



Available online: <http://ijhe.tums.ac.ir>

مقاله پژوهشی

## بررسی کارایی سیلیکا آئروژل سنتز شده از سیلیکات سدیم در جذب فنل از محیط‌های آبی

علیرضا رحمانی<sup>۱</sup>، فاطمه ناظمی<sup>۲</sup>، فاطمه برجسته عسکری<sup>۳</sup>، حلیمه الماسی<sup>۴</sup>، نادر شعبانلو<sup>۵</sup>، امیر شعبانلو<sup>۶\*</sup>

- ۱- دکتری بهداشت محیط، استاد، گروه مهندسی بهداشت محیط، مرکز علوم تحقیقات علوم بهداشتی، دانشگاه علوم پزشکی همدان، ایران
- ۲- کارشناس ارشد شیمی آلی، کارشناس آزمایشگاه کنترل مواد غذایی، معاونت غذا و دارو، دانشگاه علوم پزشکی همدان، ایران
- ۳- کارشناس ارشد مهندسی بهداشت محیط، مربی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تربت حیدریه، تربت حیدریه، ایران
- ۴- کارشناس ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، ایران
- ۵- کارشناس شیمی محض، دانشجوی کارشناسی شیمی محض، دانشکده شیمی، دانشگاه بوعلی سینا، همدان
- ۶- (نویسنده مسئول): کارشناس ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشجوی دکتری مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، ایران

### چکیده

### اطلاعات مقاله:

**زمینه و هدف:** فنل یک ترکیب سمی و مقاوم در محیط زیست است. هدف از این مطالعه بررسی کارایی سیلیکا آئروژل سنتز شده از سیلیکات سدیم در جذب فنل از محیط‌های آبی بود. روش بررسی: سیلیکا آئروژل از سیلیکات سدیم به روش سل-ژل تهیه شد. تاثیر متغیرهای موثر نظیر زمان تماس، pH محلول، میزان جاذب و غلظت اولیه فنل بر کارایی جذب بررسی شد. ویژگی‌های سیلیکا آئروژل سنتز شده و تایید جذب فنل به ترتیب با آنالیزهای SEM، XRD، طیف‌های FTIR، NMR تعیین شد. داده‌های جذب با مدل ایزوترم لانگمویر و فروندلیچ و سینتیک فرایند جذب با مدل‌های شبه درجه اول و شبه درجه دوم بررسی شد.

تاریخ دریافت: ۹۴/۰۸/۱۱  
تاریخ ویرایش: ۹۴/۱۰/۲۶  
تاریخ پذیرش: ۹۴/۱۱/۰۵  
تاریخ انتشار: ۹۵/۰۳/۱۷

**واژگان کلیدی:** سیلیکا آئروژل، سیلیکات سدیم، سل-ژل، فنل، محیط‌های آبی

**نتیجه‌گیری:** سیلیکا آئروژل به عنوان یک جاذب سطحی به دلیل ویژگی‌های ساختاری و کاربردی خاص می‌تواند یک فرایند تصفیه نوید بخش برای جذب ترکیبات سمی و مقاوم باشد.

پست الکترونیکی نویسنده مسئول:

shabanlo\_a@yahoo.com

Please cite this article as: Rahmani AR, Nazemi F, Barjasteh Askari F, Almasi H, Shabanloo N, Shabanloo A. Performance evolution of silica aerogel synthesized from sodium silicate in the adsorption of phenol from aqueous solutions. Iranian Journal of Health and Environment. 2016;9(1):1-14.

## مقدمه

فنل در فاضلاب صنایعی نظیر پالایش نفت، زغال کک، تولید پلاستیک و فرایندهای رزین و فولاد با غلظت‌های مختلفی وجود دارد، پساب‌های حاوی فنل به دلیل قابلیت زیست تخریب پذیری کم و سمیت بالا از مشکلات جدی برای محیط زیست محسوب می‌شود (۱، ۲) به همین دلیل سازمان حفاظت از محیط زیست آمریکا فنل را در گروه آلاینده‌های دارای اولویت طبقه بندی کرده و مطابق با همین دستورالعمل، غلظت فنل باید به کمتر از  $1 \text{ mg/L}$  در پساب خروجی از صنایع مرتبط با فنل باشد (۳). امروزه فرایندهای بیولوژیکی با کارایی مناسبی برای حذف فنل استفاده می‌شود. در یک مطالعه، El-Naas و همکاران (۴) کارایی فرایند بیولوژیکی Spouted Bed Bioreactor (SBBR) را در حذف فنل مورد بررسی قرار دادند، در دمای ثابت  $30^\circ \text{C}$  برای حذف موثر فنل با غلظت اولیه  $75 \text{ mg/L}$  به حدود  $160 \text{ min}$  زمان نیاز بود، در این مطالعه برای ثابت نگاه داشتن باکتری *Pseudomonas putida* در راکتور از ماتریس ژل پلی وینیل کلراید استفاده شد. در مطالعه Praveen (۵) از یک بیوراکتور غشایی فیبر توخالی تراوشی برای اکسیداسیون بیولوژیکی فنل در فاضلاب شور استفاده شد، باکتری *Pseudomonas putida* توسط فاضلاب رقیق در مقابل اثر ممانعت‌کنندگی فنل و سدیم کلراید با شرایط سازگار گردید، برای اکسیداسیون فنل در غلظت‌های بالا تا حدود  $1000 \text{ mg/L}$  به حدود  $20 \text{ h}$  زمان نیاز بود.

نیاز به شرایط دمایی خاص، نیاز به سازگار کردن میکروارگانیسم با آلاینده و شرایط شیمیایی فاضلاب، نیاز به زمان تماس بالا توسط بیشتر فرایندهای بیولوژیکی (۶، ۷) سبب شده محققان روش‌ها و فرایندهای دیگر را نیز مورد توجه قرار دهند. یکی از فرایندهای موثر در زمینه حذف آلاینده‌ها فرایند جذب است که به دلیل هزینه‌های متناسب با کارایی مورد انتظار، امکان اختصاصی عمل کردن و عدم حساسیت به مواد سمی و بازیافت ترکیبات با ارزش نسبت به سایر روش‌ها متمایز است (۸). کربن فعال گرانولی به طور گسترده برای حذف آلاینده‌ها از محیط‌های آبی استفاده می‌شود با این حال سینتیک آهسته و کارایی کمتر

از  $100\%$  ظرفیت، هزینه بالای تهیه، فعال سازی و احیاء و انعطاف‌پذیری کم، کاربرد این جاذب را با مشکلاتی همراه کرده است (۹-۱۱). امروزه کاربرد مواد متخلخل به دست آمده از فرایند سل-ژل (Sol-Gel) به دلیل داشتن سطح ویژه بسیار بالا و سهولت در ساخت در حال توسعه هستند، در این میان آئروژل‌ها به عنوان جاذب برای جذب آلاینده‌ها از آب معرفی شده‌اند، در گروه آئروژل‌ها بیشترین توجه به سیلیکا آئروژل و کاربرد آن در تصفیه فاضلاب و جذب آلاینده‌ها است (۱۲). سیلیکا آئروژل‌ها موادی جامد با تخلخل بالا، مساحت سطحی زیاد در حدود  $10000 \text{ m}^2/\text{g}$ ، اندازه منافذ  $1$  تا  $100 \text{ nm}$  و دانسیته کمتر از  $0.3$  تا  $0.35 \text{ g/cm}^3$  است (۱۳). سیلیکا آئروژل علاوه بر تولید ارزان نسبت به کربن فعال، بعد از چندین سیکل جذب/وا جذب کارایی خود را حفظ می‌کند (۱۴). سیلیکا آئروژل در حالت طبیعی به دلیل حضور گروه  $\text{Si-OH}$  در ساختار شیمیایی، آب دوست (Hydrophilic) بوده اما می‌توان با جایگزینی گروه‌های پایدار  $\text{Si-R}$  ( $\text{R}=\text{CH}_3$ ) با گروه‌های  $\text{Si-OH}$  سیلیکا آئروژل آب گریز (Hydrophobic) ایجاد نمود؛ یکی از مهمترین خواص مربوط به سیلیکا آئروژل امکان کنترل میزان آب‌گریزی آن است، به طوری که در برنامه‌های کاربردی علوم و تحقیقات آئروژل به آئروژل با درجات مختلف آب‌گریزی نیاز است (۱۵). نتایج پژوهش‌های انجام شده در گذشته حاکی از بهره‌وری بالاتر آئروژل‌های آب دوست در حذف ترکیبات آلی محلول در آب است، در حالی که آئروژل‌های آب‌گریز برای حذف آلاینده‌های با حلالیت کم در آب موثر است، جدول شماره ۱ ترکیبات مورد استفاده در سنتز سیلیکا آئروژل آب دوست و آب‌گریز را نشان می‌دهد (۱۶).

