

М. Восухи Нири¹, М. Ширмарди¹, А. Асади², Г. Голестанифар³,
А. Наймабади¹, М.Дж. Мохаммади¹, М. Хейдари Фарсани¹

УДАЛЕНИЕ КРАСИТЕЛЯ РЕАКТИВНОГО КРАСНОГО 120 ИЗ ВОДНОГО РАСТВОРА ПУТЕМ АДСОРБЦИИ НА НАНОАЛЮМООКСИДЕ

¹Медицинский университет им. Джандишапура, г. Ахваз;

²Медицинский университет им. Шахида Бехешти, г. Тегеран;

³Национальная Иранская нефтяная компания, г. Тегеран, Иран

mvp_20@yahoo.com

Исследована адсорбция красителя реактивного красного 120 из водного раствора с помощью наноалюмооксида. Изучено влияние на процесс адсорбции pH, продолжительности контакта, концентрации красителя и дозы адсорбента. Максимальная эффективность адсорбции наблюдалась при pH 3. Однако с возрастанием дозы адсорбента степень удаления красителя повышалась, а количество адсорбированного красителя на единицу массы (мг/г) снижалось. Модель псевдвторого порядка наилучшим образом описывала кинетику адсорбции указанного красителя на наноалюмооксиде. В данном случае наиболее пригодной являлась изотермическая модель Ленгмюра. Показано, что наноалюмооксид может служить эффективным адсорбентом для удаления красителя реактивного красного 120 из водных растворов.

Ключевые слова: адсорбция, изотермы адсорбции, кинетика, краситель реактивный красный 120, наноалюмооксид.

Введение. Во многих производственных процессах используют синтетические красители для получения текстиля, пластмассы, кожи, пищевых продуктов, бумаги и др. [1 – 3]. В соответствии с цветовым индексом в настоящее время в мире синтезировано и доступно на рынке свыше 10000 различных типов красителей. Хотя последние данные о производстве красителей в мировом масштабе отсутствуют, в литературе часто встречаются сообщения о том, что годовое производство красителей превышает 700000 т. По данным [4, 5], от 10 до 15% красителей теряется в результате их попадания в сточные воды во время процесса окрашивания. Реактивные азокрасители являются

© М. Восухи Нири, М. Ширмарди, А. Асади, Г. Голестанифар, А. Наймабади, М.Дж. Мохаммади, М. Хейдари Фарсани, 2014

наиболее распространенными соединениями, составляющими ~ 60 – 70% от общего количества красителей, которые используются на предприятиях разных отраслей [6].

Сброс окрашенной сточной воды в водоприемники создает серьезные экологические, эстетические и санитарные проблемы [7]. Присутствие красителя в воде не только вызывает эстетическое недовольство, но и затрудняет проникновение солнечного света, что нарушает нормальное существование гидробионтов (водной флоры и фауны); кроме того, синтетические красители токсичны для водных микроорганизмов и животных [8, 9]. К тому же некоторые красители и их побочные продукты являются канцерогенами [9, 10].

Для удаления красителя используют различные методы, включая химическое осаждение, адсорбцию, обратный осмос и др. [11, 12]. Среди них наиболее распространенным является адсорбция [4, 9, 12, 13].

При изучении адсорбции красителей были исследованы многие виды активного угля [12 – 18], недостатком которого является высокая стоимость его производства [19 – 21]. Поэтому необходимо было оптимизировать процесс адсорбции и разработать новые альтернативные и недорогие адсорбенты.

В последние годы для очистки обычных и сточных вод используют методы нанотехнологии [4, 20]. Одним из преимуществ применения наноматериалов могут быть такие их свойства, как самосборка, большая площадь поверхности и повышенная реакционная способность; поэтому они могут быть потенциально полезными для ремедиации обычных и сточных вод [3, 20].

Цель данной работы – оценка адсорбционной способности наноматериала в отношении удаления красителя реактивного красного 120 (RR120) из водного раствора.

Методика эксперимента. Краситель RR120 ("Alvan Sabet Co. Ltd.") – $C_{44}H_{24}C_{12}N_{14}O_{20}S_6Na_6$ – использовали без дополнительной очистки. Его химическая структура представлена на рис. 1. Исходный раствор (1000 мг/дм³), необходимый для дальнейших экспериментов, готовили путем растворения RR120 в дистиллированной воде. С помощью спектрофотометра модели Lambda 25 (фирма "Perkin Elmer") было установлено, что максимальная абсорбционная способность (оптическая плотность) красителя наблюдается при длине волны $\lambda_{\text{макс}} = 537$ нм для спектра поглощения от 200 до 800 нм. Другие химические реактивы,

использованные в нашей работе, предоставлены компанией "Мерк" (Германия).

