

## بررسی کارایی خاک رس اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی در حذف نیترات از محلول‌های آبی

سیده فاطمه کریمی<sup>۱</sup>، حمیدرضا پورزمانی<sup>۲</sup>، حشمت‌اله نورمرادی<sup>۳</sup>، بیژن بینا<sup>۴</sup>

### مقاله پژوهشی

### چکیده

**مقدمه:** امروزه افزایش غلظت نیترات در آب‌های سطحی و زیرزمینی به علت افزایش تولید فاضلاب‌ها و گسترش فعالیت‌های کشاورزی، یکی از مشکلات محیطی در بسیاری از مناطق جهان از جمله ایران به شمار می‌رود. مصرف آب حاوی غلظت بالای نیترات، مشکلاتی را در زمینه محیط زیست و بهداشت عمومی ایجاد می‌کند. هدف از انجام مطالعه حاضر، بررسی کارایی مونومرولونیت اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی هگزادسیل تری متیل آمونیوم بروماید در حذف نیترات از محلول‌های آبی بود.

**روش‌ها:** این تحقیق از نوع تجربی-آزمایشگاهی بود و به منظور حذف نیترات از محلول‌های آبی از طریق خاک رس اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی در یک سیستم بسته انجام شد. تأثیر شاخص‌های مختلف مانند غلظت اولیه نیترات، دوز جاذب، pH و زمان تماس بر راندمان حذف نیترات با استفاده از نرم‌افزار طراحی آزمایش (Design of experiments) یا (DOE) مورد بررسی قرار گرفت.

**یافته‌ها:** شرایط بهینه حذف نیترات در غلظت اولیه نیترات ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر، دوز جاذب ۷/۵ گرم بر لیتر، pH برابر با ۷ و زمان تماس ۴۰ دقیقه به دست آمد. در این شرایط، راندمان حذف نیترات ۷۱/۲۷ درصد و ظرفیت جذب نیترات ۱۹/۰۶ میلی‌گرم بر گرم بود.

**نتیجه‌گیری:** می‌توان از خاک رس اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی، به عنوان جاذب مؤثری در جهت حذف نیترات از محلول‌های آبی استفاده نمود.

**واژه‌های کلیدی:** خاک رس، سورفکتانت، نیترات، جذب

**ارجاع:** کریمی سیده فاطمه، پورزمانی حمیدرضا، نورمرادی حشمت‌اله، بینا بیژن. بررسی کارایی خاک رس اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی در حذف نیترات از محلول‌های آبی. مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۳۹۶؛ ۱۳ (۴): ۴۶۴-۴۷۰

پذیرش مقاله: ۱۳۹۶/۵/۱۰

دریافت مقاله: ۱۳۹۵/۱۱/۱۸

### مقدمه

از دیگر عوارض مقادیر بالای نیترات، می‌توان به دردهای شکمی، اسهال، استفراغ، پرفشاری خون، افزایش مرگ و میر نوزادان، دیابت، سقط خودبه‌خودی جنین و عفونت دستگاه تنفسی اشاره نمود (۴، ۳). از جنبه زیست محیطی نیز غلظت‌های بالای نیترات، باعث تحریک رشد جلبک‌ها و ایجاد اوتروفیکاسیون در بدنه آب‌ها می‌شود که می‌تواند زندگی ماهی‌ها و دیگر آبزیان را به خطر اندازد (۱). بر همین اساس، آژانس حفاظت محیط زیست آمریکا (United States Environmental Protection Agency یا EPA) حداکثر غلظت آلودگی برای نیترات را ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر معادل ۴۵ میلی‌گرم بر لیتر عنوان کرده است (۵). سازمان بهداشت جهانی (World Health Organization یا WHO) این میزان را ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر (۶) و مؤسسه استاندارد و تحقیقات صنعتی ایران نیز ۴۵ میلی‌گرم بر لیتر تعیین نموده است (۷).

با توجه به اثرات نامطلوب نیترات، حذف این ماده از آب ضروری به نظر می‌رسد. تاکنون روش‌های مختلفی برای حذف نیترات مورد استفاده قرار گرفته است که از آن جمله می‌توان به دینتریفیکاسیون شیمیایی با استفاده از آهن صفر ظرفیتی (۸)، منبزمیم صفر ظرفیتی (۹)، تبادل یونی (۱۰)، اسمز معکوس (۱۱)،

نیترات، نوعی ماده غذایی مهم برای رشد گیاهان محسوب می‌شود و کودهای نیتروژن‌دار به طور معمول در سراسر جهان جهت افزایش تولید محصولات کشاورزی استفاده می‌شود. بالا بودن غلظت نیترات در آب‌های سطحی و زیرزمینی در درجه اول در نتیجه استفاده بیش از حد از کودهای نیتروژنه و در درجه دوم به دلیل دفع زایدات شهری و صنعتی تصفیه نشده می‌باشد (۱). افزایش نیترات در منابع آبی، می‌تواند اثرات نامطلوبی بر سلامت انسان داشته باشد. نیترات در بدن به نیتريت تبدیل می‌شود و نیتريت حاصل از احیای نیترات، هموگلوبین خون را اکسید می‌نماید و به متهموگلوبین (Methemoglobin) تبدیل می‌کند که مانع از انتقال اکسیژن به بافت‌ها می‌شود. این بیماری که به متهموگلوبینمیما یا سندرم کودک آبی معروف است، به ویژه در اطفال و نوزادان کمتر از شش ماه مشاهده می‌گردد و در غلظت‌های بالا منجر به خفگی می‌شود. همچنین، نیتريت با آمین‌ها و آمیدهای بدن ترکیب می‌شود و نیتروزآمین‌ها و نیتروزآمیدها را به وجود می‌آورد که این ترکیبات به عنوان سرطان‌زاهای احتمالی شناخته شده‌اند (۲).

