

Evaluation of Lead Ion Removal from Aqueous Solutions with Nano-Composite of Layered Double Hydroxides Coated on Magnetic Activated Carbon by Central Composite Design Method

Hadi Dadashi¹, Banafsheh Norouzi², Yousef Dadban-Shahamat³, Mohamad Hadi Mehdinejad³

Original Article

Abstract

Background: Contamination of soils and aquatic environments with heavy metals is a serious and growing problem. Some pollutants, such as heavy metals like lead, are persistent, and most of these metals have high toxicity and are a significant environmental concern. Therefore, the present study aimed to remove lead from aqueous solutions by layered double hydroxide (LDH) nanocomposite deposited on magnetically activated carbon.

Methods: This experimental laboratory study was conducted on a small scale in a laboratory setting, and the samples were synthetically prepared. In this study, the effect of pH (4-10), adsorbent concentration (0.1-3 g/l), contact time (10-120 minutes), and initial concentrations of lead (5-20 mg/l) on the removal of lead ions was investigated. Process performance was evaluated based on the percentage of lead ion removal responses. Determination of the number of experiments, statistical analysis of the data, and optimization of lead ion removal were performed using the central composite design and surface-response method.

Findings: The effect of exploitation indicators on lead removal efficiency according to the analysis of variance (ANOVA) table showed that, apart from lead concentration, the rest of the indicators were significant, and respectively, the intensity of the effect and the highest value of F included LDH concentration, contact time, and pH. Lead removal efficiency was obtained 96.11% in optimal conditions with pH = 6.73, a reaction time of 67.71 minutes, a concentration of LDH nanocomposite adsorbent of 2.10 g/l, and an initial lead concentration of 10.98 mg/l. In these conditions, the model's utility was 100%. Based on the results, the highest correlation of adsorption kinetics was observed with the quadratic model. This model was selected as the most suitable to describe the kinetic behavior of LDH adsorbent deposited on magnetically activated carbon in the adsorption of lead ions from aqueous media.

Conclusion: The LDH adsorbent deposited on magnetically activated carbon is a suitable material for removing lead ions from aqueous solutions. Moreover, the utilization of a central composite design and surface response methodology to optimize the key variables in the lead ion removal process through adsorption is commendable.

Keywords: Layered double hydroxides adsorbent; Adsorption; Lead ions; Aqueous solutions

Citation: Dadashi H, Norouzi B, Dadban-Shahamat Y, Mehdinejad MH. Evaluation of Lead Ion Removal from Aqueous Solutions with Nano-Composite of Layered Double Hydroxides Coated on Magnetic Activated Carbon by Central Composite Design Method. J Health Syst Res 2024; 20(2): 192-202.

1- MSc Student, Department of Civil Engineering, Lamei Gorgani Higher Education Institute, Gorgan, Iran

2- Assistant Professor, Department of Civil Engineering, Lamei Gorgani Institute of Higher Education, Gorgan, Iran

3- Associate Professor, Department of Environmental Health, School of Health AND Environmental Health Research Centre, Golestan University of Medical Sciences, Gorgan, Iran

Corresponding Author: Mohamad Hadi Mehdinejad; Associate Professor, Department of Environmental Health, School of Health AND Environmental Health Research Centre, Golestan University of Medical Sciences, Gorgan, Iran; Email: hmnejad@yahoo.com

بررسی حذف یون سرب از محلول آبی با استفاده از نانوکامپوزیت هیدروکسید لایه دوگانه نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی به روش طراحی مرکب مرکزی

هادی داداشی^۱، بنفشه نوروزی^۲، یوسف دادبان شهامت^۳، محمد هادی مهدی‌نژاد^{۳*}

مقاله پژوهشی

چکیده

مقدمه: آلودگی خاک و محیط‌های آبی با فلزات سنگین، یک مشکل جدی و در حال گسترش است. برخی از آلاینده‌ها مانند فلزات سنگین از جمله سرب زوال‌ناپذیر هستند که بیشتر این فلزات خاصیت سمی بالایی دارند و یک موضوع مهم زیست محیطی محسوب می‌شود. بنابراین، پژوهش حاضر با هدف حذف سرب از محلول‌های آبی توسط نانوکامپوزیت هیدروکسید لایه دوگانه نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی انجام شد.

روش‌ها: این مطالعه تجربی در مقیاس آزمایشگاهی انجام و نمونه‌های آلوده به سرب به صورت سنتتیک تهیه گردید. در این تحقیق، تأثیر pH (بین ۴ تا ۱۰)، غلظت جاذب (۰/۱-۳ گرم در لیتر)، زمان تماس (۱۲۰-۱۰ دقیقه) و غلظت‌های اولیه سرب (۲۰-۵ میلی‌گرم در لیتر) در حذف یون سرب مورد بررسی قرار گرفت. عملکرد فرایند بر اساس پاسخ‌های درصد حذف یون‌های سرب ارزیابی گردید. تعیین تعداد آزمایش‌ها، آنالیز آماری داده‌ها و بهینه‌سازی حذف یون سرب با به کارگیری طرح مرکب مرکزی و روش سطح- پاسخ انجام شد.

یافته‌ها: تأثیر شاخص‌های بهره‌برداری بر راندمان حذف سرب طبق جدول ANOVA نشان داد که به غیر از غلظت سرب، بقیه شاخص‌ها معنی‌دار بود و به ترتیب شدت تأثیر و بالاترین مقدار F شامل غلظت هیدروکسید لایه دوگانه، زمان تماس و pH بود. درصد حذف یون سرب در شرایط بهینه با $pH = 6/73$ ، زمان واکنش ۶۷/۷۱ دقیقه، غلظت جاذب نانوکامپوزیت هیدروکسید لایه دوگانه ۲/۱۰ گرم در لیتر، غلظت اولیه سرب ۱۰/۹۸ میلی‌گرم در لیتر، ۹۶/۱۱ درصد به دست آمد. در این شرایط، میزان مطلوبیت مدل ۱۰۰ درصد بود. بیشترین میزان مطابقت سنتتیک جاذب با مدل درجه دوم مشاهده شد و این مدل به عنوان بهترین نمونه جهت توصیف رفتار سنتتیک جاذب هیدروکسید لایه دوگانه نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی در جذب یون سرب از محیط‌های آبی انتخاب گردید.

نتیجه‌گیری: جاذب هیدروکسید لایه دوگانه نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی، جاذب مناسبی برای حذف یون سرب از محلول‌های آبی می‌باشد. همچنین، طرح مرکب مرکزی و روش سطح- پاسخ برای بهینه‌سازی متغیرهای مؤثر در فرایند حذف یون سرب به روش جذب سطحی مناسب می‌باشد.

واژه‌های کلیدی: جاذب هیدروکسید لایه دوگانه؛ جذب سطحی؛ یون سرب؛ محلول‌های آبی

ارجاع: داداشی هادی، نوروزی بنفشه، دادبان شهامت یوسف، مهدی‌نژاد محمد هادی. بررسی حذف یون سرب از محلول آبی با استفاده از نانوکامپوزیت هیدروکسید لایه دوگانه نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی به روش طراحی مرکب مرکزی. مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۴۰۳؛ ۲۰ (۲): ۱۹۲-۲۰۲

تاریخ چاپ: ۱۴۰۳/۴/۱۵

پذیرش مقاله: ۱۴۰۲/۸/۸

دریافت مقاله: ۱۴۰۲/۷/۲۰

در کودکان، از جمله عوارض ورود سرب به بدن می‌باشد (۲). سازمان بهداشت جهانی میزان سرب در آب‌های سطحی را کمتر از ۰/۱ میلی‌گرم در لیتر و در مناطق غیر آلوده حتی به ۱ میکروگرم در لیتر و کمتر نیز گزارش کرده است. حد توصیه شده این سازمان برای آب آشامیدنی، ۰/۰۵ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد (۳). حداکثر مقدار مجاز سرب در گیاه برای انسان، ۵ میلی‌گرم در کیلوگرم است. میزان سرب در گیاه آلوده ۳۰ تا ۳۰۰ میلی‌گرم در کیلوگرم می‌باشد. مقدار حد مجاز سرب جهت آبیاری گیاهان، ۵ میلی‌گرم در لیتر گزارش شده است که مقدار استاندارد در ایران ۱ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد (۴، ۵). از جمله روش‌های معمول حذف فلزات سنگین در آب، می‌توان به

مقدمه

آلودگی خاک‌ها و محیط‌های آبی با فلزات سنگین، یک مشکل جدی و در حال گسترش است (۱). سرب یکی از چهار فلزی است که بیشترین عوارض را بر سلامتی انسان دارد. سرب و ترکیبات آن در صنایع رنگ‌سازی، ساخت لوله‌ها، گلوله‌های سربی، باتری‌سازی، بلورسازی، گوزه‌گری، کاشی‌سازی، ساخت حشره‌کش‌ها و... استفاده می‌شود. اختلال بیوستتاز هموگلوبین و کم‌خونی، پرفشاری خون، آسیب به کلیه، سقط جنین و نارسایی نوزاد، اختلال سیستم عصبی، آسیب به مغز، ناباروری مردان، کاهش قدرت یادگیری و اختلالات رفتاری

