

# بررسی راندمان سیلیکا آتروژل اصلاح شده در حذف فلزات سنگین از محلول‌های آبی

مریم شکوهی<sup>۱</sup>، حسین فقیهیان<sup>۲</sup>، حشمت‌اله نورمرادی<sup>۳</sup>

## چکیده

**مقدمه:** سیلیکا آتروژل، ذرات نانو متخلخل از سیلیکا بوده، سبک‌ترین ماده جامد مصنوعی می‌باشد. از ویژگی‌های بارز این ماده، مساحت سطح بالا ( $1500 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ )، دانسیته کم ( $0.3 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) و میزان تخلخل بالا (۹۹ درصد) می‌باشد. در این پژوهش، سیلیکا آتروژل به عنوان جاذب کاتیون‌های فلزات سنگین از محلول‌های آبی، مورد بررسی قرار گرفت.

**روش‌ها:** سیلیکا آتروژل به روش سل ژل سنتز شد و سطح آن توسط آمینو پروپیل تری اتوکسی سیلان اصلاح شد. سیلیکا آتروژل اصلاح سطح شده با روش‌های SEM و BET مطالعه شد. سپس، توانایی آن در جذب کاتیون‌های  $\text{Ni}^{2+}$ ،  $\text{Zn}^{2+}$ ،  $\text{Cd}^{2+}$ ،  $\text{Pb}^{2+}$  بررسی شد. در نهایت پارامترهای مؤثر بر جذب از جمله pH برابر (۱۲-۲)، زمان تماس (۴۸-۰ ساعت)، میزان جاذب (۱/۵-۰ گرم) و غلظت فلزات (۵۰۰-۰ میلی‌گرم بر لیتر) مورد بررسی قرار گرفت.

**یافته‌ها:** جذب بهینه برای تمام کاتیون‌ها در pH برابر ۶ و برای کادمیوم در pH برابر ۸ رخ داد. زمان تماس بهینه نیز برای جذب تمام کاتیون‌های مورد مطالعه برابر ۲۴ ساعت بود. بررسی ایزوترم‌های Freundlich و Langmuir نشان داد که داده‌های به دست آمده از کاتیون‌های مورد بررسی با هر دو ایزوترم مطابقت دارد. بالاترین ظرفیت جذبی جاذب به ترتیب  $45/45 \text{ mg}$ ،  $35/71 \text{ mg}$ ،  $40/00 \text{ mg}$  و  $34/48 \text{ mg}$  از کاتیون‌های  $\text{Pb}^{2+}$ ،  $\text{Cd}^{2+}$ ،  $\text{Ni}^{2+}$  و  $\text{Zn}^{2+}$  بر g جاذب به دست آمد.

**نتیجه‌گیری:** به طور کلی نتایج حاصل از آزمایشات انجام شده حاکی از توانایی بالای جذب کاتیون‌های  $\text{Ni}^{2+}$ ،  $\text{Cd}^{2+}$ ،  $\text{Pb}^{2+}$  و  $\text{Zn}^{2+}$  توسط سیلیکا آتروژل اصلاح سطح شده با آمینو پروپیل تری اتوکسی سیلان بود؛ به طوری که می‌توان از آن در تصفیه آب و فاضلاب‌های صنعتی و شهری استفاده کرد.

**واژه‌های کلیدی:** سیلیکا آتروژل اصلاح شده، جذب، فلزات سنگین، ایزوترم جذب.

## نوع مقاله: تحقیقی

دریافت مقاله: ۸۸/۲/۲۵

پذیرش مقاله: ۸۸/۴/۳۰

## مقدمه

عوامل آلودگی محیط زیست، پساب‌های صنعتی می‌باشند که آلاینده‌های مختلفی از جمله فلزات سنگین را در محیط وارد می‌کنند (۲). صنایع مختلف مانند آبکاری، باتری‌سازی، رنگ‌سازی، تثبیت‌کننده‌ها، صنایع متالورژی، صنایع شیمیایی، معادن، کاغذ و مقواسازی، پالایشگاه‌های نفت، صنایع

حفاظت از محیط زیست که نسل‌های امروز و آتی باید در آن حیات اجتماعی رو به رشدی داشته باشند، یک وظیفه عمومی تلقی می‌گردد (۱). وجود آلودگی‌ها در محیط زیست یکی از مشکلات امروزی جوامع بشری می‌باشد. یکی از مهم‌ترین

۱- کارشناس ارشد، گروه شیمی تجزیه، باشگاه پژوهشگران جوان، دانشکده شیمی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد شهرضا، اصفهان، ایران.

۲- استاد، گروه شیمی، دانشکده شیمی، دانشگاه اصفهان، اصفهان، ایران.

