48$ است. این مطلب بیانگر این است که ماده جذب شونده به صورت چند لایه ای و ناهمگن روی جاذب جذب شده است. همچنین مقدار RL در مدل لانگمویر بین صفر و یک و همچنین ثابت فروندلیچ $\frac{1}{n}$ کمتر از یک بوده است و نتیجه می شود که جذب دیازینون روی نانولوله های کربنی مغناطیسی شده، مطلوب بوده است.

کاکاوند و همکارانش در بررسی جذب آموکسی سیلین با استفاده از $\text{AC/Fe}_3\text{O}_4$ نشان دادند که فرآیند جذب متناسب با هر دو مدل لانگمویر و فروندلیچ است^{۱۴}.

نتیجه گیری

در این مطالعه مشخص شد که نانو لوله های کربنی مغناطیسی شده با Fe_3O_4 جاذب موثری برای حذف دیازینون از

منابع

1. öck-Schulmeyer M, Villagrasa M, López de Alda M, Céspedes-Sánchez R, Ventura F, Barceló D. Occurrence and behavior of pesticides in wastewater treatment plants and their environmental impact. *J Sci Total Environ* 2013;76: 458-66.
2. Ahmad Tanweer RM, Ghazali Arniza , Sulaiman Othman , Hashim Rokiah , Ahmad Anees. Removal of Pesticides from Water and Wastewater by Different Adsorbents: A Review. *J Environ Sci Health, Part C: Environ Carcino Ecotox Rev* 2010; 28(4):1231-7.
3. Ohno K, Minami T, Matsui Y, Magara Y. Effects of chlorine on organophosphorus pesticides adsorbed on activated carbon: Desorption and oxon formation. *Water Res* 2008; 42(6): 1753-9.
4. Moussavi G, Hosseini H, Alahabadi A. The investigation of diazinon pesticide removal from contaminated water by adsorption onto NH_4OH -induced activated carbon. *Chem Eng J* 2012;171 (3), 1159-69.
5. Wang Q, Lemley AT. Oxidation of diazinon by anodic Fenton treatment. *Water Res* 2002;36(13):3237-44.
6. Real FJ, Benitez FJ, Acero JL, Gonzalez M. Removal of diazinon by various advanced oxidation processes. *J Che Technol Biotechnol* 2007;82(6): 566-74.
7. Nethaji S, Sivasamy A, Mandal A. Preparation and characterization of corn cob activated carbon coated with nano-sized magnetite particles for the removal of Cr (VI). *J Bioresource Technol* 2013; 134: 94-100.
8. Bijan B , Alimorad R , Hamidreza P. Using Carbon Nanotubes to Remove Benzene and Toluene from Aqueous Solutions. *J Health System Res* 2012;7(6): 1203-15 [In Persian].
9. Zazouli M YZ, Taghavi M, Akbari-adargani B, Yazdani Cherati J. Removing Cadmium from Aqueous Environments using L-cysteine Functionalized Single-Walled Carbon Nanotubes. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2013; 23(98): 37-47.
10. Shahryari Z SGA, Mohebbi A. Use of Neural Network and Genetic Algorithm in Modeling of Dye Separation from Aqueous Solutions by Adsorption onto Carbon Nanotubes. *J Sep Sci Eng* 2010;2(1): 78-83.
11. Kashitarash Esfahani Z SMT, Alavi M, Manochehrpor N, Bakhani M. Efficiency of Carbon Nanotubes in