۱- دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی عمران، مؤسسه غیر انتفاعی لامعی گرگانی، گرگان، ایران

۲- استادیار، گروه مهندسی عمران، مؤسسه غیر انتفاعی لامعی گرگانی، گرگان، ایران

۳- دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت و مرکز تحقیقات بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی گلستان، گرگان، ایران

نویسنده مسؤول: محمد هادی مهدی‌نژاد؛ دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت و مرکز تحقیقات بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی گلستان، گرگان، ایران

Email: hmnejad@yahoo.com

اکسیداسیون شیمیایی، رسوب شیمیایی، تبادل یونی، جذب سطحی، فیلتراسیون، اسمز معکوس، حذف زیستی، استخراج حلال و لخته‌سازی اشاره کرد (۶، ۷). روش جذب سطحی به دلیل راندمان بالا، انعطاف‌پذیری، سادگی طراحی، هزینه پایین، کارایی آسان و تولید لجن کمینه، نسبت به سایر تکنیک‌های مورد استفاده برتری دارد (۸). از ویژگی‌های اصلی یک جاذب خوب، ظرفیت بالا و جذب سطحی سریع است و زمانی حاصل می‌شود که جاذب دارای سطح ویژه بالا و مکان‌های جذب سطحی فراوان باشد (۹). جذب سطحی یک فرایند جداسازی است که در آن برخی از اجزای فاز سیال به سطح یک جاذب سطحی جامد منتقل می‌شوند. هیدروکسیدهای دوگانه لایه‌ای (Layered double hydroxides یا LDH)، به عنوان یک جاذب عمل می‌کنند که جزء خانواده ترکیبات رسی سنتزی و طبیعی هستند. بارزترین و عمده‌ترین سنگ معدن آن‌ها، هیدروتالسیت است و به همین دلیل، به این ساختارها ترکیبات هیدروتالسیت مانند نیز گفته می‌شود. LDH دارای شباهت‌های زیادی با ذرات رس از جمله ساختار لایه لایه، کامپوزیت‌های شیمیایی پهن، چگالی بار متغیر در لایه‌ها، خواص تبادل آنیون، فضای بین لایه‌ای واکنش‌پذیر و افزایش حجم هنگام قرار گرفتن در آب می‌باشند (۱۰).

نتایج پژوهش Torres-Dorante و همکاران نشان داد که استفاده از یک LDH (منیزیم-آلومینیوم) به عنوان یک سیستم بافر نیترات در خاک، برای کاهش حرکت و جابه‌جایی نیترات تحت شرایط کشت و آیش، نیترات از محلول خاک بر روی LDH جذب سطحی می‌شود (۱۱). مطالعه عظیم‌زاده و همکاران حاکی از آن بود که LDH منیزیم-آلومینیوم، در حذف فسفر از محلول‌های آبی کارایی بسیار خوبی دارد (۱۲). در تحقیق Zhao و همکاران، رفتار جذب سرب (II) به وسیله $Mg_2Al-LDH$ به عنوان تابعی از زمان تماس، pH، قدرت یونی، یون‌های خارجی، مواد هومیک و درجه حرارت در شرایط محیط مورد بررسی قرار گرفت و نتایج نشان داد که $Mg_2Al-LDH$ یک ماده امیدوارکننده برای جداسازی آلاینده‌ها از حجم زیادی از محلول‌های آبی بود (۱۳).

روش‌شناسی سطح-پاسخ (Response surface methodology یا RSM) بسیار کارآتر از روش‌های قدیمی بهینه‌سازی تک شاخصی است؛ چرا که از اتلاف زمان و مواد آزمایشگاهی بیشتر جلوگیری می‌نماید. در پژوهش حاضر، از طراحی مرکب مرکزی (Central composite design یا CCD) به منظور بهینه‌سازی متغیرهای چهارگانه (غلظت اولیه، زمان تماس، pH و دز جاذب) بر فرایند جذب سرب از محلول آبی استفاده شد.

روش‌ها

این مطالعه از نوع تجربی-آزمایشگاهی بود و داده‌ها پس از انجام آزمایش‌ها مورد بررسی قرار گرفت.

روش ساخت LDH نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی: به منظور

ساخت LDH، ۵۰ میلی‌لیتر سدیم هیدروکسید ۴ مولار به صورت قطره قطره با هم زدن مغناطیسی به طور ثابت به یک ارلن حاوی ۵۰ میلی‌لیتر محلول که حاوی ۱۰/۱۶۵ گرم منیزیم کلرید هگزا‌هیدرات و ۹/۶۳ گرم آلومینیوم کلرید هگزا‌هیدرات و ۱۰ گرم کربن فعال مغناطیسی بود، اضافه شد. سوسپانسون به مدت دو ساعت به مخزن اتوکلاو منتقل گردید و به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۱۸۰ درجه سانتی‌گراد در آن قرار داده شد. پس از گذشت ۲۴ ساعت، پنج مرتبه با آب دو بار تقطیر شستشو داده شد. در نهایت، در آن در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲۴ ساعت قرار گرفت و خشک شد.

مشخصات مورفولوژیکی نانوکامپوزیت: جهت تعیین مشخصات $MgAl-LDH$ به عنوان پیش‌ساز اولیه نانوکامپوزیت سنتز شده در مطالعه حاضر، از آنالیزهای دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی انتشار میدانی (FE-SEM یا Field emission scanning electron microscopy) به منظور شناسایی مورفولوژی سطحی FE-SEM از اسپکتروسکوپی پراکندگی انرژی (Energy dispersive x-ray spectroscopy یا EDS) (مدل TESCAN 3mira، ساخت کشور جمهوری چک) استفاده شد. همچنین، آنالیز BET جهت اندازه‌گیری دقیق مساحت سطح و برای سنجش تخلخل از دستگاه BELSORP mini II (شرکت BEL، ژاپن) و دستگاه گاززدایی BEL PREP VAC II برای حرارت‌دهی تحت وکیوم تا دمای ۴۵۰ درجه سانتی‌گراد استفاده گردید. آزمایش X-Ray Diffraction (XRD) جهت شناسایی ساختار کریستالی [به وسیله دستگاه ایکس پرتپرو (PW1730) (شرکت PHILIPS، هلند)] و Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR) (به منظور شناسایی گروه‌های عاملی نانوذرات با استفاده از طیف‌سنجی مادون قرمز با استفاده از دستگاه FT-IR, 6300 Japan انجام شد.

طراحی آزمایش‌ها: مدل RSM یک روش آماری مورد استفاده برای طراحی آزمایش‌ها و بهینه‌سازی واکنش‌های شیمیایی و فرایندهای صنعتی می‌باشد. این روش دارای چهار مرحله اصلی شامل «طراحی آزمایش‌ها، برآزش مدل، راستی‌آزمایی مدل و تعیین شرایط بهینه» است. در مطالعه حاضر، CCD که یکی از مشهورترین روش‌های طراحی آزمایش‌ها در روش RSM می‌باشد، برای بهینه‌سازی حذف سرب با LDH مورد استفاده قرار گرفت (۱۴). در تحقیق حاضر، با توجه به چهار فاکتور در پنج سطح، ۳۰ نمونه آزمایش‌های تجربی تعریف گردید. pH اولیه محلول (۱۰-۴)، زمان تماس (۱۲۰-۱۰ دقیقه)، غلظت اولیه سرب (۲۰-۵ میلی‌گرم در لیتر) و غلظت جاذب (۳-۰/۱ گرم در لیتر) به عنوان متغیرهای مستقل مورد ملاحظه قرار گرفت؛ درحالی که بازدهی حذف سرب به عنوان متغیر وابسته (پاسخ) در نظر گرفته شد. مقدار متغیرهای مستقل و محدوده تغییرات آن‌ها بر پایه دیگر پژوهش‌ها تعیین شد و در جدول ۱ نشان داده شده است. ماتریس CCD برای جذب سرب در جدول ۲ ارائه شده است.