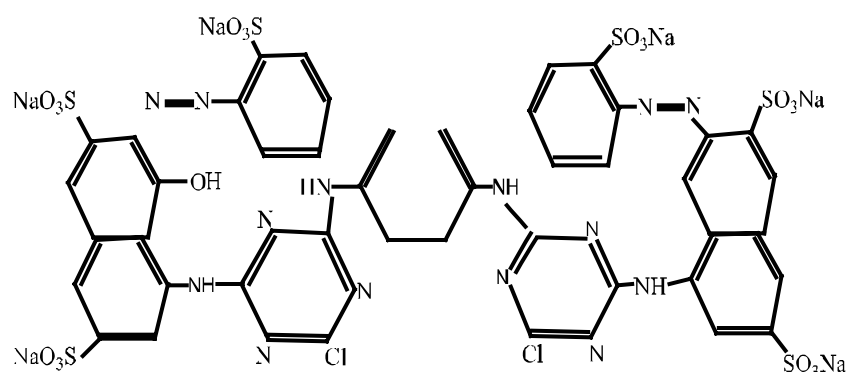


Рис. 1. Структура красителя реактивного красного 120.

Характеристики nanoалюмооксидного порошка Al_2O_3 ("Nano Pars Lima Co. Ltd") следующие:

Объемная (кажущаяся) плотность.....0,9 г/см³

Внешний видБелый порошок

Чистота в процентах.....99%

Удельная площадь поверхности>160 м²/г

Размер частиц20 нм

Al_2O_399%

Ca.....< 25 ppm

V.....< 7 ppm

Cl.....< 315 ppm

Na.....< 70 ppm

Mn.....< 3 ppm

Co.....<2 ppm

На рис. 2, а показано, что алюмооксидные наночастицы имеют в растворе сферическую форму со средним диаметром 20 нм. Эти

сферические частицы способны слипаться и образовывать цепные структуры. Фазовый анализ наноалюмооксида проводили с помощью рентгенодифрактограммы (рис. 2, б), что подтвердило присутствие в сорбенте алюмооксидной фазы.

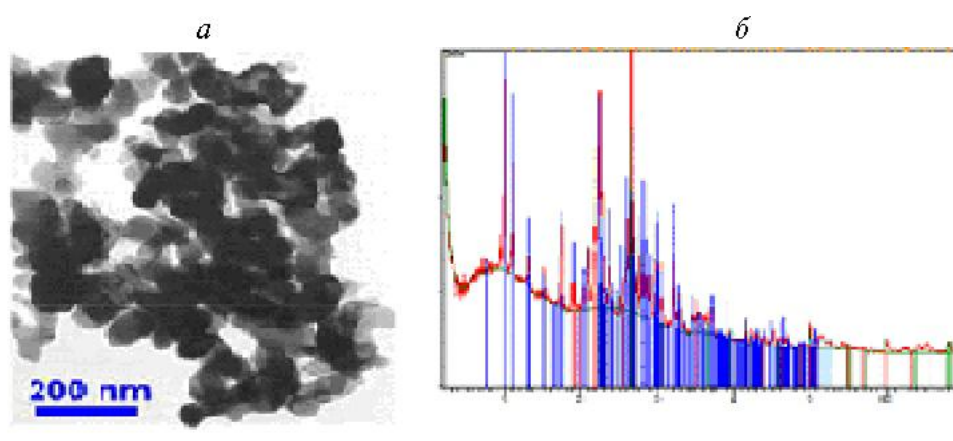


Рис. 2. ТЭМ изображение (а) и рентгенодифрактограмма (б) наноалюмооксида.

Адсорбционные эксперименты. Исходный раствор (1000 мг/дм³) приготавливали при помощи растворения красителя в дистиллированной воде. Необходимые концентрации получали из исходного раствора путем разбавления. Исследовали влияние таких показателей, как продолжительность контакта, начальная концентрация, рН, доза адсорбента. Определение кинетики адсорбции осуществляли путем анализа адсорбции красителя через разные интервалы времени. Раствор красителя (100 см³) с различными концентрациями (25; 50; 75; 100 мг/дм³) наливали в конические колбы (по 200 см³), содержащие 0,08 г наноалюмооксида. Колбы помещали во встряхиватель для перемешивания содержимого в течение заданного времени (при скорости вращения 150 об/мин и рН 7). После обработки раствора красителя в центрифуге (при скорости вращения 4000 об/мин) в течение 10 мин определяли остаточные концентрации с помощью спектрофотометра при длине волны $\lambda_{\text{макс}} = 537$ нм для разных значений времени контакта. Для получения изотерм эксперименты по адсорбции красителя проводили с помощью термостатированного встряхивателя (модель Innova 4340, США) при фиксированной дозе адсорбента (0,8 мг/дм³) в течение постоянного