۳- عضو هیات علمی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایلام و دانشجوی دکتری، گروه مهندسی بهداشت محیط، مرکز تحقیقات محیط زیست، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران (نویسنده مسؤول)

Email: ilam\_nourmoradi@yahoo.com

$(1500 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1})$ ، دانسیته کم ( $0.3 \text{ g cm}^{-3}$ ) و میزان تخلخل بالا (۹۸ درصد) می‌باشد (۱۵). آئروژل‌ها به دلیل داشتن مساحت سطح ویژه بالا می‌توانند به عنوان فیلتر به منظور تصفیه مایعات و گازها به کار روند. آئروژل‌های آب‌گریز برای مواد محلول یا غیر محلول در آب، جاذب‌های کارآمدی هستند. ظرفیت جذب آئروژل دو برابر بیشتر از ظرفیت جذب همان مقدار پودر کربن فعال می‌باشد. استفاده از آئروژل در جذب پسماندهای اتمی گزارش شده است (۱۶). تاکنون از سیلیکا آئروژل اصلاح شده توسط آمینو پروپیل تری اتوکسی سیلان برای حذف آلاینده‌ها و فلزات سنگین استفاده نشده است. در این پژوهش، سیلیکا آئروژل اصلاح شده توسط پیش ماده ارگانو سیلان آمینو پروپیل تری اتوکسی سیلان به عنوان جاذب فلزات سنگین سرب ( $\text{Pb}^{2+}$ )، کادمیوم ( $\text{Cd}^{2+}$ )، روی ( $\text{Zn}^{2+}$ ) و نیکل ( $\text{Ni}^{2+}$ ) در محلول آبی مورد بررسی قرار گرفت. همچنین شرایط بهینه جذب از جمله زمان تماس، غلظت، pH و میزان جاذب نیز برای هر کدام از فلزات فوق مشخص گردید.

### روش‌ها

این مطالعه از نوع تجربی- مداخله‌ای بود که به صورت منقطع (Batch) و در دمای محیط آزمایشگاه بر روی نمونه‌های سنتتیک با استفاده از آب مقطر انجام گرفت.

#### - مراحل سنتز سیلیکا آئروژل اصلاح شده

در ابتدا فرایند سنتز و اصلاح سیلیکا آئروژل انجام گرفت، که در شکل ۱ مراحل سنتز و اصلاح به صورت مرحله به مرحله نشان داده شده است.

#### - تعیین مرفولوژی و سطح ویژه سیلیکا آئروژل

به منظور بررسی شکل ظاهری و مرفولوژی و همچنین اندازه ذرت سنتز شده، تصاویر میکروسکوپ الکترونی توسط دستگاه SEM (Scanning electron microscope) ساخت شرکت Seron technology ثبت شده است. برای اندازه‌گیری سطح ویژه جاذب، از دستگاه Quanta chrome instrument

الکتریکی، صنایع تولید لاستیک و کودهای شیمیایی فلزات سمی مختلفی مانند  $\text{Hg}$ ،  $\text{Ni}$ ،  $\text{Pb}$ ،  $\text{Co}$ ،  $\text{As}$ ،  $\text{Au}$ ،  $\text{Cd}$ ،  $\text{Ag}$ ،  $\text{Cu}$  و  $\text{Cr}$  را وارد محیط زیست می‌کنند (۳، ۴). فلزات سنگین اثرات سمی بر محیط زیست و موجودات زنده دارند (۵). با توجه به اثرات مخرب این آلاینده‌ها بر روی موجودات زنده، حذف آن‌ها از پساب‌ها ضروری است. به همین دلیل در راستای اجرای مقررات استانداردهای زیست محیطی، ضروری است که قبل از رها سازی فاضلاب‌ها و پساب‌های صنعتی در محیط زیست، فلزات سنگین آن‌ها حذف شود. روش‌های مختلفی برای جدا سازی فلزات سنگین از پساب‌ها ارایه شده است، که می‌توان به ترسیب شیمیایی، انعقاد و فلوکولاسیون، فیلتر غشایی، تعویض یونی، تکنیک‌های الکتروشیمیایی و عوامل شلاته‌کننده اشاره کرد (۶، ۷). روش جذب سطحی به علت بازدهی بالا، سادگی، ارزان بودن جاذب‌ها و در دسترس بودن انواع مختلف آن‌ها در مقایسه با سایر روش‌ها، روشی ساده و جالب توجه است. به علاوه امکان بازیافت فلزات خالص و نیز استفاده مجدد از جاذب از دیگر مزایای این روش می‌باشد. تصفیه پساب‌ها به روش جذب با استفاده از جاذب‌های غیر متداول از قبیل ضایعات جامد کشاورزی و صنعتی برای زدودن فلزات سنگین به کار گرفته شده است (۷). تحقیقات بسیاری در جهت استفاده از مواد ارزان به منظور جذب فلزات سنگین در محلول‌های آبی انجام شده است. خاکستر حاصل از نیروگاه حرارتی، کود حیوانی، سبوس برنج، خاک اره (۹)، پوست و سبوس برنج، پوست و میوه کاج (۱۰)، کربن فعال از ن دار شده (۱۱)، کربن فعال گوگردار شده (۱۲)، پوست نارگیل و مواد زاید کشاورزی (۱۳)، پوست نارگیل و زغال چوب (۱۴) برای جذب سطحی به منظور جذب فلزات سنگین، مورد تحقیق و بررسی قرار گرفته‌اند. سیلیکا آئروژل برای اولین بار در سال ۱۹۳۱ سنتز شد. سیلیکا آئروژل جاذبی غیر سمی، با کارایی بالا و از نظر اقتصادی نیز مقرون به صرفه می‌باشد. این جاذب یکی از اشکال متخلخل سیلیکا بوده، سبک‌ترین ماده جامد مصنوعی می‌باشد. از ویژگی‌های بارز این ماده، مساحت سطح بالا