جدول ۱. دامنه و سطوح مربوط به متغیرهای مستقل (Xi) استفاده شده در (CCD) Central composite design

متغیرهای مستقل	کد	سطوح			
		پایین	بالا	صفر	-alpha
pH	A	۵/۵۰	۸/۵۰	۷/۰۰	+alpha
غلظت جاذب (گرم در لیتر)	B	۰/۸۳	۲/۲۸	۱/۵۵	-alpha
غلظت سرب (میلی‌گرم در لیتر)	C	۸/۷۵	۱۶/۲۵	۱۲/۵	۰
زمان واکنش (دقیقه)	D	۳۷/۵۰	۹۲/۵۰	۶۵/۰۰	۱۰

جدول ۲. Central composite design (CCD) برای انجام آزمایش‌های بهره‌بردار

استاندارد	فاکتور ۱	فاکتور ۲	فاکتور ۳	فاکتور ۴	غلظت باقی مانده	پاسخ ۱	پاسخ ۲	پاسخ ۳	پاسخ ۴
	pH :A	B: غلظت LDH گرم در لیتر	C: غلظت سرب میلی گرم در لیتر	D: زمان دقیقه	سرب میلی گرم در لیتر	اثر حذف درصد	ظرفیت جذب میلی گرم در گرم	TDS نهایی میلی گرم در لیتر	pH نهایی
۱	۵/۵	۰/۸۲۵	۸/۷۵	۳۷/۵	۱/۹۱	۷۸/۱۴	۸/۲۹	۱۳۷/۵	۷/۶۱
۲	۸/۵	۰/۸۲۵	۸/۷۵	۳۷/۵	۱/۲۴	۸۵/۸۳	۹/۱۰	۱۵۲/۸	۸/۲۸
۳	۵/۵	۲/۲۷۵	۸/۷۵	۳۷/۵	-/۵۰	۹۴/۲۹	۳/۶۳	۴۶۹	۸/۰۸
۴	۸/۵	۲/۲۷۵	۸/۷۵	۳۷/۵	-/۶۳	۹۲/۷۵	۳/۵۷	۲۶۸	۷/۹۴
۵	۵/۵	۰/۸۲۵	۱۶/۲۵	۳۷/۵	۳/۰۹	۸۱/۰۰	۱۵/۹۵	۱۶۱	۷/۹۲
۶	۸/۵	۰/۸۲۵	۱۶/۲۵	۳۷/۵	۲/۱۱	۸۷/۰۰	۱۷/۱۴	۱۹۷/۹	۷/۹۸
۷	۵/۵	۲/۲۷۵	۱۶/۲۵	۳۷/۵	۱/۵۳	۹۰/۵۶	۶/۴۷	۴۱۶	۸/۲۵
۸	۸/۵	۲/۲۷۵	۱۶/۲۵	۳۷/۵	۲/۲۲	۸۶/۳۶	۶/۱۷	۲۶۸	۸/۴۴
۹	۵/۵	۰/۸۲۵	۸/۷۵	۹۲/۵	۱/۸۰	۷۹/۴۳	۸/۴۲	۱۵۰/۶	۷/۴۱
۱۰	۸/۵	۰/۸۲۵	۸/۷۵	۹۲/۵	-/۶۹	۹۲/۰۶	۹/۷۶	۱۴۰/۹	۷/۸۱
۱۱	۵/۵	۲/۲۷۵	۸/۷۵	۹۲/۵	-/۸۷	۹۰/۰۰	۳/۴۶	۳۱۱	۷/۷۲
۱۲	۸/۵	۲/۲۷۵	۸/۷۵	۹۲/۵	-/۶۱	۹۳/۰۰	۳/۵۸	۲۹۹	۷/۹۷
۱۳	۵/۵	۰/۸۲۵	۱۶/۲۵	۹۲/۵	۲/۲۴	۸۶/۲۲	۱۶/۹۸	۱۹۵/۸	۷/۸۴
۱۴	۸/۵	۰/۸۲۵	۱۶/۲۵	۹۲/۵	-/۷۱	۹۵/۶۶	۱۸/۸۴	۱۵۱/۸	۷/۹۷
۱۵	۵/۵	۲/۲۷۵	۱۶/۲۵	۹۲/۵	۱/۶۵	۸۹/۸۵	۶/۴۲	۲۷۱	۷/۵۴
۱۶	۸/۵	۲/۲۷۵	۱۶/۲۵	۹۲/۵	۱/۳۳	۹۱/۸۴	۶/۵۶	۳۹۰	۷/۴۹
۱۷	۴	۱/۵۵۰	۱۲/۵۰	۶۵	۲/۱۳	۸۳/۰۰	۶/۶۹	۲۰۸	۶/۸۸
۱۸	۱۰	۱/۵۵۰	۱۲/۵۰	۶۵	۱/۲۵	۹۰/۰۰	۷/۲۶	۲۱۸	۷/۸۴
۱۹	۷	۰/۱۰۰	۱۲/۵۰	۶۵	۲/۲۵	۸۲/۰۰	۱۰۲/۵	۵۳/۷	۷/۹۳
۲۰	۷	۳/۰۰۰	۱۲/۵۰	۶۵	-/۷۶	۹۳/۸۸	۳/۹۱	۳۳۲	۷/۲۱

LDH: Layered double hydroxides; TDS: Total dissolved solids

محاسبه پاسخ‌های پیش‌بینی شده برای عوامل مختلف با استفاده از نرم‌افزار Design-Expert نسخه ۱۱ به روش RSM تجزیه و تحلیل گردید. داده‌های به دست آمده از پاسخ‌های این مدل با استفاده از آزمون ANOVA محاسبه شد. هر یک از متغیرهای پاسخ برای راندمان حذف سرب (Y) در قالب مدل رگرسیون چند جمله‌ای (رابطه ۳) به صورت تابعی از متغیرهای مستقل ارایه گردید که در آن Y متغیر پاسخ از هر یک از سطوح، β_0 عرض از مبدأ β_i ضریب رگرسیون محاسبه شده از مقادیر به دست آمده از Y و X_i سطوح کدگذاری شده از متغیرهای مستقل می‌باشد. بخش‌های $X_i X_j$ و X_i^2 به ترتیب شامل ضوابط برهم‌کنش اثر متقابل و درجه دومی است.

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^4 \beta_i X_i + \sum_{j=1}^4 \beta_{ij} X_i^2 + \sum_{i=1}^4 \sum_{j=1}^4 \beta_{ij} X_i X_j \quad \text{رابطه ۳}$$

کیفیت برازش معادله مدل چند اسمی با استفاده از ضرایب به دست آمده R^2 و مقادیر R^2 متعادل شده (Adjusted- R^2) مورد ارزیابی قرار گرفت تا مناسبیت مدل سنجیده شود. $P < 0.05$ به عنوان سطح معنی‌داری مناسب در نظر گرفته شد.

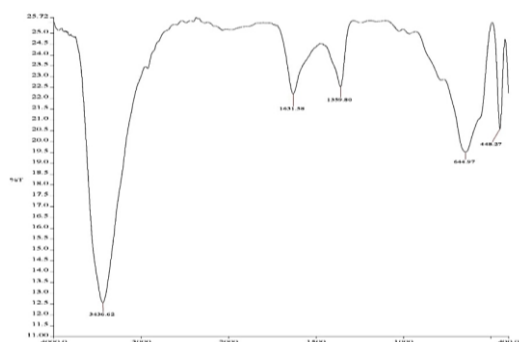
به منظور طراحی آزمایش‌ها و محاسبه حجم واقعی نمونه، از نرم‌افزار طراحی آزمایش‌ها (Design of experiments یا DOE) استفاده شد. در این روش، مقدار بیشینه و کمینه هر متغیر مشخص و با کد سطح‌های +۱ و -۱ برای نرم‌افزار تعریف می‌شود. با توجه به تعداد متغیرهای مطالعه شامل غلظت اولیه سرب، غلظت LDH، زمان تماس و pH اولیه محلول، ۳۰ نمونه آزمایش تعریف گردید. با کمک طرح آماری در این روش، تعداد آزمایش‌ها کاهش می‌یابد و کلیه ضرایب مدل رگرسیون درجه دوم و اثر متقابل فاکتورها، قابل برآورد می‌باشند (۱۶، ۱۵). در این طرح، تعداد آزمایش‌ها از رابطه ۱ محاسبه می‌شود (۱۵) که در آن، f تعداد متغیر و n0 تعداد نقاط مرکزی می‌باشد.

$$\text{Run} = 2^f + 2f + n_0 \quad \text{رابطه ۱}$$

راندمان حذف میزان جذب سرب طبق رابطه ۲ محاسبه می‌گردد که در آن، X میزان جذب، C_0 و C_t به ترتیب غلظت اولیه سرب (میلی گرم در لیتر) و غلظت سرب در زمان واکنش (میلی گرم در لیتر) می‌باشد.