времени, превышающего время установления равновесного состояния. Воздействия разных доз адсорбента в интервале от 0,2 до 1,2 г/дм³ были исследованы при различных уплотнениях красителя. Влияние начального рН изучали в диапазоне 2 – 11 при постоянной дозе адсорбента и различных значениях начальной концентрации красителя. Для корректировки требуемого значения рН использовали растворы 0,1 М HCl и NaOH, приготовленные из реактивов, имеющих аналитическую степень чистоты. Холостую пробу использовали в качестве контрольной для каждой серии экспериментов. Процентный показатель степени удаления красителя (R , %) рассчитывали по формуле

$$R = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \cdot 100, \quad (1)$$

где C_0 и C_t – соответственно начальная и остаточная концентрации красителя (мг/дм³) в данный момент времени t .

Количество красителя, адсорбированного на наноалюмооксиде, определяли как

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

где q_t – количество адсорбированного красителя на единицу наноалюмооксида (мг/г); V – объем водной фазы (дм³); m – количество адсорбента (мг).

Результаты и их обсуждение. *Влияние продолжительности контакта и начальной концентрации красителя.* Эксперименты показали, что количество адсорбированного красителя постепенно повышается с увеличением продолжительности контакта. Как следует из рис. 3, полученное время установления равновесия составляет 150 мин. Кроме того, выявлено, что удаление красителя зависит от его начальной концентрации. За время установления равновесия количество адсорбированного красителя (V_e) увеличивается от 29 до 35,65 мг/г при росте начальной концентрации красителя от 25 до 100 мг/дм³. Для оценки влияния продолжительности контакта и начальной концентрации красителя использовали фиксированную дозу наноалюмооксида и значение рН 7 для каждой концентрации красителя.

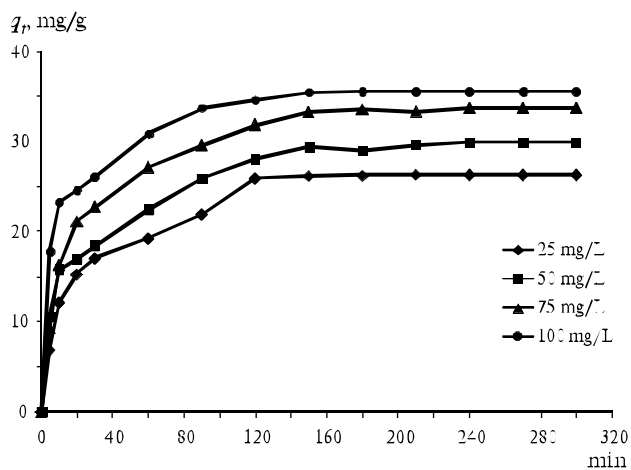


Рис. 3. Влияние продолжительности контакта и начальной концентрации на степень удаления красителя RR120 (pH 7, доза адсорбента – 0,8 г/дм³).

Влияние pH. Следует отметить, что степень удаления красителя возрастает с уменьшением pH (рис. 4). При этом значение pH является оптимальным для удаления красителя RR120 с помощью наноалюмооксида. Максимальная количественная адсорбция красителя имела место при начальном значении pH, равном 3 и ниже.

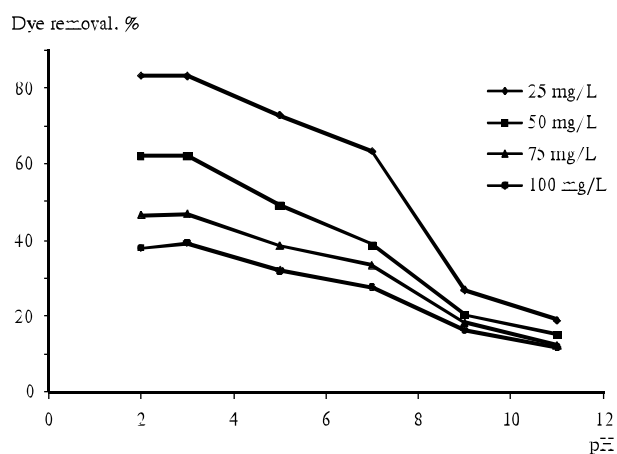


Рис. 4. Влияние pH на степень удаления красителя RR120 (доза адсорбента – 0,8 г/дм³, t – 150 мин).