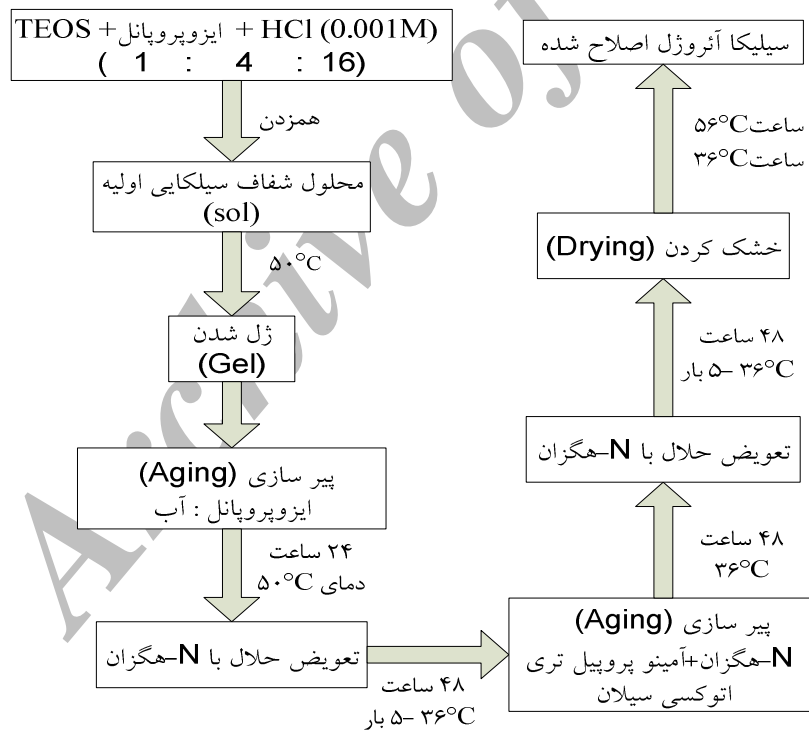
تعیین اثر دوز جاذب بر میزان جذب نیز دوزهای g ۰/۰۵، g ۰/۲، g ۰/۴، g ۰/۸ و g ۱/۶ در غلظت ۴۰۰ ppm فلزات و در pH و زمان تماس ۴۸ ساعت استفاده گردید.

ج) بررسی اثر غلظت محلول و دوز جاذب بر فرایند جذب به منظور بررسی اثر غلظت فلزات سنگین بر میزان جذب و تعیین غلظت بهینه ابتدا غلظت‌های ۵۰، ۱۰۰، ۲۰۰، ۳۰۰، ۴۰۰ و ۵۰۰ ppm با حجم ۵۰ mL و در pH بهینه برای هر کاتیون همانند روش‌های فوق مورد آزمایش قرار گرفت. برای تعیین اثر دوز جاذب بر میزان جذب نیز دوزهای g ۰/۰۵، g ۰/۲، g ۰/۴، g ۰/۸ و g ۱/۶ در غلظت ۴۰۰ ppm فلزات و در pH و زمان تماس ۴۸ ساعت استفاده گردید.

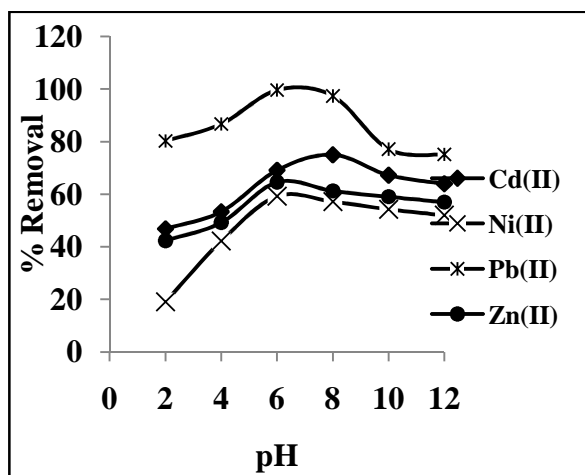
MONO sorb device با روش BET و به صورت Single point استفاده شد.