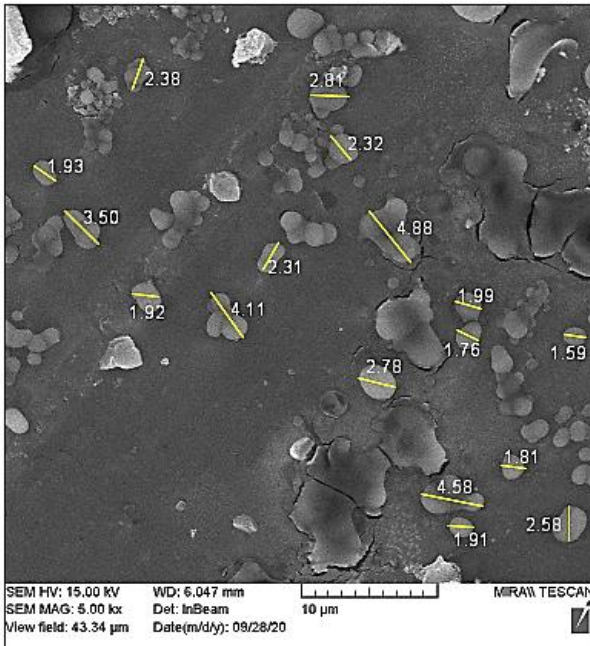
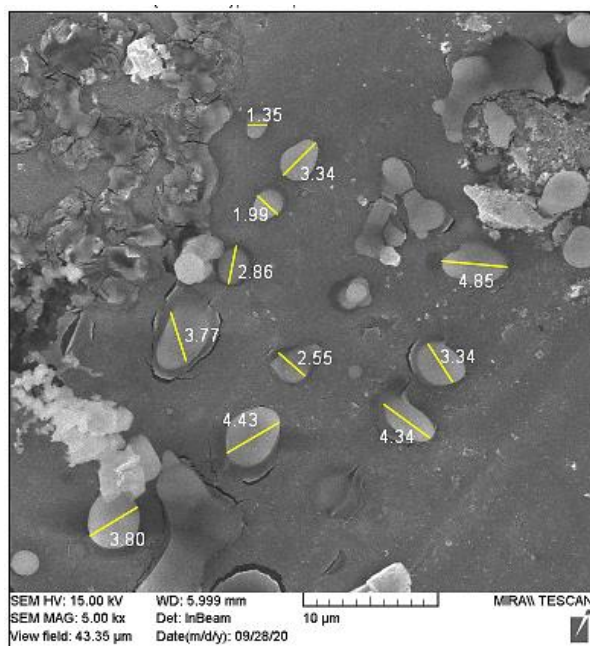
$$X = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100 \quad \text{رابطه ۲}$$

استفاده شد و نتایج در دو قسمت مختلف در شکل ۲ نشان داده شده است.



شکل ۱. طیف Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR) از نانوذرات (LDH) Layered double hydroxides نشاندهنده بر کربن فعال مغناطیسی

مطابق شکل ۲، اندازه این ذرات در نرم‌افزار پردازش تصویر ImageJ اندازه‌گیری و بر روی تصاویر مشخص شده است. مشاهده می‌شود که متوسط اندازه قطر این ذرات، 1.07 ± 0.92 میکرومتر می‌باشد. آزمون XRD جهت بررسی ساختار کریستالی کامپوزیت تولیدی استفاده شد و الگوی پراش حاصل در شکل ۳ ارائه شده است. مطابق شکل ۳، در الگوی پراش مربوط به این نمونه، پیک‌های واقع شده در زوایای 11.1° ، 23.1° ، 39.5° ، 45.3° و 60.7° درجه را می‌توان مطابق مقالات مشابه (۱۷، ۱۸) پیک‌های مشخصه ساختار LDH با کد مرجع JCPDS 15-0087 در نظر گرفت.



شکل ۲. تصاویر Scanning electron microscopy (SEM) در بزرگ‌نمایی ۵۰۰۰ برابر مربوط به دو قسمت مختلف از کامپوزیت سنتز شده

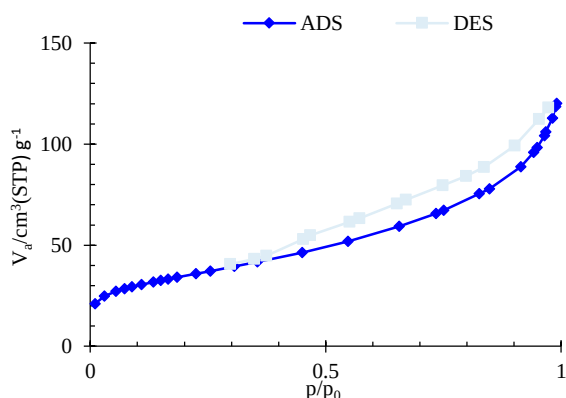
انجام آزمایش‌های جذب سرب با LDH محلول آبی حاوی سرب با استفاده از نیترات سرب با درجه آزمایشگاهی نمونه مادر ۱۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر تهیه شد. سپس با استفاده از آب دیونیزه نمونه‌های مورد نظر تهیه گردید. کلیه آزمایش‌های جذب در حجم نمونه ۱۰۰ میلی‌لیتر انجام گرفت و برای تنظیم pH نمونه، از اسید سولفوریک و هیدروکسید یک نرمال و دستگاه pH متر (مدل HACH، آمریکا) استفاده شد. برای انجام آزمایش‌ها پس از تنظیم pH، نمونه مقدار غلظت جذب وزن و به نمونه محلول اضافه گردید و روی همزن مغناطیسی با سرعت ۲۰۰ دور در دقیقه قرار داده شد. بعد از پایان مدت زمان تماس، ۱۰ سی‌سی از نمونه در لوله فالکون ۱۵ سی‌سی ریخته شد و در دستگاه سانتریفوژ با سرعت ۳۰۰۰ دور در دقیقه به مدت سه دقیقه قرار داده شد. سپس میزان سرب موجود در مایع زلال رویی به وسیله دستگاه طیف‌سنج پلاسمای جفت القایی Inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy) یا ICP-AES) سنجش و به دنبال آن، راندمان حذف سرب و ظرفیت جذب محاسبه گردید.

یافته‌ها

تعیین مشخصات سطح جاذب: نتایج حاصل از تعیین مشخصات MgAl-LDH سنتز شده بر روی کربن فعال با استفاده از آنالیز FE-SEM جهت شناسایی مورفولوژی سطحی، آنالیز BET به منظور اندازه‌گیری مساحت سطح و تخلخل، XRD برای شناسایی ساختار کریستالی و FTIR جهت شناسایی گروه‌های عاملی MgAl-LDH ارائه شده است. در شکل ۱ نتایج حاصل از طیف‌های FTIR مربوط به نانوذرات LDH در محدوده $4000-400 \text{ cm}^{-1}$ نشان داده شده است.

به منظور بررسی مورفولوژی و اندازه ذرات نمونه سنتز شده از آزمون SEM

نتایج آزمون ANOVA به منظور ارزیابی مدل انتخاب شده برای حذف سرب در جدول ۵ ارائه شده است.



شکل ۴. نتایج آزمون BET مربوط به سطح ویژه جاذب

معادله ریاضی مربوط به حذف سرب با استفاده از نتایج پیش‌بینی شده با استفاده از مدل به دست آمد که متغیر وابسته (Y) تابعی از A، B، C، D و با جمع کردن یک عدد ثابت، اثرات درجه اول (A، B، C و D)، اثرات متقابل (BC، AC، AB، CD و AD) و اثرات درجه دوم (A²، B²، C² و D²) ارزیابی گردید. به منظور سنجش نیکویی برازش، آزمون ANOVA انجام شد که نتایج آن در جدول ۶ ارائه شده است و با توجه به آنالیز انجام شده و مقادیر P، در LDH، زمان واکنش، pH محلول و غلظت سرب به ترتیب مؤثرترین متغیرهای سیستم در حذف سرب می‌باشند. سپس معادله حذف سرب بر طبق مدل چند جمله‌ای درجه دوم محاسبه گردید (رابطه ۶).

رابطه ۶

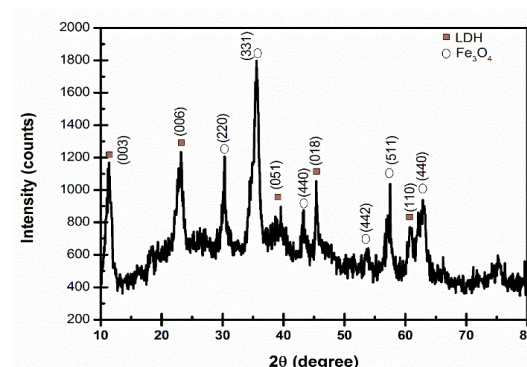
$$\begin{aligned} \text{Removal Efficiency (\%)} = & -18/866 + (15/105 \times \text{pH}) + (39/97 \times \\ & \text{LDH}) + (2/235 \times \text{Pb}) + (0/202 \times \text{time}) \\ & - (2/098 \times \text{pH} \times \text{LDH}) - (0/0947 \times \text{Pb} \times \text{LDH}) + (0/024 \times \text{pH} \times \\ & \text{time}) - (0/594 \times \text{LDH} \times \text{Pb}) - (0/064 \times \text{LDH} \times \text{time}) + \\ & \times (0/091 \times \text{Pb} \times \text{time}) - (0/787 \times \text{pH}^2) - (3/159 \times \text{LDH}^2) - (0/054 \times \\ & \text{Pb}^2) - (0/024 \times \text{time}^2) \end{aligned}$$

همان‌گونه که مشاهده می‌شود، میزان ضرایب همبستگی R^2 برای دو مدل درجه اول و درجه دوم به ترتیب ۰/۳۵۵ و ۰/۸۹۶ برای یون سرب به دست آمد. شاخص‌های آماری که به منظور برازش مدل انتخاب شدند، شامل میانگین، انحراف معیار و ضریب تغییرات هستند که نشان دهنده وضعیت داده‌های حذف برای پاسخ می‌باشد. ضریب تغییرات ۱/۹۲ درصد، نشان دهنده دقت اندازه‌گیری و قابلیت اطمینان آزمایش‌ها است. دقت مناسب، میزان علامت به خطا می‌باشد.