جدول ۱- مواد اولیه مورد استفاده در ساخت سیلیکا آئروژل (۱۶)

| آب دوست                                       | آب گریز                |
|---|------------------------|
| Tetramethoxysilane (TMOS)                     | تترا متوکسی سیلان      |
| Tetraethoxysilane (TEOS)                      | متیل تری متوکسیل سیلان |
| Sodium Silicate ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) | متیل تری اتوکسی سیلان  |
| سدیم سیلیکات                                  |                        |

جدا شد تا محلول شفافی از  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  بدست آید، سپس  $50 \text{ mL}$   $\text{HCl}$  غلیظ  $12 \text{ N}$  به آرامی در مدت زمان  $1 \text{ h}$  به محلول اشباع  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  اضافه شد. پس از گذشت  $24 \text{ h}$  طی فرایند پلیمریزاسیون  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  در محیط اسیدی به صورت ژل در آمد؛ در این مرحله ژل تولید شده به آرامی با روش فیلتراسیون از حلال جدا شد ( $17$ )، در مرحله تعویض حلال، سیلیکا آئروژل توسط اتانول و استون چندین بار شسته شد تا آب تجمع یافته در سایت‌های خالی ژل با مخلوطی از اتانول و استون جایگزین شود. جهت جلوگیری از خشک شدن ژل، بلافاصله استوژل تولید شده تحت فشار بالا به نقطه فوق بحرانی دمای حلال که همان نقطه فوق بحرانی مخلوط استون و اتانول است رسیده ( $8 \text{ MPa}$  و  $245^\circ \text{C}$ ) و سپس به سرعت فشار کاهش پیدا کرد تا حلال به طور کامل از داخل سایت‌های خالی ژل تخلیه شود ( $18$ ).

**تعیین ویژگی سیلیکا آئروژل سنتز شده و تایید جذب فنل:**  
 ساختار سطحی سیلیکا آئروژل سنتز شده با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM Scanning Electron Microscope) مجهز به سیستم آنالیز EDX (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) مطالعه گردید. بررسی ساختار بلوری سیلیکا آئروژل توسط آنالیز طیف سنج پراش اشعه ایکس (X-ray diffraction- XRD) در محدوده  $2\theta$ ، ( $2$  تا  $60$ ) توسط دستگاه XRD مدل ADP2000 انجام شد. گروه‌های عاملی و پیوندهای موجود در مولکول سیلیکا آئروژل قبل و بعد از جذب فنل با آنالیز طیف سنجی تبدیل فوریه مادون قرمز (Fourier Transform Infrared Spectrum- FTIR) در محدوده  $400$  تا  $4000 \text{ cm}^{-1}$  توسط دستگاه Perkin Elmer Spectrum مدل  $1600$  انجام شد. به منظور مطالعه ساختار میکرومولکول‌های کوچک و ترکیبات آلی در سیلیکا آئروژل قبل و بعد از جذب فنل از آنالیز رزونانس مغناطیس هسته (Nuclear Magnetic Resonance- NMR) مدل Avance 200MHZ استفاده گردید.

سیلیکات سدیم ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ) در فرایند سل-ژل به عنوان یک ماده اولیه ارزان برای سنتز سیلیکا آئروژل شناخته شده است، در مرحله نخست  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  با آب واکنش و اسید سیلیسیک (Silicic Acid) تولید می‌کند، در مرحله بعدی با اضافه کردن اسید یا باز فرایند هیدرولیز انجام می‌شود و در نهایت از طریق فرایند پلیمریزاسیون سیلیکا آئروژل تولید می‌گردد؛ واکنش شماره  $1$  این فرایند را با هیدرولیز اسیدی نشان می‌دهد ( $17$ )؛

واکنش  $1$



با توجه به ویژگی‌های خاص آئروژل و اهمیت کاربرد سیلیکا آئروژل‌های آب دوست در حذف ترکیبات آلی محلول، هدف از این مطالعه سنتز سیلیکا آئروژل با ماده اولیه سیلیکات سدیم با ویژگی آب دوست و تعیین ویژگی و کارایی آن در حذف فنل از محیط‌های آبی بود، همچنین تاثیر عوامل موثر بر جذب فنل بررسی و در نهایت ضرایب سینتیکی و ایزوترمیک مشخص شد.

## مواد و روش‌ها

### مواد مورد استفاده:

فنل ( $\text{C}_6\text{H}_5\text{OH}$ ) با خلوص  $99.5\%$ ، هیدروکسید آمونیوم ( $\text{NH}_4\text{OH}$ )، فری سیانید پتاسیم ( $\text{K}_3\text{Fe}(\text{CN})_6$ )،  $4$ -آمینوآنتی پیرین ( $\text{C}_{11}\text{H}_{13}\text{N}_6\text{O}$ )، اسید سولفوریک ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )، سدیم هیدروکسید ( $\text{NaOH}$ )، پتاسیم دی هیدروژن فسفات ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ )، دی پتاسیم هیدروژن فسفات ( $\text{K}_2\text{HPO}_4$ )، سیلیکات سدیم ( $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ )، اسید کلریدریک ( $\text{HCl}$ )، اتانول ( $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ ) و استون ( $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$ ) همگی از شرکت مرک آلمان تهیه و مصرف شد.

### سنتز سیلیکا آئروژل:

محلول  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  اشباع با حل نمودن  $40 \text{ g}$   $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  در  $100 \text{ mL}$  آب مقطر تهیه شد. رسوب حل نشده از  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  و باقیمانده در ته بالن به روش فیلتراسیون از محلول اشباع