### – تهیه محلول‌های حاوی فلزات سنگین

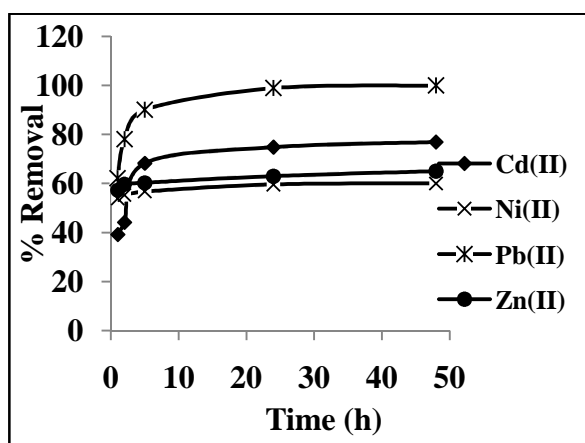
ابتدا محلول مادر با غلظت ۱۰۰۰ ppm برای هر کدام از کاتیون‌های فلزات مورد مطالعه با استفاده از نمک نیترات آنها (ب) بررسی اثر زمان تماس بر فرایند جذب برای بررسی اثر زمان تماس بر روی جذب کاتیون‌های فلزات سنگین، ابتدا ۶ محلول با غلظت ۴۰۰ ppm با حجم ۵۰ mL و در زمان‌های تماس ۱، ۲، ۵، ۲۴ و ۴۸ ساعت و pH بهینه فوق تهیه کرده، داخل بطری‌های پلی اتیلنی با g ۰/۵ جاذب با استفاده از شیکر آزمایشگاهی در تماس قرار گرفته، بعد از گذشت مدت زمان ذکر شده با روش سانتریفوژ (۳۰۰۰ rpm) جاذب جامد از محلول‌ها جدا شده، جهت اندازه‌گیری مورد آماده‌سازی قرار گرفتند.



شکل ۱: مراحل سنتز سیلیکا آتروژل اصلاح شده



نمودار ۱: اثر pH بر درصد جذب کاتیون فلزات سنگین توسط سیلیکا آئروژل اصلاح شده  
 (حجم = ۵۰ mL، غلظت = ۴۰۰ mg/L، جذب = ۰/۵ g، زمان تماس = ۴۸ ساعت)



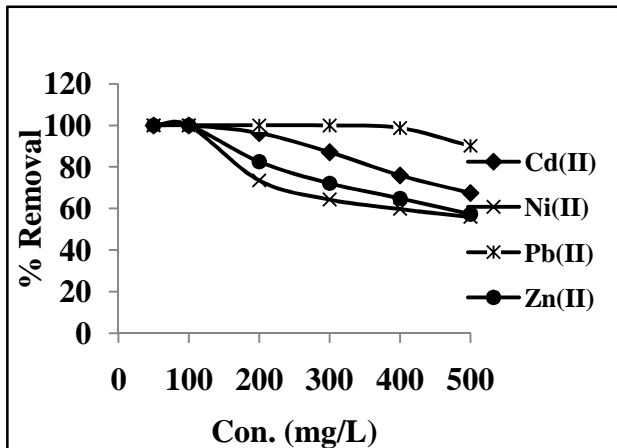
نمودار ۲: اثر زمان تماس بر درصد جذب کاتیون فلزات سنگین توسط سیلیکا آئروژل اصلاح شده  
 (بهینه برای هر pH = ۴۰۰ mg/L، غلظت = ۵۰ mg/L (حجم = ۰/۵ g کاتیون، جذب

## یافته‌ها

در این تحقیق ابتدا سیلیکا آئروژل با روش سل ژل سنتز شده، سپس سطح آن توسط آمینو پروپیل تری اتوکسی سیلان اصلاح گردید. به منظور بررسی شکل ظاهری و مورفولوژی و همچنین اندازه ذرات سنتز شده از روش عکس برداری توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) شکل ۱ استفاده شد. در نهایت پارامترهای مؤثر بر جذب از جمله pH، زمان تماس، میزان جاذب و غلظت فلزات مورد مطالعه قرار گرفت، که شرایط بهینه آن‌ها به دست آمد. نتایج حاصل از این آزمایشات به ترتیب در نمودارهای ۱، ۲، ۳ و ۴ ارائه شده است. به منظور بررسی ظرفیت جذب، از ایزوترم‌های **Langmuir** و **Freundlich** استفاده شد، که در جدول ۱ آمده است.

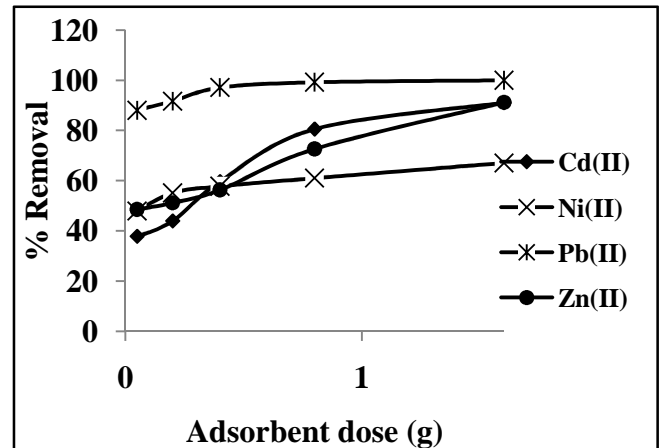


شکل ۱: تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) از سیلیکا آئروژل اصلاح شده



نمودار ۴: اثر غلظت بر درصد جذب کاتیون فلزات سنگین توسط سیلیکا آتروژل اصلاح شده

حجم = ۰/۵ g بهینه برای هر کاتیون، جذب pH ۵/۰ mL = (حجم کاتیون، زمان تماس = ۴۸ ساعت)



نمودار ۳: اثر دوز جاذب (سیلیکا آتروژل اصلاح شده) بر درصد جذب کاتیون فلزات سنگین

(حجم = ۵۰ mL، غلظت = ۴۰۰ mg/L، pH بهینه برای هر کاتیون، زمان تماس = ۴۸ ساعت)