جدول ۳. مقادیر مساحت سطح ویژه، مقدار متوسط قطر حفرات و مجموع حجم حفرات مربوط به کامپوزیت مورد بررسی

نمونه	مجموع حجم حفرات (سانتی‌متر مکعب در گرم)	مقدار متوسط قطر حفرات (نانومتر)	مساحت ویژه (مترمربع در گرم)
Magnetic LDH@carbon	۰/۱۸۵	۶/۰۱	۱۲۳/۴۵

DQI: Diet quality index; BMI: Body mass index; LDL: Low-density lipoprotein



شکل ۳. الگوی X-Ray Diffraction (XRD) مربوط به کامپوزیت سنتز شده

فاصله صفحات (۰۰۳) در این نمونه توسط رابطه Bragg (رابطه ۴) به دست آمد و ۰/۷۸ نانومتر محاسبه گردید که در آن، λ طول موج اشعه ایکس مورد استفاده (در این جا ۱/۵۴ نانومتر) و d فاصله بین صفحات می‌باشد.

$$\lambda = 2d \sin(\theta) \quad \text{رابطه ۴}$$

در این الگو، پراش پیک‌های واقع شده در زوایای ۳۰/۳، ۳۵/۶، ۴۳/۲، ۵۳/۹، ۵۷/۵ و ۶۲/۸ درجه را می‌توان پیک‌های مشخصه ساختار مگنتیت با کد مرجع JCPDS 019-0629 در نظر گرفت. جهت محاسبه اندازه بلورک این ساختار از رابطه Debye Scherrer استفاده گردید (رابطه ۵) که در آن، K فاکتور شکل (برابر با ۰/۹)، λ طول موج اشعه X مورد استفاده (در این جا ۱/۵۴ نانومتر)، B پهنای پیک در نصف ارتفاع و θ نصف مقدار زاویه وقوع پیک می‌باشد. مطابق این رابطه، مقدار اندازه بلورک برای ساختار مگنتیت بر اساس شدیدترین پیک، ۶/۵ نانومتر بود.

$$D = K\lambda/B\cos\theta \quad \text{رابطه ۵}$$

مساحت سطح ویژه، مقدار متوسط قطر حفرات و مجموع حجم حفرات مربوط به نمونه مورد بررسی توسط ایزوترم‌های جذب و واجذب N_2 در دمای ۷۷ کلوین به دست آمد و نتایج حاصل در شکل ۴ و جدول ۳ گزارش شده است. مطابق شکل ۴، وجود یک حلقه در نسبت‌های فشاری (p/p₀) بالا، مربوط به حفرات مزوپوروس در ساختار کامپوزیت می‌باشد (۳). مقدار مساحت ویژه در این کامپوزیت، ۱۲۳/۴۵ مترمربع در گرم به دست آمد.

مدل برازش: نتایج حاصل از بررسی مدل‌های خطی، دو فاکتور (2FI)، درجه دوم (Quadratic) و مکعبی به منظور انتخاب بهترین مدل جهت پیش‌بینی نتایج آزمایش‌ها برای حذف سرب، در جدول ۴ ارائه شده است. مدل درجه دوم با بیشترین میزان R^2 ، بهترین مدل جهت پیش‌بینی میزان حذف سرب پیشنهاد شد. بنابراین، از این مدل جهت آنالیز داده‌ها استفاده گردید.

جدول ۴. نتایج صحت مدل‌های بررسی شده در Central composite design (CCD) برای حذف سرب

منبع	مقدار P متوالی	عدم تناسب مقدار P	R ² تعدیل شده	R ² پیش‌بینی شده	پیشنهاد شده
خطی	۰/۰۰۴۲۲۱	۰/۰۰۰۴۴۸	۰/۳۵۵۶	۰/۲۲۲۱۶۳	
دو فاکتور	۰/۰۵۰۷۰۹	۰/۰۰۰۸۷۹	۰/۵۳۵۸	۰/۴۴۸۰۶۸	
درجه دوم	۱/۵۴ × ۱۰ ^{-۵}	۰/۰۲۷۳۶۸	۰/۸۹۶۸	۰/۷۰۹۶۸۹	
مکعبی	۰/۰۱۳۹۵۳	۰/۳۷۳۹۹۳	۰/۹۷۷۶		

جهت ارزیابی کیفیت مدل پیشنهادی، از ضریب تبیین (Squared-R) استفاده گردید. این ضریب مجموع مربعات تشریح شده به مجموعه مربعات کل است و مقدار عددی آن بین صفر تا ۱ متغیر می‌باشد و هرچه میزان آن به عدد یک نزدیک‌تر باشد، نشان دهنده بالاتر بودن اعتبار مدل پیشنهادی است. مقدار ضریب تبیین در مطالعه حاضر، ۰/۹۴۶۶ و نشان دهنده تطابق بالای مدل پیشنهادی جهت حذف سرب به وسیله نانوکامپوزیت LDH نشانده شده بر کربن

فعال مغناطیسی شده است. در شکل ۵ درصد حذف سرب مشاهده شده در آزمایش‌های CCD در مقابل درصد حذف سرب محاسبه شده از روی مدل CCD (معادله ۵) ترسیم شده است. مدل CCD به طور مطلوبی درصد حذف سرب مشاهده شده را برآورد نموده است و همه نقاط پاسخ‌های به دست آمده، از آزمایش‌های نزدیک به خط راست قرار گرفته است که نشان دهنده توزیع نرمال خطاها می‌باشد.

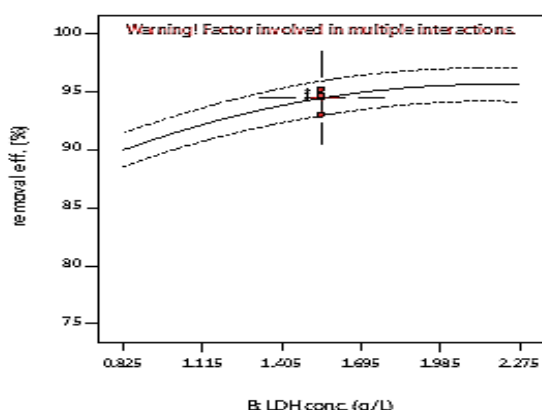
جدول ۵. نتایج آزمون ANOVA حذف سرب با نانوکامپوزیت Layered double hydroxides (LDH) نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی

منبع	مجموع مربعات	درجه آزادی	میانگین مربعات	مقدار F	مقدار P
مدل	۷۸۶/۳۹۳۲	۱۴	۵۶/۱۷۰۹	۱۹/۰۰۲۴۹	*۴/۸۸ × ۱۰ ^{-۷}
pH :A	۸۰/۳۴۳۸	۱	۸۰/۳۴۳۸	۲۷/۱۸۰۱۲	*۰/۰۰۰۱۰۵
LDH :B غلظت	۱۸۷/۵۷۲۲	۱	۱۸۷/۵۷۲۲	۶۳/۴۵۵۲۱	*۹/۰۸ × ۱۰ ^{-۷}
C: غلظت سرب	۵/۰۵۲۷	۱	۵/۰۵۲۷	۱/۷۰۹۳۱۲	۰/۲۱۰۷۶۱
D: زمان	۹۵/۵۶۶۷	۱	۹۵/۵۶۶۷	۳۲/۳۲۹۹۷	*۴/۳۲ × ۱۰ ^{-۵}
AB	۸۳/۳۰۹۴	۱	۸۳/۳۰۹۴	۲۸/۱۸۳۳۸	*۸/۷۶ × ۱۰ ^{-۵}
AC	۴/۵۴۷۴	۱	۴/۵۴۷۴	۱/۵۳۸۳۶۱	۰/۲۳۳۹۱۳
AD	۱۸/۵۴۷۰	۱	۱۸/۵۴۷۰	۶/۲۷۴۴۰۶	*۰/۰۲۴۲۷۱
BC	۴۱/۷۷۶۷	۱	۴۱/۷۷۶۷	۱۴/۱۳۲۰۵	*۰/۰۰۱۸۹۴
BD	۲۶/۱۷۷۸	۱	۲۶/۱۷۷۸	۹/۰۲۵۰۳۳	*۰/۰۰۸۸۹۷
CD	۱۴/۳۵۰۴	۱	۱۴/۳۵۰۴	۴/۸۵۴۶۹۲	*۰/۰۴۳۶۱۷
A ²	۸۰/۹۳۷۷	۱	۸۰/۹۳۷۷	۲۷/۳۸۱۰۳	*۰/۰۰۰۱۰۱
B ²	۷۴/۹۹۱۰	۱	۷۴/۹۹۱۰	۲۵/۳۶۹۲۷	*۰/۰۰۰۱۴۷
C ²	۱۶/۱۵۶۲	۱	۱۶/۱۵۶۲	۵/۴۶۵۶۱۴	*۰/۰۳۳۶۶۲
D ²	۹۱/۵۹۷۰	۱	۹۱/۵۹۷۰	۳۰/۹۸۷۰۴	*۵/۳۹ × ۱۰ ^{-۵}
باقی‌مانده	۴۴/۳۳۹۷	۱۵	۴۴/۳۳۹۷		
عدم تناسب	۴۱/۰۹۹۹	۱۰	۴۱/۰۹۹۹	۶/۳۴۳۰۵۲	*۰/۰۲۷۳۶۸
خطای محض	۳/۲۳۹۸	۵	۰/۶۴۸۰		
مجموع مجزورات تصحیح شده	۸۳۰/۷۳۲۸	۲۹			
انحراف معیار				۱/۷۲۰۰	
میانگین				۸۹/۵۷۰۰	
درصد ضریب تغییرات				۱/۹۲۰۰	
R ²				۰/۹۴۶۶	
R ² تعدیل شده				۰/۸۹۶۸	
R ² پیش‌بینی شده				۰/۷۰۹۷	
دقت کافی				۱۴/۱۲۴۳	

* معنی‌دار

LDH: Layered double hydroxides

تعیین تأثیر غلظت جاذب در حذف سرب از محلول آبی توسط LDH
مغناطیسی: در شکل ۷ اثر غلظت LDH بر راندمان حذف سرب در محدوده ۰/۱-۳ گرم در لیتر تحت شرایط یکسان مشخص شده است. بدین ترتیب، با افزایش غلظت LDH، راندمان حذف سرب تا حدود ۲ گرم در لیتر تأثیر چشمگیری داشت و بعد از آن، با افزایش غلظت LDH، حذف سرب با شیب ملایمی اتفاق افتاد. بر اساس نتایج آنالیز ANOVA، غلظت LDH با مقدار F بالا تأثیر چشمگیری بر پاسخ یا راندمان حذف سرب داشت. بنابراین، راندمان حذف سرب با افزایش غلظت LDH افزایش یافت.

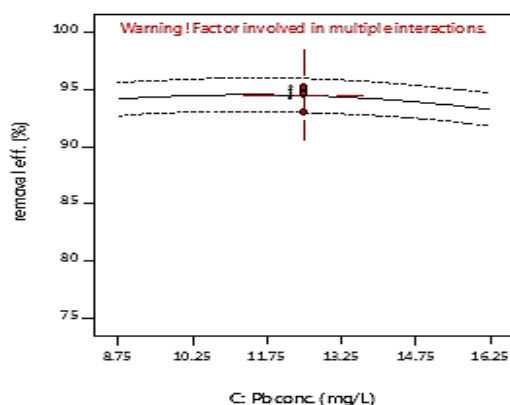


شکل ۷. تأثیر غلظت Layered double hydroxides (LDH) بر

راندمان حذف سرب در شرایط نقاط مرکزی سایر متغیرها

[LDH = ۱/۵۵ (گرم در لیتر)، ۶۵ = زمان (دقیقه)، ۱۲/۵ = سرب (میلی گرم در لیتر)، pH = ۷]

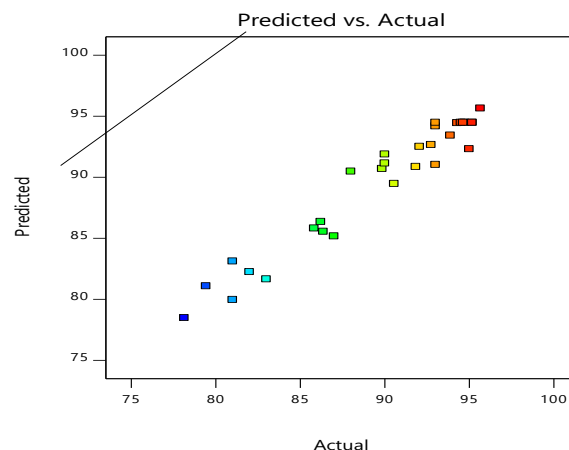
تعیین تأثیر غلظت اولیه سرب در حذف آن از محلول آبی توسط LDH
مغناطیسی: در شکل ۸ اثر غلظت اولیه سرب بر راندمان حذف سرب در محدوده ۲۰-۵ گرم در لیتر تحت شرایط یکسان بررسی شد و مشاهده می‌گردد که با افزایش غلظت اولیه سرب، راندمان حذف سرب کاهش یافت.



شکل ۸. تأثیر غلظت اولیه سرب بر راندمان حذف سرب در

شرایط نقاط مرکزی سایر متغیرها

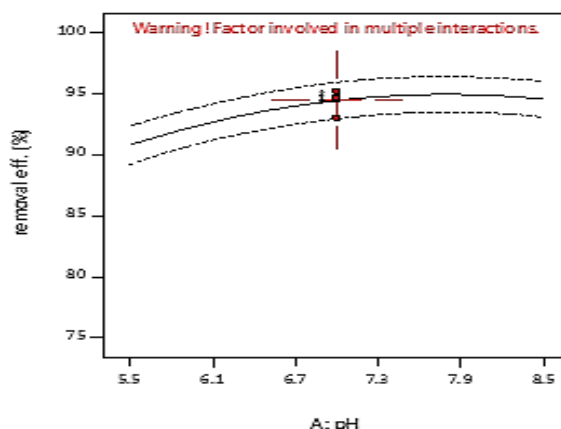
[LDH = ۱/۵۵ (گرم در لیتر)، ۶۵ = زمان (دقیقه)، ۱۲/۵ = سرب (میلی گرم در لیتر)، pH = ۷]



شکل ۵. مقایسه مقدار اندازه‌گیری شده حذف سرب با مقدار پیش‌بینی شده آن با استفاده از مدل Central composite design (CCD)

تأثیر متغیرهای بهره‌برداری بر راندمان حذف سرب: تأثیر متغیرهای مستقل شامل غلظت LDH، غلظت اولیه سرب، pH و زمان تماس در راندمان حذف سرب در کانتور دو بعدی سطح پاسخ و در مقادیر نقاط مرکزی سایر متغیرها ترسیم گردیده است. با کاربرد نمودارهای سطح پاسخ راندمان حذف سرب در مقادیر مختلف، شاخص‌ها را می‌توان پیش‌بینی کرد. با توجه به جدول ANOVA و با توجه به آنالیز انجام شده و مقادیر P، غلظت جاذب LDH، زمان واکنش، pH محلول و غلظت سرب به ترتیب مؤثرترین متغیرهای سیستم در حذف سرب می‌باشند.

تعیین تأثیر pH اولیه در حذف سرب از محلول آبی توسط LDH
مغناطیسی: در شکل ۶ تأثیر pH بر راندمان حذف سرب در محدوده ۴-۱۰ تحت شرایط یکسان بررسی گردید. بر این اساس، با افزایش pH، راندمان حذف سرب تا حدود ۷ تأثیر چشمگیری داشت و پس از آن با افزایش pH، حذف سرب با شیب ملایمی صورت گرفت.



شکل ۶. تأثیر pH بر راندمان حذف سرب در شرایط نقاط مرکزی

سایر متغیرها

[LDH = ۱/۵۵ (گرم در لیتر)، ۶۵ = زمان (دقیقه)، ۱۲/۵ = سرب (میلی گرم در لیتر)، pH = ۷]

Total dissolved solids (TDS) آن در محدوده ۵۳ تا ۴۷۰ میلی گرم بر لیتر تنظیم شود، شرایط بهینه بر اساس ظرفیت جذب بیشینه تعریف گردید.

بحث

مشخصات سطح جاذب: مطابق نتایج طیف‌های FTIR مربوط به نانوذرات LDH در محدوده $4000-400\text{ cm}^{-1}$ پیک پهن مشاهده شده در 3436 cm^{-1} مربوط به ارتعاشات گروه‌های هیدروکسیل موجود در ساختار LDH و مولکول‌های آب جذب شده روی سطح نانوذرات می‌باشد. پیک مشاهده شده در 448 cm^{-1} و 644 cm^{-1} مسؤول باندهای جذبی اکسیدهای فلزی Al-O و Mg-O است (۱۷، ۱۹).