Низкое значение рН приводит к возрастанию концентрации ионов водорода в растворе, и в результате адсорбирования H^+ на поверхности наноалюмооксида образуется положительный заряд [12, 22]. Поскольку поверхность наноалюмооксида имеет положительный заряд при низких значениях рН, очень сильное электростатическое притяжение появляется между положительно заряженной наноалюмооксидной поверхностью и анионной молекулой красителя RR120, что ведет к его максимальному удалению [23]. Кроме того, низкая адсорбция красителя в условиях повышенных значений рН также обусловлена конкуренцией за центры адсорбции со стороны избыточных ОН-ионов и анионных молекул красителя RR120. Согласно [10] максимальная биосорбция последнего на природных и модифицированных препаратах грибковой биомассы *Lentinus Sajor-Caju* наблюдалась при рН 3. Однако в [24] максимальное удаление красителя кристалл-виолет с помощью алюмооксида, модифицированного ПАВ, наблюдалось при рН 8. Полученные результаты свидетельствуют, что рН играет важную роль в эффективности удаления красителя с помощью наноалюмооксида.

Влияние дозы адсорбента. На рис. 5 показано влияние дозы адсорбента на степень удаления красителя при разных начальных концентрациях последнего (25; 50; 75; 100 мг/дм³). При увеличении дозы наноалюмооксида от 0,2 до 1,2 г/дм³ степень удаления красителя возрастает. При этом количество адсорбированного красителя q_e (мг/г) для различных его концентраций снижается с повышением дозы адсорбента. В соответствии с данными рис. 5 величина q_e при начальной концентрации 25 мг/дм³ уменьшается с 26,69 до 18 мг/г, а при начальной концентрации 100 мг/дм³ – с 51 до 45 мг/г при возрастании дозы адсорбента от 0,2 до 1,2 г/дм³. Нетрудно понять, что количество доступных центров адсорбции увеличивается при повышении дозы адсорбента и, следовательно, приводит к заметному удалению красителя в процентном выражении. Однако опыты показали, что количество адсорбированного красителя на единицу массы уменьшается при увеличении дозы наноалюмооксида, что обусловлено наличием ненасыщенных центров адсорбции [22, 25].

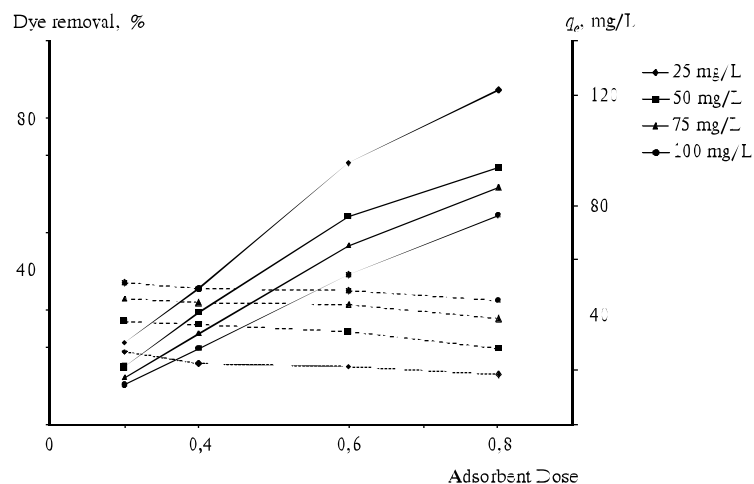


Рис. 5. Влияние дозы адсорбента на степень удаления красителя (доза адсорбента – 0,8 г/дм³, рН 3, t = 150 мин).

Модели адсорбции. Кинетика адсорбции. Существует несколько видов кинетических моделей, однако наиболее распространенными являются модели псевдопервого и псевдовторого порядка. Модель Лагергрена псевдопервого порядка представляет собой одно из наиболее широко используемых уравнений для сорбции растворенного вещества из жидкого раствора [15]. Дифференциальное уравнение псевдопервого порядка имеет вид:

$$\frac{dq_t}{dt} = k_1(q_e - q_t), \quad (3)$$

где q_t и q_e – количество адсорбированного красителя (мг/г) соответственно ко времени t и времени наступления равновесия; k_1 – константа скорости адсорбции (мин). Интегрирование уравнения (3) с начальными условиями $q_t = 0$ при $t = 0$ приводит к следующему результату:

$$\log(q_e - q_t) = \log q_e - \frac{k_1}{2,303}t. \quad (4)$$

Точка пересечения и тангенс угол наклона графика зависимости $\log(q_e - q_t)$ от t использованы для определения соответственно значений равновесной адсорбционной способности q_e и константы скорости адсорбции псевдопервого порядка k_1 , [15]. На рис. 6 показана линей-

ная зависимость кинетического уравнения псевдопервого порядка при всех концентрациях красителя.