## آزمایش‌های جذب

غلظت‌های مورد نیاز از فنل با محلول استوک فنل (g ۱، فنل در ۱۰۰۰ mL آب مقطر) تهیه شد. آزمایش‌های جذب در سیستم ناپیوسته، در دمای محیط ( $20 \pm 2^\circ\text{C}$ ) و در بشرهای حاوی ۲۵۰ mL نمونه انجام شد. تنظیم pH توسط  $\text{H}_2\text{SO}_4$  و NaOH با غلظت ۰/۱ M صورت گرفت. در طول انجام واکنش جذب، بشرهای حاوی نمونه توسط همزن مغناطیسی و مگنت هم زده شد. بعد از اتمام زمان واکنش، جاذب توسط سانتریفیوژ ۵۰۰۰ rpm به مدت ۵ min از محلول جدا و از مایع رویی محلول جهت اندازه‌گیری مقدار فنل نمونه‌گیری شد. مقادیر جذب فنل باقیمانده در نمونه‌ها طبق دستورالعمل کتاب Standard Method 5530D با روش نورسنجی مستقیم توسط دستگاه اسپکتروفتومتر UV-Vis در طول موج ۵۰۰ nm اندازه‌گیری شد (۱۹). تاثیر زمان تماس، pH اولیه محلول، دوز جاذب، غلظت اولیه فنل به عنوان فاکتورهای موثر بر فرایند جذب در کارایی حذف مورد بررسی قرار گرفت. به منظور بررسی تاثیر زمان تماس و تعیین زمان ماند بهینه، ۰/۵ g سیلیکا آئروژل در یک بشر حاوی فنل با غلظت ۱۰۰ mg/L و با pH برابر ۷ وارد شد. نمونه برداری در بازه زمانی ۵ تا ۱۸۰ min انجام و در نهایت مقدار فنل باقیمانده در نمونه اندازه‌گیری شد. در پایان؛ زمان ماند بهینه تعیین و ادامه آزمایشات جذب در زمان بهینه انجام شد. برای تعیین pH بهینه محلول، مقدار ۰/۵ g سیلیکا آئروژل در بشرهای حاوی غلظت ۱۰۰ mg/L فنل و با pH های ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱ افزوده و فرایند جذب برای نمونه‌ها تا زمان ماند بهینه ادامه یافت، در نهایت میزان فنل باقیمانده در محلول اندازه‌گیری شد. جهت تعیین تاثیر تغییرات دوز جاذب در فرایند جذب، دوزهای مختلف سیلیکا آئروژل (۰/۱، ۰/۲، ۰/۳، ۰/۴، ۰/۵، ۰/۶، ۰/۷، ۰/۸، ۰/۹، ۱، ۱/۵ و ۲ g) در بشرهای جداگانه حاوی فنل با غلظت ۱۰۰ mg/L و با pH اولیه برابر ۷ وارد شد. در پایان ۶۰ min نمونه برداری صورت و میزان باقیمانده فنل در نمونه‌ها تعیین شد. به منظور تعیین تاثیر تغییرات غلظت فنل

در جذب، ۰/۵ g سیلیکا آئروژل در بشرهای جداگانه حاوی غلظت‌های مختلف فنل (۲، ۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۵۰، ۷۵، ۱۰۰، ۱۵۰، ۲۰۰، ۳۰۰ و ۵۰۰ mg/L) و با pH برابر ۷ وارد شد. در پایان ۶۰ min نمونه برداری انجام و میزان فنل باقیمانده تعیین شد، pHzpc سیلیکا آئروژل سنتز شده طبق روش Su و همکاران (۲۰) اندازه‌گیری شد.

## محاسبات بازده جذب و ظرفیت جذب

برای محاسبه بازده حذف و ظرفیت جذب تعادلی به ترتیب از معادله ۱ و ۲ استفاده شد (۲۱).

$$E = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

$$q_e = \frac{C_0 - C_e}{m} \times V \quad (2)$$

که در آن؛ E بازده جذب بر حسب %،  $C_0$  غلظت اولیه فنل بر حسب mg/L،  $C_e$  غلظت تعادلی فنل بر حسب mg/L،  $q_e$  ظرفیت جذب تعادلی بر حسب mg/g، m جرم جاذب بر حسب g، V حجم محلول بر حسب L.

## بررسی سینتیک و ایزوترم جذب

## سینتیک جذب

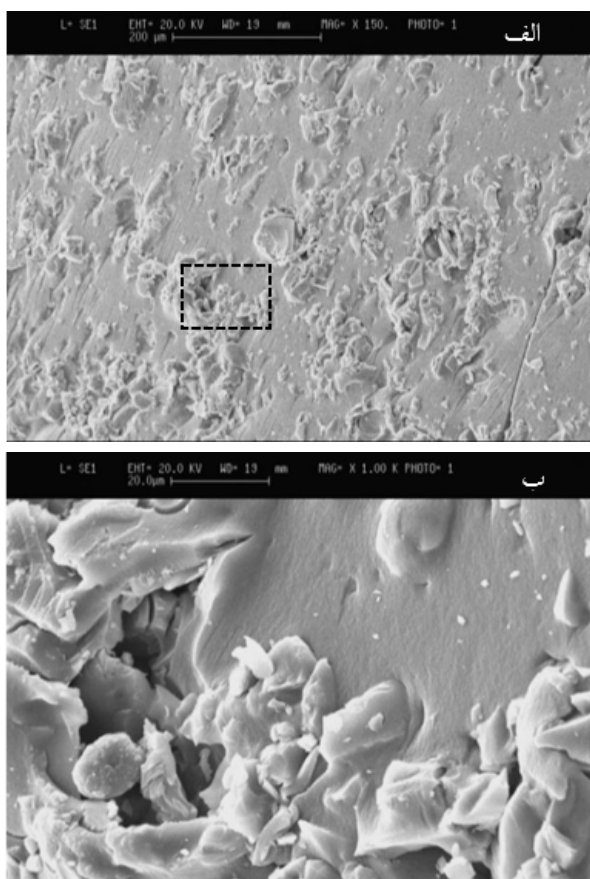
برای تعیین ضرایب سینتیک جذب فنل بر سیلیکا آئروژل از مدل سینتیک شبه درجه اول و شبه درجه دوم استفاده شد. برای این منظور از هشت عدد بشر حاوی ۲۵۰ mL نمونه استفاده شد، غلظت فنل و مقدار جاذب در داخل بشرها به ترتیب برابر ۱۰۰ mg/L و ۰/۵ g بود. بعد از تنظیم pH نمونه‌ها روی ۷، نمونه‌ها با سرعت ۲۵۰ rpm هم زده شد، سپس از بشرهای شماره یک تا هشت به ترتیب در زمان‌های ۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۵، ۶۰، ۱۲۰ و ۱۸۰ min نمونه‌گیری انجام و مقدار فنل باقیمانده اندازه‌گیری شد. معادله ۳ سینتیک شبه درجه اول را به صورت معادله خطی نشان می‌دهد (۲۱).

$$\ln(q_1 - q_t) = \ln q_1 - K_1 p t \quad (3)$$

برای انتخاب سینتیک و ایزوترم جذب منطبق بر جذب فنل بر سیلیکا آتروژل از ضریب همبستگی ( $R^2$ ) استفاده شد.

### یافته‌ها

بررسی ویژگی سیلیکا آتروژل سنتز شده و تایید جذب فنل: تصاویر SEM مربوط به سیلیکا آتروژل سنتز شده در شکل ۱ قسمت الف؛ با بزرگنمایی ۱۵۰ و قسمت ب؛ با بزرگنمایی ۱۰۰۰ برابر نشان داده شده است، تصاویر سطح سیلیکا آتروژل سنتز شده حاکی از وجود ساختار متخلخل و شبکه‌ایی در مقیاس میکرو با توزیع مناسب در کل سطح است. طیف XRD سیلیکا آتروژل سنتز شده در شکل ۲ حاکی از ساختار نامرتب و غیر بلورین است.



شکل ۱- تصاویر SEM سیلیکا آتروژل سنتز شده (الف-بزرگنمایی ۱۵۰×، ب-بزرگنمایی ۱۰۰۰×)

معادله خطی سینتیک شبه درجه دوم در معادله ۴ نشان داده شده است (۲۱):

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{(K_2p q_2^2)} + \frac{t}{q_2} \quad (4)$$

در این معادله:  $q_1$  مقدار فنل جذب شده در لحظه  $t$  بر حسب  $mg/g$  و  $q_2$  مقدار فنل جذب شده در زمان تعادل بر حسب  $mg/g$  به ترتیب در معادله سینتیک شبه درجه اول و شبه درجه دوم،  $K_{1p}$  ثابت جذب سینتیک شبه درجه اول بر حسب  $min^{-1}$  و  $K_{2p}$  ثابت جذب سینتیک شبه درجه دوم بر حسب  $t, g/mg.min$  بر حسب  $min$ .