- ۱- دانشجوی کارشناسی ارشد، کمیته تحقیقات دانشجویی و مرکز تحقیقات محیط زیست و گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران
  - ۲- دانشیار، مرکز تحقیقات محیط زیست، پژوهشکده پیشگیری اولیه از بیماری‌های غیر واگیر و گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران
  - ۳- استادیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایلام، ایلام، ایران
  - ۴- استاد، مرکز تحقیقات محیط زیست، پژوهشکده پیشگیری اولیه از بیماری‌های غیر واگیر و گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران
- نویسنده مسؤول: بیژن بینا  
Email: bbina123@yahoo.com

سورفکتانت افزایش می‌یابد، اما با افزایش pH محلول و دمای سیستم، کاهش می‌یابد (۳۱). مطالعه Xi و همکاران با هدف آماده‌سازی و تعیین خصوصیات خاک رس‌های اصلاح شده با سورفکتانت و جذب نیترات انجام شد. آن‌ها به این نتیجه رسیدند که خاک رس‌های اصلاح نشده، جاذب‌های مؤثری برای نیترات نمی‌باشند، اما زمانی که به کمک سورفکتانت‌های کاتیونی اصلاح می‌شوند، پتانسیل حذف آلاینده‌های آنیونی را به دست می‌آورند (۲۴).

برخی از تحقیقات توسط پژوهشگران دیگر جهت حذف نیترات از محلول‌های آبی با استفاده از خاک رس‌های مختلف اصلاح شده با سورفکتانت‌های کاتیونی گوناگون انجام شده است، اما بر اساس جستجوهای انجام شده و اطلاعات به دست آمده، تاکنون اصلاح خاک رس مونتوریلونیت با روش مورد استفاده توسط سورفکتانت کاتیونی هگزادسیل تری‌متیل آمونیوم بروماید برای حذف نیترات از محلول‌های آبی بررسی نشده است. هدف از انجام مطالعه حاضر، بررسی کارایی خاک رس (مونتوریلونیت) اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی (هگزادسیل تری‌متیل آمونیوم بروماید) در حذف نیترات از محلول‌های آبی بود.

## روش‌ها

این تحقیق از نوع تجربی بود که در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت ناپیوسته در آزمایشگاه دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی اصفهان انجام شد. همه مواد شیمیایی مورد استفاده از شرکت Merck (آلمان) و خاک رس مونتوریلونیت نیز از شرکت Laviosa (ایتالیا) تهیه گردید. در پژوهش حاضر، تأثیر شاخص‌هایی مانند غلظت اولیه نیترات، دوز جاذب، pH و زمان تماس بر روی راندمان حذف نیترات و ظرفیت جذب نیترات مورد بررسی قرار گرفت. همچنین، به منظور طراحی آزمایش‌ها، از روش Taguchi چهار فاکتور در چهار سطح استفاده شد که در جدول ۱ آمده است. داده‌ها در نرم‌افزار طراحی آزمایش (DOE یا Design of experiments) نسخه ۶ مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت.

جدول ۱. شاخص‌ها و سطح آن‌ها

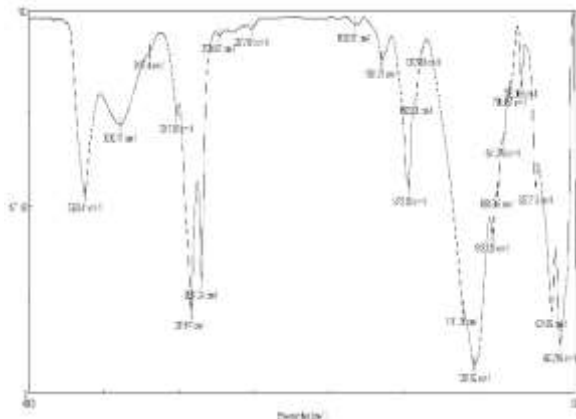
شاخص	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳	سطح ۴
غلظت اولیه نیترات (میلی‌گرم بر لیتر)	۵۰/۰	۱۰۰	۱۵۰/۰	۲۰۰
دوز جاذب (گرم بر لیتر)	۲/۵	۵	۷/۵	۱۰
pH	۵/۰	۷	۹/۰	۱۱
زمان تماس (دقیقه)	۴۰/۰	۶۰	۸۰/۰	۱۰۰

ابتدا برای ساختن محلول‌های آزمایش، محلول استاندارد یا استوک از نیترات تهیه شد. محلول استوک ۱ گرم بر لیتر نیترات، با انحلال ۱/۲۷ گرم سدیم نیترات در ۱ لیتر آب مقطر ساخته شد. محلول‌های دیگر از طریق رقیق‌سازی محلول استوک به دست آمد. به منظور تنظیم pH، از هیدروکسید سدیم و اسید هیدروکلریک ۰/۱ مولار استفاده گردید. در آزمایش‌های جذب، دوز جاذب با مقادیر ۲/۵، ۵، ۷/۵ و ۱۰ گرم بر لیتر به محلول نیترات با غلظت ۵۰، ۱۰۰، ۱۵۰ و ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر و pHهای ۵، ۷، ۹ و ۱۱ به مدت ۴۰، ۶۰، ۸۰ و ۱۰۰ دقیقه بر روی همزن مغناطیسی قرار داده شد. سپس نمونه‌های سانتریفیوژ شده (با سرعت