جدول ۱: ثابت‌های ایزوترم‌های Freundlich و Langmuir برای کاتیون‌های فلزات سنگین توسط سیلیکا آتروژل اصلاح شده

Freundlich ایزوترم			Langmuir ایزوترم			کاتیون‌ها
R <sup>2</sup>	n	K <sub>f</sub> ((mg/g)(l/mg) <sup>1/n</sup> )	R <sup>2</sup>	b (L mg <sup>-1</sup> )	Q <sub>0</sub> (mg g <sup>-1</sup> )	
۰/۹۹۸	۵/۷۱	۱۳/۷۷	۰/۹۹۵	۰/۰۹	۳۵/۷۱	Cd <sup>2+</sup>
۰/۹۶۸	۱۲/۶۶	۳۳/۵۷	۰/۹۹۹	۲/۴۴	۴۵/۴۵	Pb <sup>2+</sup>
۰/۹۹۳	۲/۲۳	۲/۴۶	۰/۹۷۶	۹/۸۵	۴۰/۰۰	Ni <sup>2+</sup>
۰/۹۹۸	۳/۲۶	۵/۵۶	۰/۹۹۶	۴۲/۲۱	۳۴/۴۸	Zn <sup>2+</sup>

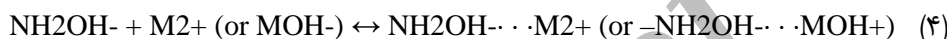
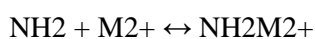
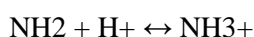
برای اندازه‌گیری سطح ویژه جاذب سیلیکا آتروژل قبل از اصلاح و بعد از آن با روش جذب- واجذب نیتروژن، از دستگاه Quanta chrome instrument MONO sorb device با روش BET و به صورت Single point استفاده شد. مساحت سطح ویژه سیلیکا آتروژل قبل از اصلاح سطح (m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup>) ۲۳ ± ۹۴۰ و بعد از اصلاح سطح و آمین‌دار کردن آن (m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup>) ۷ ± ۲۴۰ گزارش شد. این نتایج بیان‌گر کاهش چشمگیر در مساحت سطح ویژه بعد از اصلاح سطح می‌باشد، که این کاهش مساحت سطح ویژه را می‌توان به

### بحث

#### مرفولوژی و مساحت سطح جاذب

به منظور بررسی شکل ظاهری و مرفولوژی و همچنین اندازه ذرات سنتز شده، تصاویر میکروسکوپ الکترونی توسط دستگاه SEM ساخت شرکت Seron technology ثبت شده است. نتایج این بررسی در شکل ۱ مشاهده می‌شود. با توجه به این شکل اندازه ذرات و منافذ در سیلیکا آتروژل اصلاح شده، یکنواخت نیست. به عبارت دیگر سطح ناهمگن (Hetrogeneous) بوده، کلوخه‌ای شدن ذرات قابل مشاهده است. (Agglomeration)

pH تا حدود ۸-۷ میزان جذب افزایش می‌یابد، که این نتیجه نمایان‌گر واکنش‌های تشکیل کی‌لیت بوده است. وجود رقابت بین کاتیون‌های مورد بررسی و یون‌های  $H^+$  برای جذب بر سطح جاذب در pH‌های پایین می‌باشد (۲۰-۱۷). pH بهینه جهت حذف کاتیون‌های  $Pb^{2+}$ ،  $Cd^{2+}$ ،  $Ni^{2+}$  و  $Zn^{2+}$  به ترتیب برابر ۶ (۹۹/۶ درصد حذف)، ۸ (۷۵/۰۱ درصد حذف)، ۶ (۵۹/۲۲ درصد حذف) و ۶ (۶۴/۶۱ درصد حذف) می‌باشد. واکنش‌های اصلی فرایند جذب کاتیون‌ها بر سطح سیلیکا آتروژل اصلاح شده، به صورت زیر است (۲۲، ۲۱):



با افزایش pH، واکنش معادله ۱ به سمت چپ حرکت کرده، باعث افزایش سایت‌های  $NH_2$  در سطح جاذب شده، در نهایت طبق معادله ۲ جذب کاتیون افزایش می‌یابد. در pH‌های بالا، واکنش ۳ انجام شده، که باعث کاهش جذب کاتیون طی فرایند کمپلکس شدن سطحی در معادله ۲ می‌شود. اما از سوی دیگر در pH‌های بالاتر به دلیل افزایش برهمکنش‌های الکتروستاتیک که در معادله ۴ نشان داده شده است، امکان افزایش جذب کاتیون فلز افزایش می‌یابد.

به طور کلی، می‌توان کاهش رقابت بین  $H^+$  و کاتیون‌ها برای واکنش با گروه‌های عاملی یکسان و همین‌طور کاهش در بار سطحی مثبت که منجر به کاهش برهمکنش الکتروستاتیک بین سطح جاذب و کاتیون‌های فلزی می‌شود، دو دلیل مهم برای افزایش جذب کاتیون فلز در برابر افزایش pH عنوان کرد. علاوه بر دلایل بیان شده در معادلات مذکور، تشکیل کمپلکس‌های هیدروکسی محلول در آب عاملی مهم در کاهش جذب کاتیون فلز در pH‌های بالاتر می‌باشد (۲۳). به طور کلی تفاوت در رفتار جذبی یون‌های فلزی

دلیل قرار گرفتن گروه‌های  $NH_2$  در منافذ سطح آتروژل نسبت داد.