### ایزوترم جذب

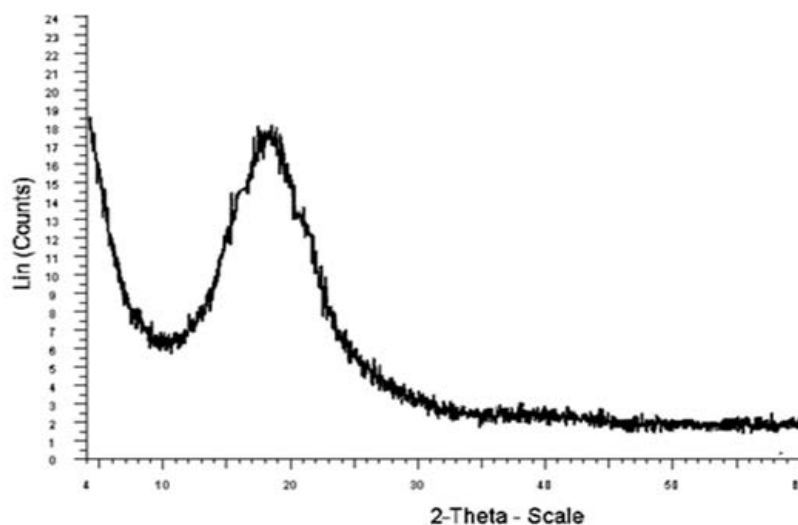
برای تعیین ضرایب ایزوترمی جذب فنل بر سیلیکا آتروژل از مدل‌های ایزوترم لانگمویر و فروندلیچ استفاده شد. دوازده عدد بشر با حجم نمونه برابر  $250 mL$  با  $pH$  برابر ۷ آماده شد، به تمام نمونه‌ها دوز جاذب برابر  $0.5 g$  وارد شد، غلظت فنل به ترتیب در این ۱۲ بشر برابر ۲، ۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۵۰، ۷۵، ۱۰۰، ۱۵۰، ۲۰۰، ۳۰۰ و  $500 mg/L$  بود، زمان انجام فرایند جذب  $60 min$  در نظر گرفته شد، در پایان این زمان میزان فنل باقیمانده در محلول اندازه‌گیری شد (۲۱).

معادله ۵ معادله خطی ایزوترم لانگمویر را نشان می‌دهد (۲۱):

$$\frac{C_e}{q_e} = \left( \frac{1}{K_1 q_m} \right) + \left( \frac{C_e}{q_m} \right) \quad (5)$$

که در این معادله؛  $q_e$  مقدار فنل جذب شده به ازاء واحد جرم جاذب  $mg/g$ ،  $q_m$  ماکزیمم مقدار فنل جذب شده  $mg/g$ ،  $K_1$  ثابت لانگمویر مرتبط با انرژی جذب بر حسب  $L/mg$ ،  $C_e$  غلظت تعادلی فنل بر حسب  $mg/L$  معادله خطی ایزوترم فروندلیچ در معادله ۶ نشان داده شده است؛ که در این معادله  $K_f$  و  $n$  ثابت‌های ایزوترم فروندلیچ هستند.

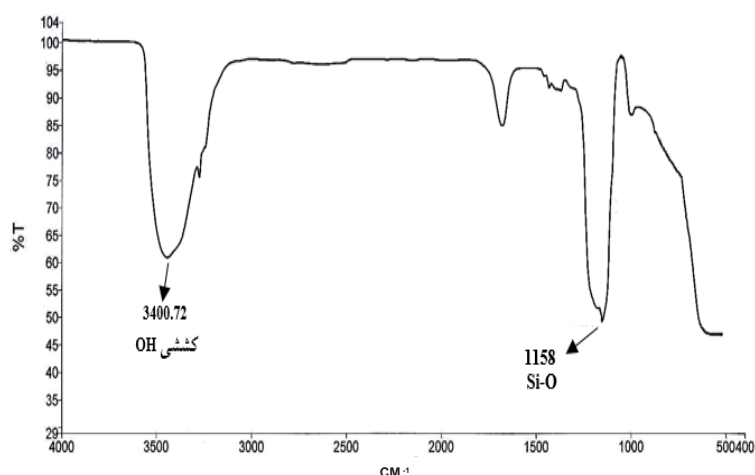
$$Lnq_e = LnK_f + n^{-1}LnC_e \quad (6)$$



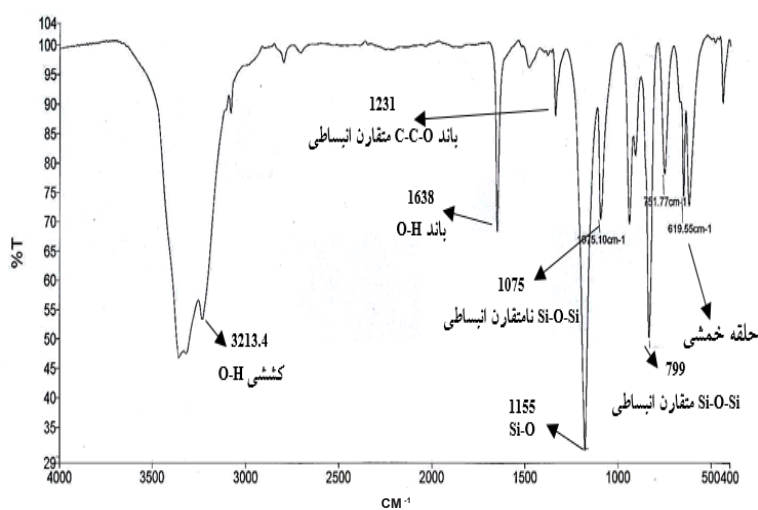
شکل ۲- طیف XRD سیلیکا آئروژل سنتز شده

نشان دهنده وجود گروه هیدروکسیل و تشکیل ساختار بلوری آئروژل است، در طیف NMR بعد از پیک مربوط به بخش آروماتیک فنل پیک موجود در جایگاه  $4/7 \text{ ppm}$  با انتگرال ۱ نشان دهنده وجود گروه هیدروکسیل فنلی و پیک موجود در ناحیه  $7/2 \text{ ppm}$  با انتگرال ۵ نشان دهنده وجود حلقه آروماتیک فنلی و در نتیجه جذب فنل بر روی ساختار بلوری آئروژل است، نتایج در شکل ۶ قابل مشاهده است. همچنین pHzpc سیلیکا آئروژل سنتز شده  $6/9$  بدست آمد.

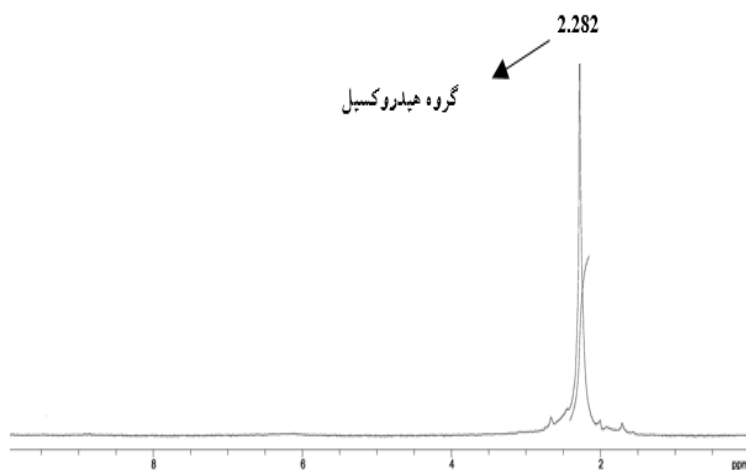
طیف FTIR سیلیکا آئروژل سنتز شده قبل و بعد از جذب فنل به ترتیب در شکل های ۳ و ۴ نشان داده شده است. همانطور که از شکل ۳ مشاهده می گردد، گروه عاملی شاخص در ساختار سیلیکا آئروژل سنتز شده از سیلیکات سدیم قبل از جذب فنل در جایگاه  $1158 \text{ cm}^{-1}$  و مربوط به پیوند Si-O است. بعد از جذب فنل باندهای جدیدی در جایگاه  $751$  و  $1231 \text{ cm}^{-1}$  ایجاد شد، که نوع باندها در شکل ۴ نشان داده شده است. شکل ۵ طیف NMR سیلیکا آئروژل قبل از جذب فنل را نشان می دهد، در این حالت پیک موجود در جایگاه  $2/2 \text{ ppm}$  با انتگرال ۱