الکترودیالیز (۱۲) و جذب سطحی (۱۳) اشاره کرد. از میان این فرایندها، جذب به علت راحتی، سهولت عمل، سادگی طراحی و ملاحظات اقتصادی، جذایت بالایی دارد. همچنین، فرایند جذب می‌تواند انواع مختلف آلاینده‌های آلی و معدنی را از آب و فاضلاب حذف کند یا کاهش دهد که باعث کاربرد گسترده آن در کنترل آلودگی آب شده است (۱۹-۱۴). از میان جاذب‌های مختلف، خاک رس به دلیل دارا بودن خصوصیتی مانند مساحت سطحی بالا، قیمت کم، سازگاری با محیط زیست، غیر سمی بودن، راندمان بالا، کاربرد راحت، بهبود فرایند انعقاد در تصفیه آب، کاهش تعداد عوامل میکروبی و ترکیبات آلی خطرناک کاربرد فراوانی دارد (۲۰).

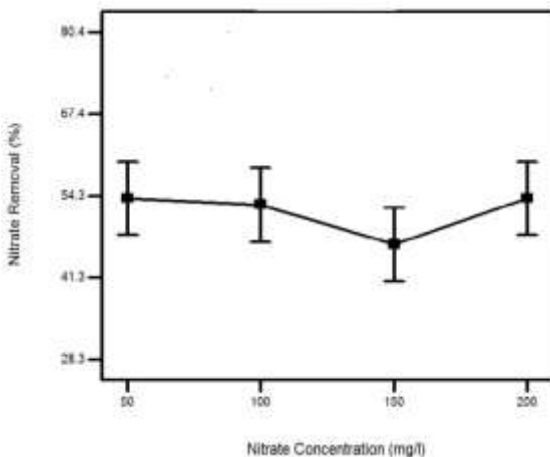
کاربرد خاک رس برای حذف برخی فلزات سنگین (۲۲، ۲۱)، مواد آلی (۲۳)، آلاینده‌های آنیونی به خصوص اکسی‌آنیون‌های معدنی مانند نیترات (۲۴) و کرومات (۲۵) که در غلظت‌های خیلی کم برای انسان و حیات وحش سمی هستند، گسترده شده است، اما این آنیون‌ها توسط بارهای منفی روی سطح خاک رس معدنی دفع می‌شود. بنابراین، خاک رس معدنی اصلاح نشده، جاذب مؤثری برای این آلاینده‌ها نمی‌باشد. به همین دلیل، اصلاح با استفاده از یک افزودنی، ظرفیت نگهداری آنیون‌ها را افزایش می‌دهد. نتایج برخی مطالعات نشان می‌دهد، خاک‌های رس معدنی هنگامی که با استفاده از سورفکتانت‌های آلی اصلاح می‌شود، به مواد مناسبی برای نگهداری آنیون‌ها تبدیل می‌گردند (۲۶، ۲۵). تبعیدیان و همکاران در تحقیق خود، راندمان حذف نیترات با زئولیت طبیعی کلینوپیلولیت اصلاح نشده و زئولیت اصلاح شده با کلرید روی و فرسولفات را مورد بررسی قرار دادند. نتایج مطالعه آن‌ها نشان داد که درصد حذف نیترات با زئولیت اصلاح نشده ۴۰ درصد و با زئولیت اصلاح شده با کلرید روی و فرسولفات به ترتیب ۷۸/۸۲ و ۹۰/۸۲ درصد می‌باشد (۲۷). آذری و همکاران حذف نیترات با استفاده از زئولیت اصلاح شده را بررسی نمودند و شرایط بهینه برای حذف نیترات توسط جاذب زئولیت اصلاح شده را در pH برابر با ۵، زمان تماس ۱۸۰ دقیقه و مقدار جاذب ۱۶ گرم بر لیتر گزارش نمودند (۲۸). فراستی و همکاران نیز با استفاده از نانوذرات نی اصلاح شده، نیترات را از آب‌های آلوده حذف کردند. آن‌ها در آزمایش‌های ناپیوسته، اثر عواملی مانند جرم جاذب، غلظت اولیه نیترات و pH را بر جذب نیترات بررسی نمودند و به این نتیجه دست یافتند که با افزایش pH محلول از ۲ تا ۱۰، راندمان حذف از ۶۰ تا ۸۶ درصد افزایش می‌یابد (۲۹).

نتایج مطالعه نورمرادی و همکاران که با هدف جذب Benzene, toluene, ethylbenzene, and xylene (BTEX) از محلول‌های آبی با استفاده از مونتوریلونیت اصلاح شده با تترادسیل تری‌متیل آمونیوم بروماید (Tetradecyltrimethylammonium bromide) یا TTAB انجام شد، نشان داد که در بارگذاری سورفکتانت ۲ برابر ظرفیت تبادل کاتیونی بر سطح خاک رس، بیشترین میزان جذب BTEX اتفاق می‌افتد. همچنین، زمان ماند بهینه جذب، ۲۴ ساعت و ظرفیت جذب TTAB در حذف BTEX حدود ۲۲/۱۱ میلی‌گرم بر گرم بود (۲۰). Bagherifam و همکاران در تحقیق خود، از مونتوریلونیت اصلاح شده با هگزا دسیل پیریدینیوم کلراید برای حذف انتخابی نیترات و پرکلرات استفاده کردند. حداکثر ظرفیت جذب نیترات و پرکلرات توسط جاذب به ترتیب ۰/۶۷ و ۱/۱۱ میلی‌مول بر گرم به دست آمد (۳۰). نتایج پژوهش Gammoudi و همکاران که با هدف جذب نیترات با استفاده از اسمکتیت اصلاح شده انجام گرفت، حاکی از آن بود که مقدار جذب نیترات با افزایش زمان تماس، غلظت اولیه نیترات و مقدار بارگذاری