### - بررسی جذب کاتیون‌های فلزات سنگین و تعیین شرایط بهینه جذب

الف) اثر pH بر میزان جذب

pH یکی از مهم‌ترین عوامل مؤثر بر فرایند جذب کاتیون‌های سنگین می‌باشد. نتایج حاصل از آزمایش تأثیر pH بر راندمان جذب کاتیون‌های مورد بررسی توسط سیلیکا آتروژل اصلاح شده در نمودار ۱ مشاهده می‌شود. آزمایش‌ها در محدوده pH برابر ۲ تا ۱۲ انجام شده است. با توجه به نمودار ۱ با افزایش

(۱)

(۲)

(۳)

(۴)

معادله ۱ بیان‌گر واکنش‌های پروتون‌دار کردن و پروتون‌زدایی گروه‌های  $NH_2$  موجود بر سطح سیلیکا آتروژل اصلاح سطح شده در محلول حاوی کاتیون می‌باشد. معادله ۲ تشکیل کمپلکس‌های سطحی کاتیون فلز با گروه‌های آمین را نشان می‌دهد. در معادله ۳ جذب یون‌های  $OH^-$  محلول بر سطح جاذب از طریق تشکیل پیوند هیدروژنی در pH‌های بالا مشاهده می‌شود.

معادله ۱ نشان دهنده پروتون‌دار شدن  $NH_2$  و تشکیل  $NH_3^+$  در pH‌های پایین است. در pH‌های پایین زمانی که گروه‌های  $NH_2$  بیشتری به  $NH_3^+$  تبدیل می‌شوند، سایت‌های  $NH_2$  کمتری در سطح جاذب در دسترس بوده، که توانایی جذب کاتیون فلز را طبق معادله ۲ دارا هستند. همچنین در pH‌های پایین، برهمکنش‌های الکتروستاتیکی بین کاتیون‌ها و سطح جاذب که بار مثبت آن افزایش یافته، بیشتر خواهد شد. بنابر دلایل ذکر شده، در pH‌های پایین، جذب کاتیون فلز کاهش می‌یابد.

اثر غلظت کاتیون فلزات سنگین بر میزان جذب، توسط سیلیکا آتروژل اصلاح شده در نمودار ۴ نشان داده شده است. غلظت بهینه جهت حذف کاتیون‌های  $Pb^{2+}$ ،  $Cd^{2+}$ ،  $Ni^{2+}$  و  $Zn^{2+}$   $100 \text{ mg/L}$  است که در این غلظت، ۱۰۰ درصد حذف مشاهده می‌شود. با توجه به داده‌های حاصل از آزمایش در نمودار ۴ با افزایش غلظت کاتیون، درصد جذب کاهش می‌یابد. در غلظت‌های پایین، جایگاه‌های جذبی مؤثر بیشتری برای جذب کاتیون‌های فلزات سنگین در دسترس است، اما در غلظت‌های بالاتر تعداد کاتیون‌های فلزی در مقایسه با جایگاه‌های جذبی بر روی جاذب به مراتب بیشتر است. بنابراین جذب کاتیون‌ها به غلظت اولیه وابسته است و با افزایش غلظت، درصد جذب کاهش می‌یابد. تفاوت در میزان جذب کاتیون‌های سنگین متفاوت در شرایط جذبی یکسان نظیر غلظت اولیه، میزان جاذب و زمان تماس یکسان ممکن است مربوط به تفاوت میل ترکیبی شیمیایی هر کاتیون با گروه عاملی آمین موجود در سطح سیلیکا آتروژل اصلاح شده باشد.

#### - بررسی منحنی‌های ایزوترم جذب

چند مدل ایزوترم، برای جذب سطحی قابل بررسی است. از این میان دو ایزوترم Langmuir و Freundlich برای بررسی جذب سطحی فلزات سنگین در محلول‌های آبی بیشتر مورد استفاده قرار می‌گیرند. ثابت‌های این دو ایزوترم و همچنین ضریب همبستگی  $R^2$ ، در فرم خطی دو ایزوترم در جدول ۱ آورده شده است. بررسی ایزوترم‌های Langmuir و Freundlich نشان داد که داده‌های تجربی کاتیون‌های مورد بررسی با هر دو ایزوترم مطابقت دارد. با توجه به داده‌های این جدول بالاترین ظرفیت جذبی جاذب برای کاتیون‌های  $Pb^{2+}$ ،  $Cd^{2+}$ ،  $Ni^{2+}$  و  $Zn^{2+}$  به ترتیب برابر  $45/45 \text{ mg}$ ،  $35/71 \text{ mg}$ ،  $40/00 \text{ mg}$  و  $34/48 \text{ mg}$  به ازای هر  $g$  جاذب می‌باشد.