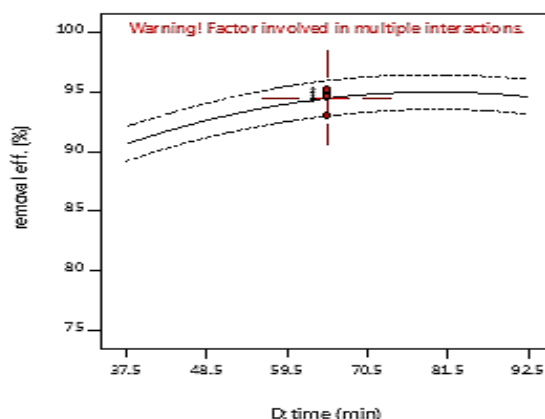
مطابق نتایج شکل ۲، اندازه ذرات 170.7 ± 27.92 میکرومتر به دست آمد. مطابق نتایج آزمون XRD در بررسی ساختار کریستالی کامپوزیت، وجود هم‌زمان ساختار LDH و مگنتیت، بیان‌کننده سنتز موفقیت‌آمیز کامپوزیت مغناطیسی بر پایه LDH می‌باشد. همچنین، مقدار مساحت ویژه در این کامپوزیت، $123/45$ مترمربع بر گرم حدود ۶ برابر مقدار به دست آمده برای LDH خالص است که توسط Wang و همکاران (۴) گزارش شده بود. این افزایش مساحت ویژه می‌تواند تأثیر بسزایی بر خواص جاذب داشته باشد.

مدل‌سازی و عوامل مؤثر بر فرایند جذب: مطابق پیشنهاد نرم‌افزار، مدل Quadratic جهت پیش‌بینی میزان حذف سرب پیشنهاد گردید؛ به طوری که مطابق جدول ANOVA، تأثیر متغیرهای غلظت جاذب، غلظت اولیه سرب، pH و زمان تماس در راندمان حذف سرب معنی‌دار گزارش شد.

تأثیر pH اولیه در فرایند حذف سرب: با افزایش pH، راندمان حذف سرب تا حدود ۷ تأثیر زیاد داشت و بعد از آن با افزایش pH، حذف سرب با شیب ملایمی صورت گرفت. اثر pH در کنترل فرایندهای مرتبط با جذب فلزات سنگین توسط محققان مختلف گزارش و مورد تأکید قرار گرفته است (۱۷). این شاخص یکی از مهم‌ترین عوامل محیطی است که بر هر نوع فرایند جذب و تبادل یون‌های فلزات سنگین تأثیرگذار است. بر اساس نتایج آزمون ANOVA، pH اولیه محلول دارای مقدار F بالا بود و بیشترین اثر بر راندمان حذف سرب را داشت. بنابراین، با افزایش pH محلول، راندمان حذف سرب نیز افزایش یافت. در مقادیر کم pH، غلظت پروتون زیاد بود که منجر به رقابت بین H^+ و سرب برای جایگاه فعال جاذب می‌شود و از کارآمدی حذف سرب می‌کاهد. همچنین، در مقادیر کم pH، ضخامت لایه مضاعف بین جاذب و محلول‌ها به طور قابل ملاحظه‌ای کاهش می‌یابد و منجر به کاهش راندمان حذف سرب از محیط‌های آبی می‌گردد (۱۸).

بر اساس نتایج آزمون ANOVA، غلظت اولیه سرب دارای کمترین مقدار F بود. بنابراین، اثر غلظت اولیه سرب بر راندمان حذف سرب با افزایش غلظت اولیه کاهش پیدا کرد.

تأثیر زمان فرایند در حذف سرب از محلول آبی با استفاده از LDH مغناطیسی: در شکل ۹ اثر زمان تماس بر راندمان حذف در محدوده ۱۰-۱۲۰ دقیقه تحت شرایط یکسان بررسی گردید. بر این اساس، با افزایش زمان تماس راندمان حذف سرب تا حدود ۶۷ دقیقه تأثیر چشمگیر داشت و بعد از آن با افزایش زمان تماس، حذف سرب با شیب ملایمی صورت گرفت.



شکل ۹. تأثیر زمان تماس بر راندمان حذف سرب در شرایط نقاط

مرکزی سایر متغیرها

[LDH = ۱/۵۵ (گرم در لیتر)، ۶۵ = زمان (دقیقه)، ۱۲/۵ = سرب (میلی گرم در لیتر)، pH = ۷]

بر اساس نتایج آزمون ANOVA، زمان تماس دارای مقدار F بالا بعد از غلظت LDH بوده است. بنابراین، با افزایش زمان تماس، راندمان حذف سرب نیز افزایش یافت.

شرایط بهینه حذف سرب: هدف اصلی از بهینه‌سازی متغیرهای وابسته، دستیابی به بالاترین راندمان حذف سرب به وسیله نانوکامپوزیت LDH نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی شده می‌باشد که تحت شرایط بهینه، راندمان حذف سرب ۹۶/۱۱ درصد به دست آمد.

شرایط بهینه آزمایش‌ها بر اساس سه سناریو به ترتیب راندمان جذب بیشینه، pH در محدوده مناسب شرب و بیشینه ظرفیت جذب تعیین شد که در جدول ۶ ارائه شده است. از آنجایی که باید محدوده pH آب شرب در محدوده ۸/۵-۶/۵ و

جدول ۶. شرایط بهینه جهت حذف سرب به وسیله نانوکامپوزیت Layered double hydroxides (LDH) نشانده شده بر کربن

فعال مغناطیسی شده

سناریو	pH	غلظت LDH (گرم در لیتر)	غلظت سرب (میلی‌گرم در لیتر)	زمان (دقیقه)	اثر حذف (درصد)	ظرفیت جذب (میلی‌گرم در گرم)	TDS نهایی (میلی‌گرم در لیتر)	pH نهایی
۱	۶/۷۳	۲/۱۰۰	۱۰/۹۸	۶۷/۷۱	۹۶/۱۱			
۲	۸/۱۶	۰/۸۲۵	۱۶/۲۴	۹۰/۳۳	۹۵/۲۰۲	۲۸/۸۳	۱۵۱/۸۰	۷/۸۰
۳	۷/۲۰	۰/۸۳۰	۱۶/۲۵	۷۲/۲۵	۹۱/۸۹	۳۰/۵۲	۱۵۷/۱۹	۷/۷۹

LDH: Layered double hydroxides; TDS: Total dissolved solids

افزایش بیشتر آن به حد ثابتی می‌رسد. کاهش در میزان حذف در صورت افزایش غلظت اولیه فلز را می‌توان به علت محدود شدن مکان‌های جذب روی جاذب به علت تراکم یون‌های فلزی موجود در محلول در نظر گرفت (۲۳).

تأثیر زمان فرایند در حذف سرب: با افزایش زمان تماس، راندمان حذف سرب افزایش چشمگیری داشت و بعد از ۶۰ دقیقه، با افزایش زمان تماس، افزایش حذف سرب با شیب ملایمی صورت می‌گیرد. نتایج مطالعه سوا سیری و همکاران نشان داد که با افزایش زمان تماس، راندمان حذف به واسطه انجام واکنش سایت‌های فعال روی جاذب با آلاینده افزایش می‌یابد (۱۹).

نتیجه‌گیری

راندمان حذف یون سرب در شرایط بهینه $pH = 6/73$ ، زمان واکنش $67/71$ دقیقه، غلظت جاذب نانوکامپوزیت $LDH = 2/10$ گرم در لیتر، غلظت اولیه سرب $98/10$ میلی‌گرم در لیتر، $96/11$ درصد به دست آمد. در این شرایط، میزان مطلوبیت مدل، ۱۰۰ درصد بود. بر اساس نتایج، بیشترین میزان مطابقت سینتیک جذب با مدل درجه دوم مشاهده شد و این مدل به عنوان بهترین نمونه جهت توصیف رفتار سینتیک جاذب LDH نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی در جذب یون سرب از محیط‌های آبی انتخاب گردید. جاذب LDH نشانده شده بر کربن فعال مغناطیسی، به دلیل ویژگی‌های منحصر به فرد خود مانند ساختار لایه لایه خاص، ظرفیت تبادل یونی زیاد و دارا بودن گروه‌های هیدروکسیل در لایه‌های خود، جاذب مناسبی برای حذف یون سرب از محلول‌های آبی می‌باشد. همچنین، CCD و روش RSM برای بهینه‌سازی متغیرهای مؤثر در فرایند حذف یون سرب به روش جذب سطحی مناسب است.

تشکر و قدردانی

پژوهش حاضر برگرفته از پایان‌نامه مقطع کارشناسی ارشد با شماره ۱۱۲۱۰۰ و کد اخلاق IR.GOUMS.REC.1400.069، مصوب دانشگاه علوم پزشکی گلستان می‌باشد. بدین وسیله نویسندگان از همکاری و حمایت‌های آن مرکز تشکر و قدردانی به عمل می‌آورند.