شکل ۲. آنالیز Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR) خاک رس اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی

**اثر غلظت اولیه نیترات بر کارایی حذف نیترات:** اثر غلظت‌های اولیه (۵۰، ۱۰۰، ۱۵۰ و ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر) بر کارایی حذف نیترات در شکل ۳ نشان داده شده است. بر اساس داده‌ها، با افزایش غلظت نیترات از ۵۰ به ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر، راندمان حذف نیترات تغییر قابل ملاحظه‌ای نداشت.



شکل ۳. اثر غلظت اولیه نیترات بر راندمان حذف نیترات

**اثر دوز جاذب بر کارایی حذف نیترات:** اثر دوز جاذب (۲/۵، ۵، ۷/۵ و ۱۰ گرم بر لیتر) بر راندمان حذف نیترات در شکل ۴ مشخص شده است. بر این اساس، با افزایش دوز جاذب از ۲/۵ به ۷/۵ گرم بر لیتر، راندمان حذف افزایش یافت. در ادامه، با افزایش دوز جاذب از ۷/۵ به ۱۰ گرم بر لیتر، کاهش راندمان حذف مشاهده شد. بالاترین راندمان حذف نیترات، در دوز جاذب ۷/۵ گرم بر لیتر به دست آمد.

**اثر pH بر کارایی حذف نیترات:** تأثیر تغییرات pH بر راندمان حذف نیترات در شکل ۵ نشان داده شده است. بیشترین راندمان حذف در pH های ۵ و ۷ به دست آمد که pH بهینه برابر با ۷ در نظر گرفته شد.

۳۵۰۰ دور در دقیقه به مدت ۱۵ دقیقه)، از کاغذ صافی Whatman (انگلستان) (۰/۴۵ میکرومتر) عبور داده شد و غلظت نیترات باقی‌مانده با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج ۲۲۰ و ۲۷۵ نانومتر قرائت گردید. راندمان حذف نیترات و ظرفیت جذب نیترات به ترتیب از طریق روابط ۱ و ۲ محاسبه شد که در آن،  $C_0$  غلظت اولیه آلاینده در محلول بر حسب میلی‌گرم بر لیتر،  $C_1$  باقی‌مانده آلاینده در محلول در زمان تعادل بر حسب میلی‌گرم بر لیتر،  $q_e$  ظرفیت جذب خاک رس بر حسب میلی‌گرم بر گرم،  $V$  حجم محلول آبی بر حسب لیتر و  $m$  جرم جاذب بر حسب گرم می‌باشد.

$$10 \times R\% = \frac{(C_i - C_e)}{C_0} \quad \text{رابطه ۱}$$

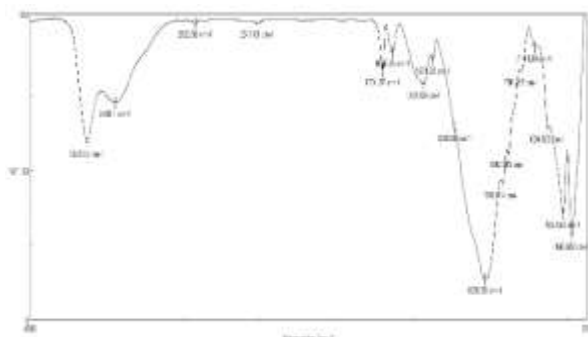
$$q_e = \frac{(C_i - C_e)V}{m} \quad \text{رابطه ۲}$$

برای تهیه خاک رس اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی نیز ابتدا ۵ گرم از خاک رس در ارلن ۲۰۰ میلی‌لیتری حاوی ۱۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر و مقدار معینی سورفکتانت کاتیونی (هگزادسیل تری‌متیل آمونیوم بروماید) ریخته شد (نسبت آب به خاک رس برابر ۲۰). میزان سورفکتانت در سوسپانسیون فوق به میزان ۰/۵، ۱، ۱/۵ و ۲ برابر ظرفیت تبادل کاتیونی خاک رس بود. سپس مخلوط فوق به مدت ۲۴ ساعت بر روی همزن مغناطیسی (با سرعت ۶۰۰ دور در دقیقه) با دمای ۶۰ درجه سلسیوس قرار گرفت. پس از عمل بارگذاری سورفکتانت بر روی جاذب، مخلوط حاوی خاک رس و سورفکتانت سانتریفوژ گردید (با سرعت ۳۵۰۰ دور در دقیقه به مدت ۱۵ دقیقه) و بعد از تخلیه مایع رویی، رس باقی‌مانده ۴ مرتبه با آب مقطر شستشو داده شد و با استفاده از فور (دمای ۶۰ درجه سلسیوس به مدت ۲۴ ساعت) خشک شد. سپس با استفاده از خردکن آزمایشگاهی خرد گردید و در نهایت، عمل مش‌بندی (الک ۱۰۰ مش) انجام گرفت (۲۰).