به طور کلی نتایج حاصل از آزمایشات انجام شده حاکی از توانایی بالای جذب کاتیون‌های  $Pb^{2+}$ ،  $Cd^{2+}$ ،  $Ni^{2+}$  و  $Zn^{2+}$  توسط سیلیکا آتروژل اصلاح شده با آمینو پروپیل تری اتوکسی سیلان بوده، می‌توان در تصفیه آب و فاضلاب‌های صنعتی و شهری از آن استفاده کرد.

مختلف، به دلیل تفاوت در ظرفیت تعویض یون در سطح که مربوط به دانسیته بار کاتیون است، میزان آبکافت کاتیون و حلالیت کاتیون‌های فلزی آبکافت شده در محلول می‌باشد.

#### ب) اثر زمان تماس بر میزان جذب

زمان تماس عامل مهمی در فرایند جذب است. با افزایش زمان تماس، جذب افزایش می‌یابد، تا زمانی که تعادل برقرار شود. این افزایش، به دلیل افزایش احتمال برخورد‌های مؤثر کاتیون‌ها با  $NH_2$  موجود در سطح آتروژل در مدت زمان مجاورت بیشتر، می‌باشد. نمودار ۲ اثر زمان تماس بر روی میزان حذف کاتیون‌های مورد بررسی طی فرایند جذب را نشان می‌دهد. همان طوری که در نمودار ۲ آمده است، زمان تماس بهینه جهت حذف کاتیون‌های  $Pb^{2+}$ ،  $Cd^{2+}$ ،  $Ni^{2+}$  و  $Zn^{2+}$  به ترتیب برابر ۲۴ ساعت (۹۸/۹۵ درصد حذف)، ۲۴ ساعت (۷۴/۸۳ درصد حذف)، ۲۴ ساعت (۵۹/۵۸ درصد حذف) و ۲۴ ساعت (۶۲/۹۶ درصد حذف) می‌باشد.

#### ج) اثر مقدار جاذب بر میزان جذب

در نمودار ۳، نتایج حاصل از آزمایش بررسی اثر تغییرات میزان جاذب سیلیکا آتروژل اصلاح شده بر جذب کاتیون‌های فلزات سنگین مشاهده می‌شود. مقدار جاذب بهینه جهت حذف کاتیون‌های  $Pb^{2+}$ ،  $Cd^{2+}$ ،  $Ni^{2+}$  و  $Zn^{2+}$  به ترتیب برابر  $0/8$  گرم (۹۹/۲۳ درصد حذف)،  $1/6$  گرم (۹۰/۹۸ درصد حذف)،  $0/8$  گرم (۶۱/۰۵ درصد حذف) و  $1/6$  گرم (۹۱/۲ درصد حذف) می‌باشد. نتایج نشان دهنده افزایش میزان جذب در اثر افزایش مقدار جاذب می‌باشد. در مقادیر بیشتر از سیلیکا آتروژل اصلاح شده، سایت‌های  $NH_2$  بیشتری برای تشکیل کی‌لیت با کاتیون در دسترس می‌باشد. این روند افزایشی در میزان جذب، ادامه می‌یابد، تا زمانی که با افزایش جاذب تغییر عمده‌ای در میزان جذب مشاهده نمی‌شود و در واقع فرایند جذب به تعادل رسیده است. در این مرحله تعداد کاتیون موجود در محلول کاهش یافته، در نتیجه افزایش مقدار جاذب اثر چندانی بر افزایش جذب ندارد.