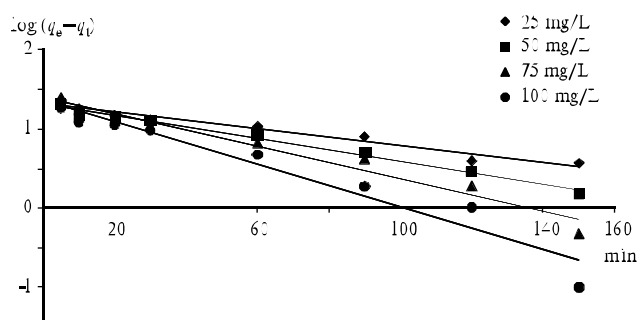


Рис. 6. Кинетическое уравнение псевдопервого порядка, описывающее адсорбцию красителя RRI20 на nanoалюмооксиде (доза адсорбента – 0,8 г/дм³, рН 7).

Теоретическая константа скорости, экспериментальные и теоретические значения q_e и соответствующие значения коэффициентов корреляции представлены в табл. 1, в которой показано, что константа скорости k_1 увеличивается с ростом концентрации, а коэффициенты корреляции (r^2) являются относительно малыми при всех значениях концентраций.

Таблица 1. Константы скорости адсорбции псевдопервого и псевдвторого порядка, а также теоретические и экспериментальные значения q_e для адсорбции красителя RRI20 на nanoалюмооксиде

Про-ба, мг/дм ³	Уравнение псевдопервого порядка			Уравнение псевдвторого порядка			
	q_e (эксперим.), мг/г	q_e (теор.), мг/г	k_1 , мин ⁻¹	r^2	q_e (расч.), мг/г	k_2 , г · мг ⁻¹ × мин ⁻¹	r^2
25	29,8	20,3	$1,899 \cdot 10^{-3}$	0,969	28,57	$9,212 \cdot 10^{-3}$	0,987
50	31	24,3	$1,911 \cdot 10^{-3}$	0,989	32,25	0,0161	0,99
75	33,7	18,2	$1,711 \cdot 10^{-3}$	0,962	36,03	0,02303	0,997
100	36,6	9,6	$2,828 \cdot 10^{-3}$	0,939	38,48	0,0299	0,997

Следует отметить, что теоретические значения q_e для кинетического уравнения псевдопервого порядка плохо согласуются с экспериментальными значениями (см. табл. 1). Эти данные свидетельствуют, что модель псевдопервого порядка нельзя применять для прогнозирования адсорбции красителя RR120 на nanoaluminum oxide.

Модель псевдovторого порядка [26]. Соответствующее дифференциальное уравнение можно представить как

$$\frac{dq_t}{dt} = k_2(q_e - q_t)^2, \quad (5)$$

где k_2 – константа равновесной скорости, рассчитанная для модели адсорбции псевдovторого порядка ($\text{гм}^{-1}\text{мин}^{-1}$). Интегрируя уравнение (5) с граничными условиями $q_t = 0$ до q_t и $t = 0$ до t , получим:

$$\frac{1}{q_e - q_t} = \frac{1}{q_e} + k_2 t. \quad (6)$$

Уравнение (6) может быть преобразовано и приведено к линейному виду:

$$\frac{1}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t; \quad (7)$$

$$h = k^2 q_e^2, \quad (8)$$

где h – начальная скорость сорбции, которая определяется по точке пересечения. Значение q_e получают на основании тангенса угла наклона графика зависимости t/q_t от t (рис. 7), k_2 можно рассчитать с помощью начальной скорости сорбции. Рассчитанные значения q_e очень хорошо согласуются с экспериментальными данными (см. табл. 1). Коэффициенты корреляции (r) для кинетической модели псевдovторого порядка $> 0,96$ для всех значений концентраций. Это свидетельствует о том, что адсорбция красителя RR120 из раствора на nanoaluminum oxide подчиняется кинетической модели псевдovторого порядка. Такие же результаты зафиксированы и для адсорбции нитрата на nanoaluminum oxide [23].