جهت تعیین گروه‌های عاملی و ساختار شیمیایی خاک رس قبل و بعد از اصلاح، از طیف‌سنجی مادون قرمز تبدیل Fourier (Fourier-transform infrared spectroscopy یا FTIR) استفاده شد. این طیف‌سنجی به منظور تأیید انجام اصلاح جاذب انجام می‌گیرد.

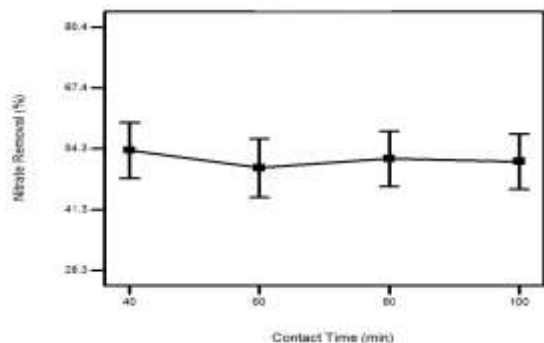
## یافته‌ها

**FTIR** نتایج حاصل از آنالیز FTIR خاک رس خام و خاک رس اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی به ترتیب در شکل‌های ۱ و ۲ ارائه شده است.



شکل ۱. آنالیز Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR) خاک رس خام

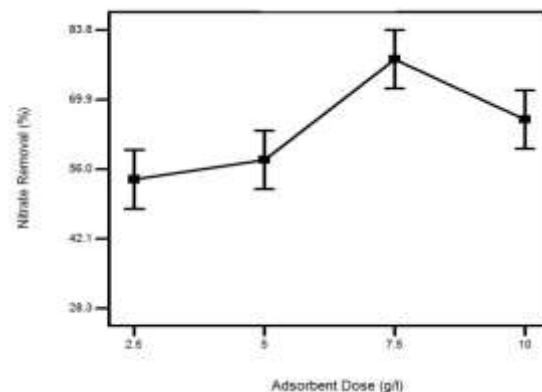
موریلونیت، وارد ساختار مونت موریلونیت می‌شود و سبب تغییر خاصیت رس از حالت هیدروفیل به ارگانوفیل می‌گردد (۳۶، ۳۴، ۳۳).



شکل ۶. اثر زمان تماس بر راندمان حذف نیترات

در بررسی اثر غلظت اولیه نیترات بر راندمان حذف (شکل ۳)، با افزایش غلظت اولیه نیترات، تغییر محسوسی در راندمان حذف نیترات مشاهده نمی‌شود و همه غلظت‌ها راندمانی در حدود ۶۰ تا ۷۰ درصد را نشان داد. بنابراین، با توجه به ظرفیت جذب (میانگین ظرفیت جذب غلظت ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر از بقیه غلظت‌ها بالاتر می‌باشد)، غلظت ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر به عنوان غلظت بهینه نیترات در نظر گرفته شد. در مطالعه Girgis و Daifullah، افزایش غلظت اولیه آلاینده باعث افزایش ظرفیت جذب گردید. افزایش میزان جذب در غلظت‌های بالای آلاینده ممکن است به دلیل بالا رفتن نیروی جاذبه واندروالس باشد (۳۷).

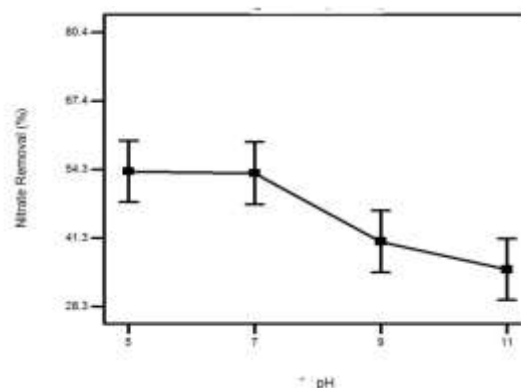
نتایج حاصل از تأثیر دوز جاذب بر راندمان حذف نیترات (شکل ۴) حاکی از آن بود که با افزایش دوز جاذب از ۲/۵ به ۷/۵ گرم بر لیتر، راندمان حذف نیترات افزایش می‌یابد، اما با افزایش دوز جاذب از ۷/۵ به ۱۰ گرم بر لیتر، راندمان حذف نیترات کاهش پیدا کرد. دلیل این امر را می‌توان چنین بیان کرد که با افزایش دوز جاذب به دلیل افزایش مساحت سطح جاذب و در نتیجه، افزایش تعداد جایگاه‌های جذب سطحی، درصد حذف نیترات افزایش یافت، اما علت کاهش راندمان حذف را می‌توان به دلیل چسبیدن ذرات جاذب به یکدیگر دانست. این نتیجه با یافته‌های پژوهش ناصری و همکاران (۳۸) مطابقت داشت. نتایج به دست آمده ناشی از تأثیر pHهای مختلف بر راندمان حذف نیترات (شکل ۵) نشان داد که pHهای ۵ و ۷ راندمان‌های مشابه و بالاترین راندمان را داشتند و با افزایش pH، راندمان حذف کاهش می‌یابد. بنابراین، pH برابر با ۷ به عنوان pH بهینه در نظر گرفته می‌شود. در pHهای کم، سطح جاذب دارای بار مثبت می‌گردد و این عامل باعث افزایش تمایل جاذب در جذب یون‌های نیترات که دارای بار منفی هستند، می‌شود. در pH زیاد، یون‌های OH با یون‌های نیترات برای جذب در جایگاه‌های جاذب رقابت می‌نمایند و با اشغال مکان‌های جاذب، باعث کمتر شدن ظرفیت جاذب در جذب نیترات می‌شوند. علاوه بر این، در مقادیر pH بالا، بار منفی در سطح جاذب افزایش می‌یابد و کاهش راندمان جذب نیترات را به دنبال دارد (۳۹). در تحقیق آذری و همکاران که با هدف حذف نیترات از محلول‌های آبی با استفاده از زئولیت کلینوپتیلولیت اصلاح شده انجام گرفت، حداقل و حداکثر راندمان زئولیت در جذب نیترات به