- Municipal Solid Waste Landfill Leachate (Case Study: Treatment of Hamadan Landfill Leachate). *Water Wastewater* 2011;23(2): 67-72 [In Persian].
12. Hu JS, Zhong LS, Song WG, Wan LJ. Synthesis of hierarchically structured metal oxides and their application in heavy metal ion removal. *J Adv Mater* 2008; 20(15): 2977-82.
 13. Zhong LS, Hu JS, Liang HP, Cao AM, Song WG, Wan LJ. Self-Assembled γ -Fe₂O₃ Flowerlike Iron Oxide Nanostructures and Their Application in Water Treatment. *J AdvMater* 2006; 18(18): 2426-31.
 14. Kakavandi B, Esrafil A, Mohseni-Bandpi A, Jafari AJ, Kalantary RR. Magnetic Fe₃O₄@ C nanoparticles as adsorbents for removal of amoxicillin from aqueous solution. *J Water Sci Technol* 2014;69(1): 147-55.
 15. Do MH, Phan NH, Nguyen TD, Pham TTS, Nguyen VK, Vu TTT, et al. Activated carbon/Fe₃O₄ nanoparticle composite: fabrication, methyl orange removal and regeneration by hydrogen peroxide. *Chemosphere* 2011;85(8): 1269-76.
 16. Mohan D, Sarswat A, Singh VK, Alexandre-Franco M, Pittman CU. Development of magnetic activated carbon from almond shells for trinitrophenol removal from water. *Chem Eng J* 2011;172(2):1111-25 [In Persian].
 17. Liu Z, Zhang F-S, Sasai R. Arsenate removal from water using Fe₃O₄-loaded activated carbon prepared from waste biomass. *Chem Eng J* 2010;160(1):57-62.
 18. Cunha C, Panseri S, Iannazzo D, Piperno A, Pistone A, Fazio M, et al. Hybrid composites made of multiwalled carbon nanotubes functionalized with Fe₃O₄ nanoparticles for tissue engineering applications. *Nanotechnol* 2012;23(46): 465102.
 19. Do MH, Phan NH, Nguyen TD, Pham TTS, Nguyen VK, Vu TTT, et al. Activated carbon/Fe₃O₄ nanoparticle composite: Fabrication, methyl orange removal and regeneration by hydrogen peroxide. *Chemosphere* 2011;85(8):1269-76.
 20. Du D, Wang M, Zhang J, Cai J, Tu H, Zhang A. Application of multiwalled carbon nanotubes for solid-phase extraction of organophosphate pesticide. *J Electrochem Commun* 2008;10(1):85-9.
 21. Amin NK. Removal of direct blue-106 dye from aqueous solution using new activated carbons developed from pomegranate peel: Adsorption equilibrium and kinetics. *J Hazard Mater* 2009;165(1):52-62.
 22. Babak k RRR, Ali E, Ahmad J J, Ali A. Isotherm, Kinetic and Thermodynamic of Reactive Blue 5 (RB₅) Dye Adsorption Using Fe₃O₄ Nanoparticles and Activated Carbon Magnetic Composite. *J Color Sci Technol* 2013;7(3):237-48.
 23. Lin Y-B, Fugetsu B, Terui N, Tanaka S. Removal of organic compounds by alginate gel beads with entrapped activated carbon. *J Hazard Mater* 2005;120(1):237-41.
 - Kakavandi B, Jafari AJ, Kalantary RR, Nasser S, Ameri A, Esrafil A. Synthesis and properties of Fe₃O₄-activated carbon magnetic nanoparticles for removal of aniline from aqueous solution: equilibrium, kinetic and thermodynamic studies. *J Environ Health Sci Eng* 2013;10(1):9-10.
 25. Amin NK. Removal of reactive dye from aqueous solutions by adsorption onto activated carbons prepared from sugarcane bagasse pith. *Desalination* 2008;223(1):152-61.
 26. Mustafa S, Dilara B, Nargis K, Naeem A, Shahida P. Surface properties of the mixed oxides of iron and silica. *Colloid Surf A J Physicochem Eng Asp* 2002;205(3):273-82.

Evaluation of Diazinon Adsorption from Water Solutions Using Magnetic Carbon Nano-Tubes with Fe_3O_4

Anoushiravan Mohseni-Bandpei¹, Masoud Fattahzadeh^{*1}, Roshanak Rezaei Kalantary², Akbar Eslami¹

1. Department of Environmental Health Engineering, School of Environmental Health, Shahid Beheshti University of Medical Sciences, Tehran, Iran

2. Department of Environmental Health Engineering, School of Environmental Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran

*E-mail: mf6744@yahoo.com

Received: 22 Apr 2015 ; Accepted: 24 Aug 2015

ABSTRACT

Background and objective: Insecticides are one of the most important pollutants in water. Diazinon is one of the phosphorus pesticides that can be found in aquatic ecosystems in Iran. The toxic effect of diazinon is inhibition of the enzyme acetyl cholinesterase (Ache). In this study, MWCNT/ Fe_3O_4 efficiency was investigated.

Materials and Methods: In this study, co-precipitation method was used for the Fe_3O_4 synthesis on multiwall carbon nanotube. The pH, contact time, adsorbent dose, pollutant concentrations and temperature parameters were investigated. Diazinon was measured by Gas chromatography method.

Results: The results showed that the optimum conditions for diazinon removal were pH 6, contact time of 15 minutes, and adsorption dose of 0.6 g/l. So, the absorption efficiency increases with increasing of temperature and decreasing of pollutant concentration. The diazinon adsorption corresponded with Freundlich isotherm ($R^2 > 0.99$) more than Langmuir isotherm model ($R^2 > 0.90$).

Conclusion: The results show that the magnetic carbon nanotubes with Fe_3O_4 can be suitable adsorbent for diazinon removal from aquatic environment.

Keywords: Diazinon, Carbon nanotube, Fe_3O_4 , Adsorption.