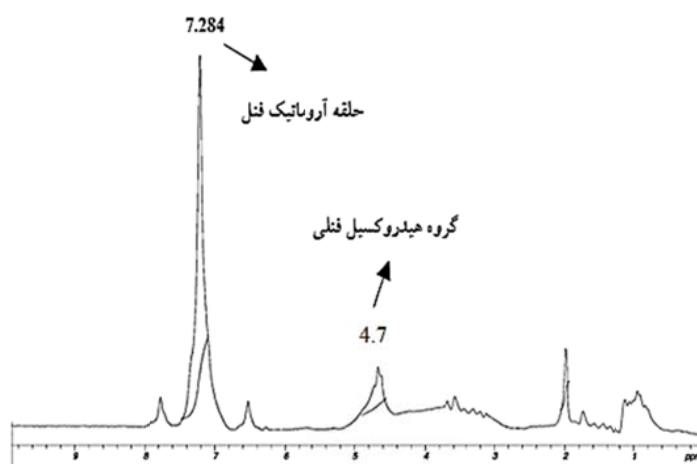
شکل ۳- طیف FTIR سیلیکا آئروژل قبل از جذب فنل



شکل ۴- طیف FTIR سیلیکا آئروژل بعد از جذب فنل (فنل برابر  $100 \text{ mg/L}$ ،  $\text{pH}$  برابر ۷، دوز جاذب برابر  $0.5 \text{ g}$ ، زمان واکنش برابر  $60 \text{ min}$ )



شکل ۵- طیف NMR سیلیکا آئروژل قبل از جذب فنل

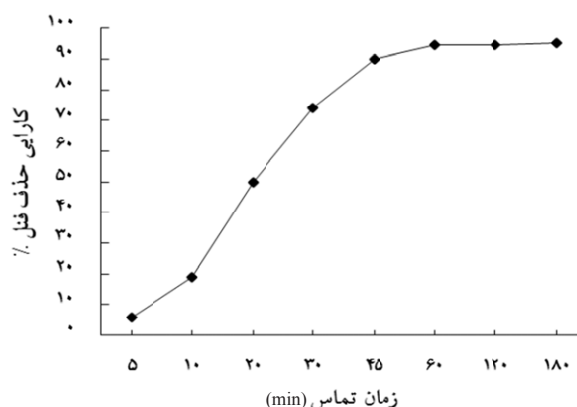


شکل ۶- طیف NMR سیلیکا آئروژل بعد از جذب فنل (فنل برابر  $100 \text{ mg/L}$ ،  $\text{pH}$  برابر ۷، دوز جاذب برابر  $0.5 \text{ g}$ ، زمان واکنش برابر  $60 \text{ min}$ )

### آزمایش های جذب

#### تاثیر زمان فرایند بر جذب فنل در سیلیکا آتروژل:

مطابق با نمودار ۱ افزایش زمان ماند در محدوده ۵ تا ۱۸۰ min ۱۸۰ سبب افزایش کارایی سیلیکا آتروژل در حذف فنل می گردد، بر اساس نتایج بدست آمده کارایی جذب فنل در پایان ۶۰ min از فرایند به حدود ۹۴/۵٪ رسید که در مقایسه با کارایی مشاهده شده در پایان ۱۸۰ min که تقریباً برابر ۹۵٪ بود، تغییر چندانی نداشته است؛ لذا زمان تعادل برای فرایند ۶۰ min در نظر گرفته شد.



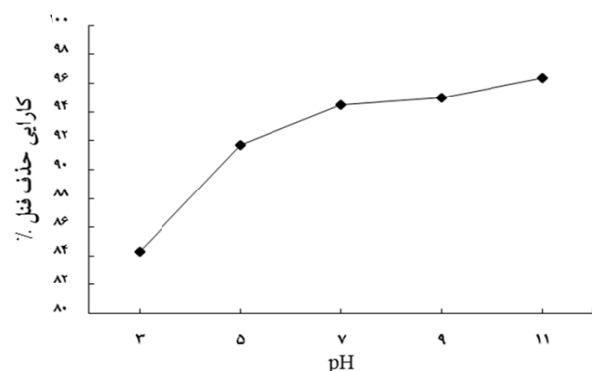
نمودار ۱- تاثیر زمان فرایند بر کارایی جذب فنل (مقدار جاذب ۰/۵ g، pH برابر ۷، فنل برابر ۱۰۰ mg/L)

#### تاثیر pH اولیه محلول بر جذب فنل:

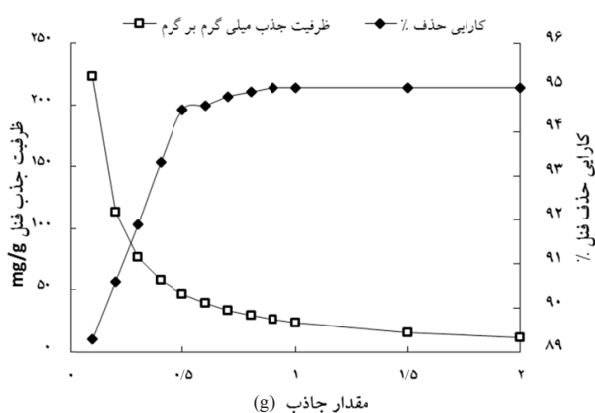
نتایج این بخش از مطالعه در نمودار ۲ قابل مشاهده است، بعد از ۶۰ min از فرایند، میزان جذب فنل بر سیلیکا آتروژل با افزایش pH اولیه محلول از ۳ به ۱۱ افزایش پیدا کرد. به طوری که کارایی حذف فنل در pH برابر ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱ به ترتیب ۸۴/۳، ۹۱/۷، ۹۴/۵، ۹۵ و ۹۶/۴٪ بدست آمد. با توجه به ملاحظات بهره برداری و اقتصادی pH بهینه جذب ۷ در نظر گرفته شد.

تاثیر تغییرات مقدار جاذب بر جذب فنل در سیلیکا آتروژل: تاثیر تغییرات مقدار جاذب در میزان کارایی حذف فنل در نمودار ۳ نشان داده شده است. با افزایش مقدار جاذب از ۰/۱ تا ۰/۵ g کارایی حذف فنل را از ۸۹/۳٪ به ۹۴/۵٪ افزایش

داد. اما با افزایش مقدار جاذب از ۰/۵ تا ۲ g کارایی در نهایت به ۹۵٪ رسید. این در حالی بود که افزایش میزان جاذب به همان نسبت، سبب کاهش ظرفیت جذب فنل بر سیلیکا آتروژل شد. مقادیر ظرفیت جذب در نمودار قابل مشاهده است.