شکل ۴. اثر دوز جاذب بر راندمان حذف نیترات

**اثر زمان تماس بر کارایی حذف نیترات:** شکل ۶ اثر تغییرات زمان

تماس (۴۰، ۶۰، ۸۰ و ۱۰۰ دقیقه) را بر راندمان حذف نیترات نشان می‌دهد. مطابق با یافته‌های به دست آمده، بیشترین مقدار راندمان حذف نیترات در ۴۰ دقیقه اول واکنش مشاهده گردید.



شکل ۵. اثر pH بر راندمان حذف نیترات

## بحث

نتایج آنالیز FTIR (شکل‌های ۱ و ۲) نشان می‌دهد که جایگاه بیشتر باندهای موجود در ساختار خاک رس پس از اصلاح با سورفکتانت کاتیونی بدون تغییر می‌ماند که حاکی از حفظ ساختار کریستالی خاک رس بعد از اصلاح می‌باشد. در خاک رس خام، جایگاه ۳۶۳۰ بر سانتی‌متر مربوط به ارتعاشات کششی باند -OH (۳۲) و جایگاه ۳۴۴۸ بر سانتی‌متر مربوط به ارتعاشات کششی مولکول‌های آب در ترکیب خاک رس است (۳۳، ۲۰). جایگاه ۱۰۳۵ بر سانتی‌متر ارتعاش انبساطی Si-O را نشان می‌دهد (۳۴، ۲۳). همچنین، ساختار خاک رس خام و اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی به ترتیب در جایگاه‌های ۴۶۳ و ۵۲۱ بر سانتی‌متر معرف گروه عاملی Si-O-Si و Al-O-Si می‌باشد (۳۵، ۳۳). پس از اصلاح، پیک‌های جدیدی در جایگاه‌های ۲۸۵۱، ۲۹۱۹، ۳۰۱۷ و ۳۱۹۷ بر سانتی‌متر ایجاد شده است. این گروه‌های عاملی که مربوط به زنجیره‌های کربنی موجود در ساختار سورفکتانت است، با کمک واکنش تبادل کاتیون با مونت

مونتوریلونیت) اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی (هگزادسیل تری متیل آمونیوم بروماید) در غلظت اولیه نیترات ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر، دوز جاذب ۷/۵ گرم بر لیتر، pH برابر با ۷ و زمان تماس ۴۰ دقیقه به دست آمد. در این شرایط، راندمان حذف نیترات ۷۱/۲۷ درصد و ظرفیت جذب نیترات ۱۹/۰۶ میلی گرم بر گرم بود. با توجه به بالا بودن راندمان حذف و ظرفیت جذب نیترات و همچنین، خصوصیتی مانند ارزان بودن، در دسترس بودن و سازگاری با محیط زیست، می توان از مونتوریلونیت اصلاح شده با سورفکتانت کاتیونی هگزادسیل تری متیل آمونیوم بروماید به عنوان یک جاذب قابل قبول برای حذف نیترات از محلول های آبی استفاده کرد.

### تشکر و قدردانی

مطالعه حاضر برگرفته از پایان نامه مقطع کارشناسی ارشد با شماره ۳۹۴۳۳۸ می باشد که تحت حمایت مالی معاونت پژوهش و فن آوری دانشگاه علوم پزشکی اصفهان انجام شد. بدین وسیله نویسندگان از مساعدت معاونت مذکور و همکاران محترم آزمایشگاه های دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی اصفهان تشکر و قدردانی به عمل می آورند.

ترتیب در pH های ۵ و ۹ به دست آمد (۲۸). در نتایج پژوهش Li و همکاران، بیشترین راندمان حذف نیترات در pH برابر با ۶/۵ مشاهده شد (۴۰). نتایج حاصل از تأثیر زمان تماس بر راندمان حذف نیترات (شکل ۶) نشان داد که در زمان ۴۰ دقیقه اول واکنش، راندمان حذف نیترات بیشترین مقدار را داشت. این پدیده به دلیل وجود محل های خالی زیاد در لحظات اولیه بر روی جاذب می باشد و با گذشت زمان، این محل ها توسط مولکول های نیترات اشغال می گردد. بنابراین، حذف نیترات با گذشت زمان کاهش می یابد. نتایج مطالعه اربابی و همکاران که با هدف حذف نیترات با استفاده از پوست بادام مغناطیسی شده انجام گرفت، حاکی از آن بود که بیشترین میزان جذب (۸۵ درصد) در ۲۰ دقیقه اول تماس انجام می گیرد و پس از آن با طولانی تر شدن زمان تماس، تأثیری در راندمان حذف مشاهده نمی شود (۴۱). یافته های پژوهش ناصری و همکاران نشان داد که جذب نیترات در دقایق اولیه با سرعت زیاد صورت می گیرد و با گذشت زمان، مقدار جذب کاهش می یابد (۳۸).