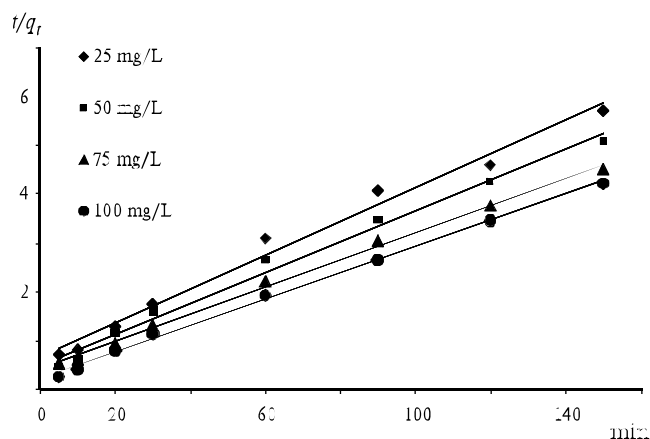


Рис. 7. Кинетическое уравнение псевдвторого порядка для адсорбции красителя RR120 на наноалюмооксиде (доза адсорбента – 0,8 г/дм³, pH 7).

Изотермы адсорбции. Анализ экспериментальных данных осуществляли с помощью моделей на основе изотерм Ленгмюра и Фрейндлиха. Линейную форму уравнения Ленгмюра можно записать как

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{q_m k_L} + \frac{1}{q_m} C_e, \quad (9)$$

где C_e (мг/дм³) – равновесная концентрация красителя RR120 в растворе, q_m – максимальная адсорбционная способность, соответствующая покрытию монослоем (мг/г), k_L – константа Ленгмюра, связанная с энергией сорбции (Л/мг). График зависимости C_e/q_e от C_e имеет вид прямой линии (рис. 8), тангенс угла наклона и точка пересечения с осью этой прямой соответствуют q_m и k_L [17, 27]. Теоретические коэффициенты корреляции (r) и константа Ленгмюра для красителя RR120 представлены в табл. 2. Анализ этой таблицы показывает, что максимальная сорбционная способность наноалюмооксида для данного красителя и значение r составляют соответственно 53,63 мг/г и 0,99 при 25°C. Значение r по изотерме Ленгмюра оказалось больше, чем по изотерме Фрейндлиха для случая адсорбции данного красителя. Это свидетельствует, что модель Ленгмюра описывает адсорбцию красителя RR120 на наноалюмооксиде лучше, чем модель Фрейндлиха.

Таблица 2. Параметры изотермы и коэффициенты корреляции при адсорбции красителя RR120 на наноалюмооксиде

T°С	Изотерма Ленгмюра				Изотерма Фрейндлиха		
	q_m (mg · g ⁻¹)	k_L (L · mg ⁻¹)	r^2	R_L	n	k_f	r^2
25	65,23	0,1583	0,99	0,059~0,38	2,873	11,91	0,969

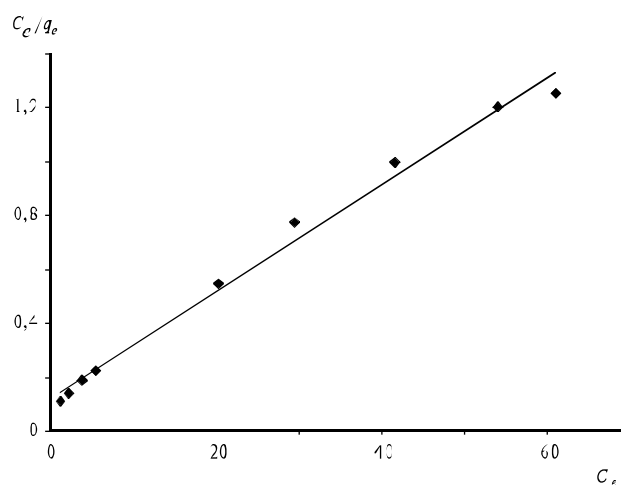


Рис. 8. Изотерма Ленгмюра для адсорбции красителя RR120 на наноалюмооксиде (доза адсорбента – 0,8 г/дм³; pH 3; T – 25°С).

Важные атрибуты безразмерного фактора разделения R_L могут быть записаны следующим образом:

$$R_L = \frac{1}{1 + C_0 k_L}, \quad (10)$$

где C_0 – начальная концентрация красителя RR120 (мг/г). Значения R_L в интервале от 0 до 1 свидетельствуют об эффективной адсорбции. Процесс адсорбции является необратимым, когда $R_L = 0$, и линейным, когда $R_L = 1$, однако он является неблагоприятным, когда $R_L > 1$ [28]. Рассчитанные значения R_L для исследуемой системы адсорбции показали, что они лежат в диапазоне от 0,059 до 0,38 для концентраций красителя в диапазоне от 25 до 100 мг/дм³ при 25°С. Соответственно, эти значения показывают, что процесс адсорбции является благоприятным.