نمودار ۲- تاثیر pH محلول بر کارایی جذب فنل (فنل برابر ۱۰۰ mg/L، مقدار جاذب برابر ۰/۵ g، زمان واکنش برابر ۶۰ min)

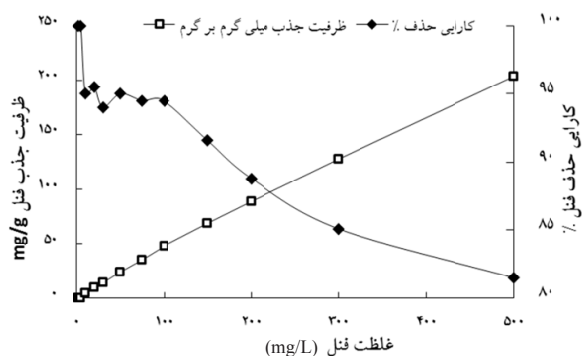


نمودار ۳- تاثیر مقدار جاذب بر کارایی و ظرفیت جذب فنل (فنل برابر ۱۰۰ mg/L، pH برابر ۷، زمان واکنش برابر ۶۰ min)

تاثیر تغییرات غلظت فنل بر جذب فنل در سیلیکا آتروژل: افزایش غلظت فنل از ۲ به ۱۰۰ mg/L، کارایی حذف را از ۱۰۰ به ۹۴/۵٪ کاهش داد. افزایش بیشتر غلظت فنل از ۱۰۰ به ۵۰۰ mg/L کارایی را تا حدود ۸۱/۵٪ کاهش داد. نمودار ۴ نتایج این بخش از مطالعه را به نشان می دهد.

### بحث

در مطالعه‌ای که Pouredal و همکاران (۲۲) در زمینه اصلاح سیلیکا آئروژل با ماده اولیه  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  و کاربرد آن در جذب یون‌های  $\text{Cu}^{2+}$ ،  $\text{Cd}^{2+}$  و  $\text{Pb}^{2+}$  انجام دادند، آنالیز طیف XRD نشان داد سیلیکا آئروژل تولیدی فاقد شکل مشخص (amorphous) و غیر بلوری است. Shao و همکاران (۲۳) در مطالعه خود سیلیکا آئروژل را از سدیم سیلیکات تهیه کرد، در طیف FTIR سیلیکا آئروژل جایگاه  $1080$  و  $800\text{ cm}^{-1}$  به ترتیب مربوط به  $\text{Si-O-Si}$  نامتقارن و متقارن انبساطی بوده است، پیک بزرگ جایگاه  $3400\text{ cm}^{-1}$  مربوط به  $\text{Si-OH}$  و  $\text{H-OH}$  ارتعاشی بوده است. در مطالعه Su و همکاران (۲۱) از ارگانومونت موریلونیت برای جذب فنل استفاده شد، طیف FTIR ارگانو مونت موریلونیت بعد از جذب فنل حاکی از ایجاد باندهای جدید در جایگاه  $1600$ ،  $1231$  و  $691\text{ cm}^{-1}$  بود که به ترتیب شامل  $\text{C=C}$  حلقه آروماتیک کششی،  $\text{C-C-O}$  متقارن کششی و حلقه خمشی بود. در پژوهش Gallo و همکاران (۲۴) در طیف NMR ترکیبات فنلی؛ برای  $2-6$  دی آیدوفنل پیک مربوط به هیدروژن‌های حلقه آروماتیک در ناحیه  $6/3$  ppm تا  $7/6$  ppm و پیک مربوط به هیدروژن هیدروکسیل در  $5/7$  ppm



نمودار ۴- تاثیر تغییرات غلظت فنل بر کارایی و ظرفیت جذب فنل (مقدار جاذب  $0/5\text{ g}$ ،  $\text{pH}$  برابر  $7$ ، زمان واکنش برابر  $60\text{ min}$ )

سینتیک و ایزوترم جذب فنل بر سیلیکا آئروژل سنتز شده: ضرایب سینتیکی این دو مطالعه در جدول ۲ نشان داده شده است، طبق نتایج سینتیک جذب فنل از مدل سینتیک شبه درجه دوم با ضریب همبستگی  $0/9489$  تبعیت می‌کند. همچنین نتایج مربوط به بررسی مدل ایزوترم منطبق با جذب فنل بر سیلیکا آئروژل در جدول ۳ نشان داده شده است، بر این اساس جذب فنل بر سیلیکا آئروژل از مدل ایزوترم فروندلیچ با ضریب همبستگی  $0/9529$  پیروی می‌کند، همچنین طبق نتایج جدول ۳ حداکثر ظرفیت جذب فنل بر سیلیکا آئروژل برابر  $3\text{ mg/g}$  بدست آمد.

جدول ۲- ضرایب سینتیکی جذب فنل بر سیلیکا آئروژل سنتز شده (مقدار جاذب  $0/5\text{ g}$ ،  $\text{pH}$  برابر  $7$ ، فنل برابر  $100\text{ mg/L}$ )

| مدل شبه درجه دوم |           |         | مدل شبه درجه اول |          |         |
|------------------|-----------|---------|------------------|----------|---------|
| $R^2$            | $K_{tp}$  | $q_2$   | $R^2$            | $K_{1p}$ | $q_1$   |
| $0/9489$         | $0/00078$ | $55/86$ | $0/5936$         | $0/0104$ | $33/67$ |

جدول ۳- ضرایب ایزوترمیک جذب فنل بر سیلیکا آئروژل سنتز شده (زمان  $60\text{ min}$ ،  $\text{pH}$  برابر  $7$ ، فنل برابر  $100\text{ mg/L}$ )

| مدل فروندلیچ |        |        | مدل لانگمویر |         |         |
|--------------|--------|--------|--------------|---------|---------|
| $R^2$        | $K_f$  | $1/n$  | $R^2$        | $K_L$   | $q_m$   |
| $0/9529$     | $1/69$ | $2/41$ | $0/7742$     | $0/077$ | $47/39$ |

بهینه برای جذب فنل را ۱۱ بدست آورد، طبق نتایج حاصل از این مطالعه در این pH فنل بیشتر به صورت آنیون فنل‌ات در فاز محلول حضور دارد که نسبت به سایر اشکال شیمیایی فنل راحت‌تر از محیط آبی توسط جاذب جدا می‌گردد. از سوی دیگر pH نقطه صفر بار (pHzpc) اطلاعاتی در مورد بار الکتریکی سطح جاذب مشخص می‌کند، در این مطالعه pHzpc سیلیکا آئروژل سنتز شده ۶/۹ بدست آمد، بررسی‌ها نشان می‌دهد در pH کمتر از pH<sub>ZPC</sub> بار الکتریکی سطحی غالب در سطح جاذب‌ها به صورت بار مثبت است و از آنجا که در محلول‌های اسیدی شکل مولکولی ترکیبات فنلی غالب است لذا کارایی سیلیکا آئروژل کاهش می‌یابد (۲۱).

نمودار ۳ افزایش کارایی جذب فنل با افزایش دوز سیلیکا آئروژل را نشان می‌دهد، افزایش مقدار جاذب با افزایش میزان جاذب مربوط به میزان مکان‌های جاذب بیشتر و مساحت سطح بیشتر در مقادیر بالاتر جاذب است، در دوز کم جاذب، سطح جاذب به سرعت با یون‌ها و مولکول‌های فنل اشباع شده و میزان فنل باقیمانده در محلول افزایش می‌یابد (۳۱). هرچند با افزایش میزان جاذب، فنل باقیمانده در محلول مقادیر کمتری را نشان می‌دهد اما محاسبات نشان داد با افزایش میزان جاذب مقدار آلاینده جذب شده در واحد جرم جاذب کاهش می‌یابد. علت این پدیده به دلیل غیر اشباع ماندن برخی از نقاط فعال موجود در سطح جاذب و عدم استفاده کامل از ظرفیت جذب است (۳۲). Meena و همکاران (۳۳) تحقیقی در زمینه حذف فلزات سنگین با استفاده از کربن آئروژل به عنوان جاذب انجام دادند، نتایج نشان داد با افزایش میزان جاذب تا ۵ g/L در pH بهینه برابر ۶، راندمان حذف بطور چشمگیری افزایش دارد و از مقادیر ۵ تا ۱۲ g/L کارایی حذف با روند افزایشی کم و تدریجی ادامه پیدا کرد.