### نتیجه گیری

در تحقیق حاضر، شرایط بهینه حذف نیترات با استفاده از خاک رس

### References

1. Loganathan P, Vigneswaran S, Kandasamy J. Enhanced removal of nitrate from water using surface modification of adsorbents-a review. *J Environ Manage* 2013; 131: 363-74.
2. Jahangiri-Rad M, Nabizadeh R, Nouri J, Yunesian M, Moattar F. Efficiency assessment of fixed bed adsorption column for the removal of nitrate using PAN-oxime-nano Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. *Iran J Health Environ* 2015; 8(1): 89-96. [In Persian].
3. Samatya S, Kabay N, Yuksel M, Arda M, Yuksel M. Removal of nitrate from aqueous solution by nitrate selective ion exchange resins. *React Funct Polym* 2006; 66(11): 1206-14.
4. Mesdaghia Nia A, Mahvi A, Naseri S, Mohamadi A, Shekarriz M, Alimohamadi M. Study of nitrate reduction from water using nanosized iron. *Iran J Health Environ* 2011; 4(3): 313-20. [In Persian].
5. Environmental Protection Agency. Drinking water regulations and health advisories. Washington, DC: EPA; 2000.
6. World Health Organization. Guidelines for drinking-water quality. Geneva, Switzerland: WHO; 2008.
7. Institute of Standards and Industrial Research of Iran. Quality standards of drinking water. No.1053. Tehran, Iran: ISIRI; 1997. [In Persian].
8. Ahn SC, Oh SY, Cha DK. Enhanced reduction of nitrate by zero-valent iron at elevated temperatures. *J Hazard Mater* 2008; 156(1-3): 17-22.
9. Kumar M, Chakraborty S. Chemical denitrification of water by zero-valent magnesium powder. *J Hazard Mater* 2006; 135(1-3): 112-21.
10. Chabani M, Amrane A, Bensmaili A. Kinetic modelling of the adsorption of nitrates by ion exchange resin. *Chem Eng J* 2006; 125(2): 111-7.
11. Schoeman JJ, Steyn A. Nitrate removal with reverse osmosis in a rural area in South Africa. *Desalination* 2003; 155(1): 15-26.
12. Hell F, Lahnsteiner J, Frischherz H, Baumgartner G. Experience with full-scale electro dialysis for nitrate and hardness removal. *Desalination* 1998; 117(1): 173-80.
13. Mizuta K, Matsumoto T, Hatate Y, Nishihara K, Nakanishi T. Removal of nitrate-nitrogen from drinking water using bamboo powder charcoal. *Bioresour Technol* 2004; 95(3): 255-7.
14. Babel S, Kurniawan TA. Low-cost adsorbents for heavy metals uptake from contaminated water: A review. *J Hazard Mater* 2003; 97(1-3): 219-43.
15. Aksu Z. Application of biosorption for the removal of organic pollutants: A review. *Process Biochem* 2005; 40(3): 997-1026.
16. Crini G. Non-conventional low-cost adsorbents for dye removal: A review. *Bioresour Technol* 2006; 97(9): 1061-85.
17. San Miguel G, Lambert SD, Graham NJ. A practical review of the performance of organic and inorganic adsorbents for the treatment of contaminated waters. *J Chem Technol Biotechnol* 2006; 81(10): 1685-96.
18. Nurchi VM, Villaescusa I. Agricultural biomasses as sorbents of some trace metals. *Coord Chem Rev* 2008; 252(10): 1178-88.
19. Faust SD, Aly OM. Adsorption processes for water treatment. Lancashire, England: Butterworth; 1987.
20. Nourmoradi H, Khiadani M, Nikaeen M. Multi-Component Adsorption of Benzene, Toluene, Ethylbenzene, and Xylene from