Другой возможной моделью является модель на основе изотермы Фрейндлиха для адсорбции на аморфной поверхности. Это предполагает неоднородность поверхности и экспоненциальное распределение активных центров и их энергий. Линейную форму изотермы Фрейндлиха можно представить в виде [27, 28]

$$\log q_e = \log k_F + \frac{1}{n} \log C_e, \quad (11)$$

k_F и n – константы Фрейндлиха (n – индикатор степени благоприятности процесса адсорбции и k_F – адсорбционная емкость адсорбента). Эти константы могут быть определены на основе линейного графика зависимости $\log q_e$ от $\log C_e$ (рис. 9). Параметр k_F – это коэффициент адсорбции или распределения, который представляет собой количество красителя, адсорбированного на наноалюмооксиде для единичной равновесной концентрации.

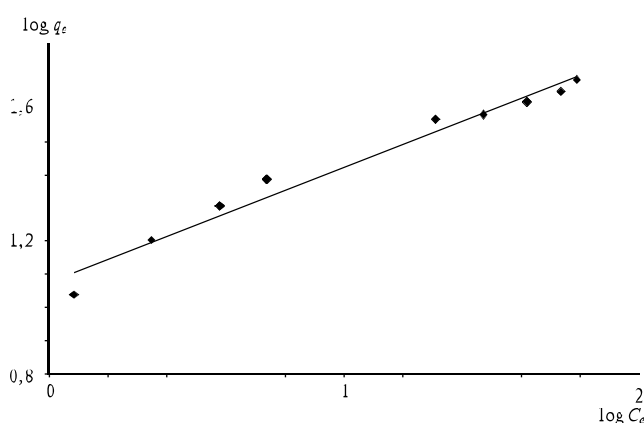


Рис. 9. Изотерма Фрейндлиха для адсорбции красителя RR120 на наноалюмооксиде (доза адсорбента – 0,8 г/дм³, рН 3, T – 25°C).

Тангенс угла наклона $1/n$ в диапазоне значений от 0 до 1 является мерой интенсивности адсорбции либо поверхностной неоднородности, причем степень неоднородности возрастает по мере приближения этого значения к нулю [29].

Значение показателя степени ($1/n$) может служить индикатором благоприятной адсорбционной способности. Так, при $n > 1$ создаются благоприятные условия адсорбции [30]. Значения k_F и n рассчитаны на основании точки пересечения с осью и тангенса угла наклона графика

(см. табл. 2). Они показывают, что краситель RR120 успешно адсорбируется nanoaluminum oxide. Однако значения коэффициента корреляции r указывают на то, что изотерма Ленгмюра наилучшим образом описывает адсорбцию красителя RR120 на nanoaluminum oxide.

Выводы. Показано, что nanoaluminum oxide является достаточно эффективным средством для удаления красителя RR120 из водного раствора. Исследовано влияние продолжительности контакта, начальной концентрации и значения pH, а также дозы адсорбента на эффективность удаления красителя. Установлено, что оптимальное значение pH для его адсорбции на nanoaluminum oxide составляет 3 и ниже. На основании проведенных экспериментов выявлено, что кинетика адсорбции красителя RR120 на nanoaluminum oxide хорошо описывается моделью псевдотортого порядка. Моделирование на основе изотермы показало, что уравнение изотермы Ленгмюра позволяет лучше описать адсорбцию на nanoaluminum oxide по сравнению с уравнением Фрейндлиха. Nanoaluminum oxide можно получить простым и экономически эффективным способом.

Исследовательская работа выполнена при поддержке Тегеранского медицинского университета, грант 90-02-61-13727.

Резюме. Досліджено адсорбцію барвника реактивного червоного 120 з водного розчину за допомогою nanoaluminum oxide. Вивчення ступінчастої адсорбції проводили для визначення впливу на процес адсорбції показника pH, тривалості контакту, концентрації барвника і дози адсорбенту. Максимальна ефективність адсорбції спостерігалася при pH 3. Проте із зростанням дози адсорбенту міра видалення барвника підвищувалася, а кількість адсорбованого барвника на одиницю маси (мг/г) знижувалася. Модель псевдотортого порядку якнайкраще описувала кінетику адсорбції вказаного барвника на nanoaluminum oxide. В даному випадку найбільш придатною була ізотермічна модель Ленгмюра. Результати цієї роботи показали, що nanoaluminum oxide може служити ефективним адсорбентом для видалення барвника реактивного червоного 120 з водних розчинів.