با افزایش pH محلول، رقابت بین H^+ و Pb^{2+} برای سایت‌های جذب کاهش می‌یابد و باعث افزایش بار منفی سطح جاذب می‌شود و فعل و انفعالات الکترواستاتیک بین جاذب (با بار منفی سطح) و یون‌های Pb^{2+} افزایش پیدا می‌کند و پاسخ‌ها نیز افزایش می‌یابد. نتایج مطالعه سوا سیری و همکاران با هدف ارزیابی نانوذرات آهن صفر ظرفیتی پایدار شده با اسید آسکوربیک در حذف سرب از محلول‌های آبی به روش سطح پاسخ، نشان داد که با افزایش pH راندمان حذف سرب از محلول‌های آبی افزایش می‌یابد و $pH = 7$ بهینه‌ترین pH برای حاکثر حذف سرب می‌باشد (۱۹). علیرزاده و همکاران عنوان کردند که pH ‌های بالاتر از گروه هیدروکسیل سطح، دارای بار منفی هستند و باعث جذب کاتیون‌ها می‌شود (۳).

تأثیر غلظت جاذب در فرایند حذف سرب: با افزایش مقدار جاذب، راندمان فرایند جذب افزایش یافت. افزایش غلظت LDH باعث افزایش محل‌های فعال و واکنش‌پذیر سطحی، جذب و امکان برخورد بیشتر بین سرب و جاذب و افزایش مکان‌های در دسترس برای یون سرب می‌شود و در نتیجه، راندمان حذف سرب افزایش می‌یابد (۲۰). نتایج تحقیق سوا سیری و همکاران نشان داد که با افزایش غلظت جاذب ($AAS-ZVIN$)، راندمان حذف سرب از محلول‌های آبی افزایش می‌یابد (۱۹). یافته‌های پژوهش دیگری حاکی از آن بود که افزایش غلظت جاذب، باعث افزایش محل‌های واکنش‌پذیری سطحی و افزایش جذب و به دنبال آن، افزایش راندمان حذف سرب می‌شود (۲۰).

تأثیر غلظت اولیه سرب بر راندمان فرایند حذف: با افزایش غلظت اولیه سرب، راندمان حذف سرب کاهش می‌یابد. یکی از دلایل این امر در مطالعه Zhang، تعداد محل‌های محدود جاذب‌ها دانسته شده است که در غلظت‌های بالا اشباع می‌شوند و در نتیجه، درصد حذف عناصر کاهش می‌یابد (۲۱). نتایج تحقیق صابری با موضوع مقایسه کارایی حذف Pb^{2+} با نانوذرات آهن صفر و نانوذرات بی‌فلزی Ni/Fe نشان داد که با افزایش غلظت سرب، راندمان حذف کاهش می‌یابد (۲۲). نتایج پژوهش یوسفی و همکاران که با هدف تعیین بازده پوسته صدف دو کفه‌ای در حذف سرب از محلول‌های آبی CCD و بهینه‌سازی عوامل مؤثر انجام شد، نشان داد که با افزایش در میزان غلظت اولیه یون‌های فلزی، میزان حذف کاهش می‌یابد. این کاهش در غلظت‌های کمتر از ۵۵ میلی‌گرم در لیتر، حادتر و با

References

1. Rezvani M, Ghorbanian AA, Nojavan M, Sahaba M. Evaluation of heavy metal contamination (cadmium, cobalt, lead, zinc and manganese) in Eshtehard aquifer. Environmental Science and Bioengineering 2013; 6(0): 13-21. [In Persian].
2. Amodio-Cocchieri R, Fiore P. Lead and cadmium concentrations in livestock bred in Campania, Italy. Bull Environ Contam Toxicol 1987; 39(3): 460-4.
3. Alizadeh M, Fathi Saghezchi F, Torabian A. A survey of heavy metals accumulation in foraging plants irrigated by sewage in south of Tehran (Case study: Maize and Alfalfa). Journal of Environmental Studies 2009; 34(48): 137-48. [In Persian].
4. Wang W, Zhang N, Ye Z, Hong Z, Zhi M. Synthesis of 3D hierarchical porous Ni-Co layered double hydroxide/n-doped reduced graphene oxide composites for supercapacitor electrodes. Inorg Chem Front 2018; 6(2): 407-16.
5. Dadban Shahamat Y, Sangbari N, Zafarzadeh A, Beirami S. Heavy metal contamination in the effluent and Sludges of wastewater treatment plant in Gorgan, Iran. J Mazandaran Univ Med Sci 2017; 27(150): 158-69. [In Persian].
6. Marzal P, Seco A, Gabaldón C, Ferrer J. Cadmium and zinc adsorption onto activated carbon: Influence of temperature, pH and metal/carbon ratio. J Chem Technol Biotechnol 1996; 66(3): 279-85.
7. Mohan D, Singh KP, Singh VK. Trivalent chromium removal from wastewater using low cost activated carbon

- derived from agricultural waste material and activated carbon fabric cloth. *J Hazard Mater* 2006; 135(1-3): 280-95.
8. Fu F, Wang Q. Removal of heavy metal ions from wastewaters: A review. *J Environ Manage* 2011; 92(3): 407-18.
 9. Wang X, Guo Y, Yang L, Han M, Zhao J, Cheng X. Nanomaterials as sorbents to remove heavy metal ions in wastewater treatment. *J Environ Anal Toxicol* 2012; 2: 154.
 10. Shan Rr, Yan Lg, Yang K, Yu Sj, Hao Yf, Yu Hq, et al. Magnetic Fe₃O₄/MgAl-LDH composite for effective removal of three red dyes from aqueous solution. *Chem Eng J* 2014; 252: 38-46.
 11. Torres-Dorante LO, Lammel J, Kuhlmann H. Use of a layered double hydroxide (LDH) to buffer nitrate in soil: Long-term nitrate exchange properties under cropping and fallow conditions. *Plant Soil* 2009; 315(1): 257-72.
 12. Azimzadeh Y, Najafi N, Reyhanitabar A, Oustan S. Efficiency of Mg-Al layered double hydroxide for phosphorous removal from aqueous solution. *Iran J Health Environ* 2017; 10(1): 125-38. [In Persian].
 13. Zhao D, Sheng G, Hu J, Chen C, Wang X. The adsorption of Pb(II) on Mg₂Al layered double hydroxide. *Chem Eng J* 2011; 171(1): 167-74.
 14. Rodriguez M, Montgomery D, Borrer C. Generating experimental designs involving control and noise variables using genetic algorithms. *Quality and Reliability Eng Int* 2009; 25(8): 1045-65.
 15. Kasiri MB, Khataee AR. Removal of organic dyes by UV/H₂O₂ process: modelling and optimization. *Environ Technol* 2012; 33(10-12): 1417-25.
 16. Myers R, Montgomery D, Anderson-Cook C. Response surface methodology: Process and product optimization using designed experiments. Hoboken, NJ: John Wiley & Sons; 2009.
 17. Taty-Costodes VC, Fauduet H, Porte C, Delacroix A. Removal of Cd(II) and Pb(II) ions, from aqueous solutions, by adsorption onto sawdust of Pinus sylvestris. *J Hazard Mater* 2003; 105(1-3): 121-42.
 18. Üzümlü C, Shahwan T, Eroğlu AE, Hallam KR, Scott TB, Lieberwirth I. Synthesis and characterization of kaolinite-supported zero-valent iron nanoparticles and their application for the removal of aqueous Cu²⁺ and Co²⁺ ions. *Applied Clay Science* 2009; 43(2): 172-81.
 19. Savasari M, Emadi SM, Bahmanyar M, Biparva P. Assessment of Pb (II) removal from aqueous solutions by ascorbic acid-stabilized Zero-valent iron nanoparticles using response surface methodology (RSM). *Journal of Water and Wastewater* 2017; 28(3): 46-54. [In Persian].
 20. Esfahani AR, Firouzi AF, Sayyad G, Kiasat A, Alidokht L, Khataee AR. Pb(II) removal from aqueous solution by polyacrylic acid stabilized zero-valent iron nanoparticles: process optimization using response surface methodology. *Res Chem Intermed* 2014; 40(1): 431-45.
 21. Zhang Wx. Nanoscale iron particles for environmental remediation: An overview. *J Nanoparticle Res* 2003; 5(3): 323-32.
 22. Saberi A. Comparison of Pb²⁺ Removal efficiency by zero valent iron nanoparticles and Ni/Fe bimetallic nanoparticles. *J Energy Environ* 2012; 3(2): 189-96.
 23. Yousefi Z, Mohammadpour-Tahamtan RA, Mashayekh-Salehi A. The efficiency of bivalve mollusk shell in removal of lead [Pb (II)] from aqueous solutions by central composite design model (CCD) and optimization of effective parameters. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2013; 23(108): 54-67. [In Persian].