- Aqueous Solutions by Montmorillonite Modified with Tetradecyl Trimethyl Ammonium Bromide. *J Chem* 2013; 2013: 589354.
21. Alvarez-Ayuso E, Garcia-Sanchez A. Removal of heavy metals from waste waters by natural and NA-exchanged bentonites. *Clays and Clay Minerals* 2003; 51(5): 475-80.
  22. Luengo C, Puccia V, Avena M. Arsenate adsorption and desorption kinetics on a Fe (III)-modified montmorillonite. *J Hazard Mater* 2011; 186(2-3): 1713-9.
  23. Su J, Lin Hf, Wang QP, Xie ZM, Chen ZL. Adsorption of phenol from aqueous solutions by organomontmorillonite. *Desalination* 2011; 269(1): 163-9.
  24. Xi Y, Mallavarapu M, Naidu R. Preparation, characterization of surfactants modified clay minerals and nitrate adsorption. *Appl Clay Sci* 2010; 48(1): 92-6.
  25. Li Z, Bowman RS. Sorption of chromate and PCE by Surfactant-modified clay minerals. *Environ Eng Sci* 2009; 15(3): 237-45.
  26. Kaufhold S, Pohlmann-Lortz M, Dohrmann R, Nuesch R. About the possible upgrade of bentonite with respect to iodide retention capacity. *Appl Clay Sci* 2007; 35(1): 39-46.
  27. Tabeidian M, Aminsadri M, Aghababaie A, Taheri E, Fatehizadeh A, Mahdavi M, et al. Survey of efficiency evaluation of modified and unmodified clinoptilolite for nitrate removal from aqueous solutions. *J Health Syst Res* 2015; 11(3): 638-49. [In Persian].
  28. Azari A, Hossein Mahvi A, Naseri S, Rezaei Kalantary R, Saberi M. Nitrate removal from aqueous solution by using modified clinoptilolite zeolite. *Arch Hyg Sci* 2014; 3(1): 21-9.
  29. Farasati M, Jafarzadeh N, Boroomand S, Moazed H, Abedi Koupaie J, Seyedian M. Use of agricultural nano adsorbents for nitrate removal from aqueous solutions. *Iran-Water Resources Research* 2013; 8(3): 28-38.
  30. Bagherifam S, Komarneni S, Lakzian A, Fotovat A, Khorasani R, Huang W, et al. Highly selective removal of nitrate and perchlorate by organoclay. *Appl Clay Sci* 2014; 95: 126-32.
  31. Gammoudi S, Frini-Srasra N, Srasra E. Nitrate sorption by organosmectites. *Eng Geol* 2012; 124: 119-29.
  32. Seid-Mohammadi A, Asgari G, Rahmani A, Shabanlo A. Performance evolution of cationic surfactant modified nanoclay in removing 4-chlorophenol from aqueous solutions. *Journal of Health* 2015; 6(2): 154-68.
  33. Zawrah MF, Khattab RM, Saad EM, Gado RA. Effect of surfactant types and their concentration on the structural characteristics of nanoclay. *Spectrochim Acta A Mol Biomol Spectrosc* 2014; 122: 616-23.
  34. Rafiei B, Ahmadi Ghomi F. Preparation and characterization of the Cloisite Na<sup>+</sup> modified with cationic surfactants. *Journal of Crystallography and Mineralogy* 2013; 21(2): 25-32. [In Persian].
  35. Jiang MQ, Wang QP, Jin XY, Chen ZL. Removal of Pb (II) from aqueous solution using modified and unmodified kaolinite clay. *J Hazard Mater* 2009; 170(1): 332-9.
  36. Gladysz-Plaska A, Majdan M, Pikus S, Sternik D. Simultaneous adsorption of chromium(VI) and phenol on natural red clay modified by HDTMA. *Chem Eng J* 2012; 179: 140-50.
  37. Daifullah AAM, Girgis BS. Impact of surface characteristics of activated carbon on adsorption of BTEX. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp* 2003; 214(1): 181-93.
  38. Naseri S, Heibati B, Asadi A, Gholestani Far H, Dargahi A. Performance evaluation of modified pumice on removal nitrate from aqueous solution: Kinetic studies and adsorption isotherm. *Toloo e Behdasht* 2013; 12(1): 143-54. [In Persian].
  39. Civband S, Shirazi P, Divband L. Kinetic and isotherm adsorption nonlinear models survey for nitrate by titanium dioxide nano particles. *J Water Sustain Dev* 2014; 1(1): 35-41.
  40. Li J, Li Y, Meng Q. Removal of nitrate by zero-valent iron and pillared bentonite. *J Hazard Mater* 2010; 174(1-3): 188-93.
  41. Arbabi M, Hemati S, Raygan S, Sedehi M, Khodabakhshi A, Fadaei A. Evaluation of almond shells magnetized by iron nanoparticles for nitrate removal from Aqueous: Study of adsorption isotherm. *J Shahrekord Univ Med Sci* 2016; 17(6): 92-102.

## Performance Evaluation of Modified Clay with Cationic Surfactant in Removal of Nitrate from Aqueous Solutions

Seyedeh Fatemeh Karimi<sup>1</sup>, Hamidreza Pourzamani<sup>2</sup>, Heshmatollah Nourmoradi<sup>3</sup>, Bijan Bina<sup>4</sup>

### Original Article

#### Abstract

**Background:** Today, increasing nitrate concentrations in surface water and particularly in groundwater, due to the increase of waste production and development of agricultural activities, is one of the environmental problems in many parts of the world including Iran. Consumption of water containing high concentrations of nitrate creates some problems in the field of the environment and public health. The aim of this study was to evaluate the performance of modified montmorillonite with cationic surfactant of hexadecyltrimethylammonium bromide in nitrate removal from aqueous solutions.

**Methods:** This experimental-laboratory research was performed in order to remove nitrate from aqueous solutions through modified clay with cationic surfactant in a closed system (batch). The effect of various parameters including initial nitrate concentration, adsorbent dosage, pH, and contact time on removal efficiency of nitrate was investigated using Design of Experiments software (DOE 6).

**Findings:** Initial nitrate concentration of 200 mg/l in terms of nitrate, adsorbent dose of 7.5g/l, pH of 7, and contact time of 40 minutes were determined as optimum conditions of nitrate removal. In these conditions, nitrate removal efficiency of 71.27% and nitrate adsorption capacity of 19.06% mg/g were obtained.

**Conclusion:** Modified clay with cationic surfactant can be employed as an effective adsorbent to remove nitrate from water solution.

**Keywords:** Clay, Surfactants, Nitrates, Adsorption

**Citation:** Karimi SF, Pourzamani H, Nourmoradi H, Bina B. **Performance Evaluation of Modified Clay with Cationic Surfactant in Removal of Nitrate from Aqueous Solutions.** J Health Syst Res 2018; 13(4): 464-70.

1- MSc Student, Student Research Committee AND Environmental Research Center AND Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

2- Associate Professor, Environmental Research Center, Research Institute for Primordial Prevention of Non-communicable Disease AND Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

3- Assistant Professor, Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Ilam University of Medical Sciences, Ilam, Iran

4- Professor, Environmental Research Center, Research Institute for Primordial Prevention of Non-communicable Disease AND Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

**Corresponding Author:** Bijan Bina, Email: bbina123@yahoo.com