*M. Vosoughi Niri, M. Shirmardi, A. Asadi, H. Golestanifar, A. Naeimabadi,
M.J. Mohammadi, M. Heidari Farsani*

REACTIVE RED 120 DYE REMOVAL FROM AQUEOUS SOLUTION BY ADSORPTION ON NANO-ALUMINA

Summary

This study investigated the adsorption of Reactive Red 120 from aqueous solution by using nano-alumina. Batch adsorption studies were carried out as a function of pH, contact time, concentration of dye and adsorbent dose on adsorption process. The maximum adsorption efficiency was observed at pH 3 and below. However with an increasing the adsorbent dose, dye removal efficiency increased, but the amount of dye adsorbed per unit mass (mg/g) decreased. The pseudo-second-order model best described the adsorption kinetics of Reactive Red 120 onto nano-alumina. The Reactive Red 120 sorption has been well explained using Langmuir isotherm model. Findings of the present study revealed that nano-alumina can be an effective adsorbent for the removal of Reactive Red 120 from aqueous solutions.

Список использованной литературы

- [1] Luo P., Zhao Y., Zhang B., Liu J., Yang Y., Liu J. // *Water Res.* – 2010. – **44**, N 5. – P. 1489–1497.
- [2] Forgacs E., CserhAti T., Oros G. // *Environ. Int.* – 2004 – **30**, N 7 – P. 953–971.
- [3] Zhao M., Tang Z., Liu P. // *J. Hazard. Materials.* – 2008. – **158**, N 1. – P. 43–51.
- [4] Moussavi G., Mahmoud, M. // *Ibid.* – 2009. – **168**, N 2/3. – P. 806–812.
- [5] Shirmardi M., Mahvi A.H., Mesdaghinia A., Nasseri S., Nabizadeh R. // *Desal. Water. Treat.* – 2013. – **51**, N 34/36. – P. 6507 – 6516.
- [6] Ozdemir O., Turan M., Turan A.Z., Faki A., Engin A.B. // *J. Hazard. Materials.* – 2009. – **166**, N2/3. – P. 647– 654.
- [7] Gupta V.K., Suhas. J. // *J. Environ. Management.* – 2009. – **90**, N 8. – P. 2313–2342.
- [8] Shirmardi M., Mahvi A.H., Mesdaghinia A., Nasseri S., Nabizadeh R. // *J. Chem.* – 2012. – **9**, N 4. – P. 2371 – 2383.
- [9] Shirmardi M., Mahvi A.H., Hashemzadeh B., Naeimabadi A., Hassani G., Niri M.V. // *Korean J. Chem. Eng.* – 2013. – **30**, N 8. – P. 1603 –1608.

- [10] *Arcla M.Y., Bayramoglu G. // J. Hazard. Materials.* – 2007. – **149**, N 2. – P. 499–507.
- [11] *Zendehdel M., Barati A., Alikhani H., Hekmat A. //Iran. J. Environ. Health Sci. and Eng.* – 2010. – **7**, N 5. – P. 431–436.
- [12] *Malik P.K. // J. Hazard. Materials.* – 2004. – **113**, N 1/3. – P. 81–88.
- [13] *Senthilkumaar S., Kalaamani P., Porkodi K., Varadarajan P.R., Subburaam C.V. // Biores. Technol.* – 2006. – **97**, N 14. – P. 1618–1625.
- [14] *Orfao J.J.M., Silva A.I.M., Pereira J.C.V., Barata S.A., Fonseca I.M., Faria P.C.C., Pereira M.F.R. // J. Colloid and Interface Sci.* – 2006. – **296**, N 2. – P. 480–489.
- [15] *Amin N.K.// Desalination.* – 2008. – **223**, N 1/3. – P. 152 – 161.
- [16] *Namasivayam C., Kavitha D. //Dyes and Pigments.* – 2002. – **54**, N 1. – P. 47–58.
- [17] *Santhy K., Selvapathy P. // Biores. Technol.* – 2006. – **97**, N 11. – P. 1329–1336.
- [18] *Hameed B.H., Ahmad A.L., Latiff K.N.A.// Dyes and Pigments.* – 2007. – **75**, N 1. – P. 143–149.
- [19] *Aksu Z.// Proc. Biochem.* – 2005. – **40**, N 3/4. – P. 997–1026.
- [20] *Absalan G., Asadi M., Kamran S., Sheikhan L., Goltz D.M. // J. Hazard. Materials.* – 2011. – **192**, N2. – P. 476–484.
- [21] *Garg V.K., Gupta R., Bala Yadav, A., Kumar R.// Biores. Technol.* – 2003. –