نمودار ۴ نشان‌دهنده این حقیقت است که کارایی جذب به شدت تابعی از غلظت اولیه آلاینده در محلول است، افزایش غلظت آلاینده سبب کاهش کارایی جذب شده؛ این در حالیست که تاثیر افزایش غلظت آلاینده بر روند ظرفیت جذب

در ترکیب فنلی ۲-آیودوفنل پیک مربوط به هیدروژن‌های حلقه آروماتیک در ناحیه ppm ۶/۶ تا ppm ۷/۶ و پیک مربوط به هیدروژن هیدروکسیل در ppm ۵/۳ و در ترکیب فنلی ۴-کلرو-۲-دی آیودوفنل پیک مربوط به هیدروژن‌های حلقه آروماتیک در ناحیه ppm ۷/۶ و پیک مربوط به هیدروژن هیدروکسیل در ppm ۵/۷ مشاهده شد. مطابق با نمودار ۱ در ابتدای فرایند جذب به دلیل وجود سایت‌های خالی و آماده جذب، کارایی حذف افزایش می‌یابد اما با رسیدن به نقطه تعادل به دلیل اشغال شدن مکان‌های فعال جذب و تشکیل یک حالت رانش بین مولکول‌های فنل بین سطح و فاز محلول سرعت جذب کاهش و در نهایت به تعادل می‌رسد، به عبارت دیگر تعداد مولکول‌های جذب شده با تعداد مولکول‌های واجذب شده برابر می‌گردد، در این حالت فرایند جذب به حالت پایا (steady-state condition) رسیده است (۲۵). همچنین Khanahmadzadeh و همکاران (۲۶) برای حذف ۹۸٪ فنل با غلظت اولیه فنل ۵ mg/L بر نانو کامپوزیت سیلیکا آئروژل-کربن فعال؛ بهترین شرایط در زمان ۶۰ min، pH برابر ۲ و دوز جاذب ۱ g بدست آمد.

در میان پارامترهای تاثیرگذار بر جذب فنل‌ها توسط جاذب خاص، pH مهمترین فاکتور تاثیر گذار است، زیرا به طور مستقیم بر درجه یونیزاسیون ترکیبات فنلی و خصوصیات سطح جاذب اثر می‌گذارد (۲۷، ۲۸). از آنجا که pK<sub>a</sub> برای فنل ۹/۹ است، وقتی pH محلول بیشتر از pK<sub>a</sub> ترکیب فنلی باشد، اشکال یونیزه شده فنل در محلول با بار منفی غالب خواهند بود (۲۹). در مطالعه‌ای که Nava و همکاران (۳۰) بر جذب فنل در بتونیت اصلاح شده با سورفکتانت انجام داد، بهترین pH برای جذب، pH برابر ۱۱ انتخاب شد، چرا که در این شرایط فنل موجود در محلول بیشتر به صورت یون فنل‌ات (phenolate) حضور داشته که در مقایسه با مولکول فنل بهتر جذب می‌شود. در همین رابطه Su و همکاران (۲۱) در مطالعه با عنوان جذب فنل با ارگانو مونت موریلونیت، pH

با سایت‌های فعال جاذب، در نهایت میزان ظرفیت جذب حداکثری در غلظت اولیه فنل  $290 \text{ mg/L}$  برابر  $142 \text{ mg/g}$  بدست آمد.

### نتیجه گیری

در این مطالعه به بررسی کارایی سیلیکا آئروژل سنتز شده از سیلیکات سدیم در حذف فنل از محلول‌های آبی پرداخته شد. آنالیزهای SEM، XRD، سیلیکا آئروژل سنتز شده وجود ساختار میکرو با بافت متخلخل - شبکه‌ای و غیر بلورین را نشان داد و طیف‌های FTIR، NMR، جذب فنل بر سیلیکا آئروژل را تایید نمود. افزایش pH در محدوده ۳ تا ۱۱ سبب افزایش کارایی حذف فنل گردید. افزایش میزان جاذب و غلظت اولیه فنل به ترتیب سبب افزایش و کاهش کارایی حذف فنل شد، این در حالی بود که افزایش میزان جاذب و غلظت اولیه فنل به ترتیب سبب کاهش و افزایش ظرفیت جذب فنل شد. مدل ایزوترم فروندلیچ و سینتیک شبه درجه دوم دارای بیشترین سازگاری با داده‌های جذب بود. بر اساس نتایج بدست آمده ظرفیت جذب حداکثری سیلیکا آئروژل برابر  $47/39 \text{ mg/g}$  بدست آمد، در pH برابر ۷ کارایی حذف با غلظت اولیه فنل برابر  $100 \text{ mg/L}$  و میزان جاذب  $0/5 \text{ g}$  در پایان  $60 \text{ min}$  از فرایند برابر  $94/5\%$  مشاهده شد. به طور حتم پارامترهای دیگری بر این مطالعه تاثیر داشت که به دلایلی خاص امکان مطالعه آنها مقدور نشد لذا زمانی کارایی این جاذب به خوبی مشخص می‌گردد که برای این جاذب ستون جذب طراحی و به صورت جریان پیوسته، پساب یک صنعت خاص مورد تصفیه قرار گیرد و پارامترهایی چون دما، درجه آب دوستی یا آب گریزی سیلیکا آئروژل و اثر مداخله گرها نیز بررسی گردد.

متفاوت بوده و با افزایش غلظت آلاینده، ظرفیت جذب افزایش می‌یابد. در غلظت‌های کم آلاینده و با مقادیر ثابت سطح فعال و سایت‌های جذب موجود در جاذب، کارایی جذب افزایش می‌یابد، با افزایش غلظت آلاینده رقابت برای جذب شدن افزایش و لذا کارایی جذب کاهش می‌یابد، همچنین افزایش میزان ظرفیت جذب با افزایش غلظت اولیه آلاینده به دلیل ایجاد گرادیان غلظت است، Aksu و همکاران (۳۴) در مطالعه‌ای تاثیر غلظت اولیه فنل و کروم را بر میزان جذب روی لجن فرایند بیهوای خشک شده بررسی کردند، مشاهده کردند که افزایش غلظت از  $50$  به  $500 \text{ mg/L}$  از هر یک از مواد فنل و کروم سبب کاهش راندمان حذف و افزایش ظرفیت جذب آنها می‌گردد.