#### د) اثر غلظت بر میزان جذب

## References

1. Rabani M, Ashteyani A, Sharif A. A Survey on Heavy Metals (Nickel, Lead and Mercury ) in Persian Golf Sedimentation-Asaloyyeh. *J. Min. and Pro.*2008; 51,1. (Persian)
2. Meena A. K. Studies on treatment of contaminated water containing heavy metals in Jaipur and Pali. Ph.D Thesis, University of Rajasthan, India. 2006.
3. Malik A. Metal bioremediation through growing cells. *Environment International.* 2004; 30, 261.
4. Nouri J, Mahvi A. H, Jahed G. R, Babaei A. A. Regional distribution pattern of groundwater heavy metals resulting from agricultural activities. *Environ. Geo.* 2008; 55. 6, 1337.
5. Vinodhini R, Narayanan M, Bioaccumulation of heavy metals in organs of fresh water fish *Cyprinus carpio* (Common carp). *Int. J. Environ. Sci. Tech.* 2008; 5. 2, 179.
6. Kurniawan t.a, chan g.y, lo w.h, babel s. comparison of low cost adsorbents for treating waste water laden with heavy metals: a review. *Sci total environment.* 2006; 366, 409.
7. Yu B, Zhang Y, Shukla A. The removal of heavy metals from aqueous solutions by sawdust adsorption — removal of lead and comparison of its adsorption with copper. *J. Hazard. Mater.* 2001; 84.
8. Kumar A. Removal of copper and lead from wastewater by adsorption on bottom ash. *Indian J. Environ. Protection* 11 1991; 433–435.
9. Vaishya R. C and Prasad S. C. Adsorption of copper(II) on sawdust, *Indian J. Environmental protection*, 1991; 11(4), 284.
10. Meena A, Rajagopal C. Comparative studies on adsorptive removal of chromium from contaminated water using different adsorbents. *Indian J. Chem. Technol.* 2003; 10, 72.
11. Sanchez P. M, Utriolla, R. Adsorbent–adsorbate interactions in the adsorption of Cd(II) and Hg(II) on ozonized activated carbons. *Environ. Sci. Technol.* 2002; 36, 3850.
12. Gomez-serrane V, Macia A, Garcia S. Adsorption of mercury, cadmium and lead from aqueous solution on heat-treated and sulphurised activated carbon. *Water Res.* 1998; 32, 1.
13. Jahagirdar D. V, Nigal J. N. Adsorption of Cd(II) and Pb(II) on agricultural by products. *Asian J. Chem.* 1997; 9, 122.
14. Nath S. K, Jena A, Mishra, S.P. Removal of cadmium by wood charcoal. *Trans. India Inst. Met.* 1997; 50, 235.
15. Elias A. E. *Materials Science and Engineering.* University of Florida, Gainesville. 1989; 172.
16. Woignier T, Reynes J, Phalippou J. Sintered silica aerogel: A host matrix for long life nuclear wastes. 1998; 225, 353.
17. Chang Y. C, Chen D. H. Preparation and adsorption properties of monodisperse chitosan-bound Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> magnetic nanoparticles for removal of Cu(II) ions. *J. Colloid. Interface Sci.* 2005; 283, 446.
18. Samal S, Das R. R, Dey R. K, Acharya S. Chelating resins VI: chelating resins of formaldehyde condensed phenolic Schiff bases derived from 4,4-diaminodiphenyl ether with hydroxybenzaldehydes-synthesis, characterization, and metal ion adsorption studies. *J. Appl. Polym. Sci.* 2000; 77, 967.
19. Qu R, Wang C, Ji C, Sun C, Sun X, Cheng G. Preparation, characterization, and metal binding behavior of novel chelating resins containing sulfur and polyamine. *J. Appl. Polym. Sci.* 2005; 95, 1558.
20. Ngah W. S. W, Endud C. S, Mayanar R. Removal of copper(II) ions from aqueous solution onto chitosan and cross-linked chitosan beads. *Funct. Polym.* 2002; 50, 181.
21. Li N, Bai R. Copper adsorption on chitosan–cellulose hydrogel beads: behaviors and mechanisms. *Sep Purif Technol.* 2005; 42, 237.
22. Banerjee S. S, Chen D. H. Fast removal of copper ions by gum arabic modified magnetic nano-adsorbent. *J. Hazard. Mater.* 2007; 147, 792.
23. Meena A.K, Mishra G.K, Rai P.K, Rajagopal C, Nagar P.N. Removal of heavy metal ions from aqueous solutions using carbon aerogel as an adsorbent *J. Hazard. Mater.* B122. 2005; 161.



## A survey on efficiency of modified silica aerogel to remove of heavy metals from aqueous solutions

Maryam Shokouhi<sup>1</sup>, Hosein Faghihian<sup>2</sup>, Heshmatollah Nourmoradi<sup>3</sup>

### Abstract

**Background:** Silica aerogel is the nano-porous form silica which is the lightest synthetic solid material. Some specific properties of this material include high surface area (1500 m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup>), low density (< 0.03 g.cm<sup>-3</sup>) and high porosity (%99). In this research, silica aerogel was investigated as an adsorbent of the heavy metal cations in aqueous solutions.

**Methods:** The silica aerogel was synthesized by sol-gel method and its surface was modified by Amino propyl triethoxy silane. The modified silica aerogels was studied by SEM and BET techniques. Then its sorbent ability on Pb<sup>2+</sup>, Cd<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup> and Ni<sup>2+</sup> cations was investigated. Finally the effective parameters on adsorption of the heavy metals such as pH (2-12), Contact time (0-48 h), adsorbent amount (0-1.5 g) and cation concentration (0-500 ppm) were investigated.

**Findings:** Optimum adsorption for all cations except cadmium occurred at pH=6 but this adsorption for cadmium occurred at pH=8. Optimum contact time to absorb all the studied cations is equal to 24 hours. Assessing Langmuir and Freundlich isotherms showed that data obtained from the studied cations matches with both isotherms. The highest adsorption capacity of adsorbent for Pb<sup>2+</sup>, Cd<sup>2+</sup>, Ni<sup>2+</sup> and Zn<sup>2+</sup> were respectively 45.45 g, 35.71 g, 40.00 g and 34.48 g per mg of adsorbent.

**Conclusion:** In general, the results of the conducted experiments indicate that the cations have high adsorb ability by the modified silica aerogel and it can be used in the municipal and industrial water and wastewater treatment.

**Key words:** Modified Silica Aerogel, Adsorption, Heavy Metals, Adsorption Isotherm

1- MA of Analytical Chemistry, Young Researcher Group, Azad Islamic University, Shahreza Branch, Isfahan, Iran.

2- Professor, Department of Chemistry, University of Isfahan, Isfahan, Iran.

3- Faculty Member, Department of Environment Health Engineering, School of Health, Ilam University of Medical Sciences and PhD student of Environment Health Engineering, Environment Research Center, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran (Corresponding Author)

Email: ilam\_nourmoradi@yahoo.com