مطابق جدول شماره ۳ جذب فنل بر سیلیکا آئروژل سنتزی از مدل ایزوترم فروندلیچ پیروی می‌کند همچنین مقدار  $q_{\max}$  برابر  $47/39 \text{ mg/g}$  بدست آمد، همچنین سینتیک فرایند از مدل سینتیک شبه درجه دوم با ضریب همبستگی  $0/9489$  تبعیت می‌کند. در مطالعه Yousef و همکاران (۹) در زمینه جذب فنل بر ژئولیت طبیعی ایزوترم و سینتیک جذب منطبق بر فرایند به ترتیب ایزوترم فروندلیچ و سینتیک شبه درجه دوم بدست آمد؛ طبق نتایج بدست آمده ایزوترم لانگمیر فرض می‌کند جذب تک لایه است و سطح جاذب شامل مکان‌های با انرژی جذب ثابت است در مقابل ایزوترم فروندلیچ فرض می‌کند انرژی سطح جاذب هتروژن است و با افزایش درجه اشغال سایت‌های جذب قدرت اتصال کاهش می‌یابد. Guotong و همکاران (۳۵) به منظور جذب فنل، گرانول‌های سیلیکا آئروژل آب گریز را سنتز و مورد مطالعه قرار دادند، طبق نتایج بدست آمده ایزوترم فروندلیچ و سینتیک شبه درجه دوم بیشترین تطبیق با نتایج جذب را داشتند، براساس این نتایج جذب فنل بر گرانول سیلیکا آئروژل دارای سه مرحله است: انتقال فنل از مرز فیلم به سطح خارجی جاذب (film diffusion)، انتقال فنل از سطح به سایت‌های فعال داخل ذره و در نهایت جذب فنل

## منابع

1. Hashemi F, Godini H, Shams Khorramabadi G, Mansouri L. Assessing Performance of Walnut Green Hull Adsorbent in Removal of Phenol from Aqueous Solutions. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2014;7(2):265-76 (in Persian).
2. Kakavandi B, Mokhtari M, Rezaee Kalantari R, Ahmadi E, Rastkari N, Fatehi M, et al. Synthesis and efficiency evaluation of magnetic nanocomposite of activated carbon- zero valent iron/silver (PAC-Fe<sup>0</sup>/Ag) in phenol removal from aqueous solution. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2014;7(3):399-412 (in Persian).
3. Kermani M, Gholami M, Gholizade A, Farzadkia M, Esrafil A. Effectiveness of Rice Husk Ash in Removal of Phenolic Compounds from Aqueous Solutions, Equilibrium and Kinetics Studies. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2012;5(1):107-20 (in Persian).
4. El-Naas MH, Al-Zuhair S, Makhlof S. Continuous biodegradation of phenol in a spouted bed bioreactor (SBBR). *Chemical Engineering Journal*. 2010;160(2):565-70.
5. Praveen P, Nguyen DTT, Loh K-C. Biodegradation of phenol from saline wastewater using forward osmotic hollow fiber membrane bioreactor coupled chemostat. *Biochemical Engineering Journal*. 2015;94:125-33.
6. Fernández I, Suárez-Ojeda ME, Pérez J, Carrera J. Aerobic biodegradation of a mixture of monosubstituted phenols in a sequencing batch reactor. *Journal of Hazardous Materials*. 2013;260:563-68.
7. Liu H, Yu QJ, Wang G, Ye F, Cong Y. Biodegradation of phenol at high concentration by a novel yeast *Trichosporon montevidense* PHE1. *Process Biochemistry*. 2011;46(8):1678-81.
8. Naddafi K, Nabizadeh Nodehi R, Jahangiri rad M. Removal of Reactive Blue 29 Dye from Water by Single-Wall Carbon Nanotubes. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2011;3(4):359-68 (in Persian).
9. Yousef RI, El-Eswed B, Ala'a H. Adsorption characteristics of natural zeolites as solid adsorbents for phenol removal from aqueous solutions: kinetics, mechanism, and thermodynamics studies. *Chemical Engineering Journal*. 2011;171(3):1143-49.
10. Li J-M, Meng X-G, Hu C-W, Du J. Adsorption of phenol, p-chlorophenol and p-nitrophenol onto functional chitosan. *Bioresource Technology*. 2009;100(3):1168-73.
11. Štandeker S, Novak Z, Knez Ž. Adsorption of toxic organic compounds from water with hydrophobic silica aerogels. *Journal of Colloid and Interface Science*. 2007;310(2):362-68.
12. Perdigoto MLN, Martins RC, Rocha N, Quina MJ, Gando-Ferreira L, Patrício R, et al. Application of hydrophobic silica based aerogels and xerogels for removal of toxic organic compounds from aqueous solutions. *Journal of Colloid and Interface Science*. 2012;380(1):134-40.
13. Sarawade PB, Kim J-K, Hilonga A, Quang DV, Jeon SJ, Kim HT. Synthesis of sodium silicate-based hydrophilic silica aerogel beads with superior properties: Effect of heat-treatment. *Journal of Non-Crystalline Solids*. 2011;357(10):2156-62.
14. Venkateswara Rao A, Hegde ND, Hirashima H. Absorption and desorption of organic liquids in elastic superhydrophobic silica aerogels. *Journal of Colloid and Interface Science*. 2007;305(1):124-32.
15. Štandeker S, Novak Z, Knez Ž. Removal of BTEX vapours from waste gas streams using silica aerogels of different hydrophobicity. *Journal of Hazardous Materials*. 2009;165(1-3):1114-8.
16. Liu H, Sha W, Cooper AT, Fan M. Preparation and characterization of a novel silica aerogel as adsorbent for toxic organic compounds. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 2009;347(1-3):38-44.
17. Gurav JL, Jung I-K, Park H-H, Kang ES, Nadargi DY. Silica aerogel: synthesis and applications. *Journal of Nanomaterials*. 2010; doi:10.1155/2010/409310.
18. Błaszczyszki T, Ślosarczyk A, Morawski M. Synthesis of Silica Aerogel by Supercritical Drying Method. *Procedia Engineering*. 2013;57:200-206.
19. APHA, AWWA, WEF. *Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater*. 21st ed. Washington DC: American Public Health Association; 2005.

20. Su J, Huang H-G, Jin X-Y, Lu X-Q, Chen Z-L. Synthesis, characterization and kinetic of a surfactant-modified bentonite used to remove As(III) and As(V) from aqueous solution. *Journal of Hazardous Materials*. 2011;185(1):63-70.
21. Su J, Lin H-F, Wang Q-P, Xie Z-M, Chen Z-L. Adsorption of phenol from aqueous solutions by organomontmorillonite. *Desalination*. 2011;269(1-3):163-69.
22. Pouretedal H, Kazemi M. Characterization of modified silica aerogel using sodium silicate precursor and its application as adsorbent of Cu<sup>2+</sup>, Cd<sup>2+</sup>, and Pb<sup>2+</sup> ions. *International Journal of Industrial Chemistry*. 2012;3(1):1-8.
23. Shao Z, Luo F, Cheng X, Zhang Y. Superhydrophobic sodium silicate based silica aerogel prepared by ambient pressure drying. *Materials Chemistry and Physics*. 2013;141(1):570-75.
24. Gallo RDC, Gebara KS, Muzzi RM, Raminelli C. Efficient and selective iodination of phenols promoted by iodine and hydrogen peroxide in water. *Journal of the Brazilian Chemical Society*. 2010;21:770-74.
25. Bhatnagar A. Removal of bromophenols from water using industrial wastes as low cost adsorbents. *Journal of Hazardous Materials*. 2007;139(1):93-102.
26. Khanahmadzadeh S, Khorshidi N, Rabbani M, Khezri B. Removal of phenol in aqueous solutions by silica aerogel-activated carbon nano composite. *Journal of Applied Environmental and Biological Sciences*. 2012;2(7):281-86.
27. Aksu Z, Yener J. Investigation of the biosorption of phenol and monochlorinated phenols on the dried activated sludge. *Process Biochemistry*. 1998;33(6):649-55.
28. Lu X, Zhang X, Qu F, Gu X. Study on adsorption performance of activated sludge to chloro-aromatic-compound in biological treatment process. *Environmental Chemistry*. 1998;33(6):649-55.
29. Gao R, Wang J. Effects of pH and temperature on isotherm parameters of chlorophenols biosorption to anaerobic granular sludge. *Journal of Hazardous Materials*. 2007;145(3):398-403.
30. Diaz-Nava M, Olguin M, Solache-Ríos M. Adsorption of phenol onto surfactants modified bentonite. *Journal of Inclusion Phenomena and Macrocyclic Chemistry*. 2012;74(1-4):67-75.
31. Hu B, Luo H. Adsorption of hexavalent chromium onto montmorillonite modified with hydroxyaluminum and cetyltrimethylammonium bromide. *Applied Surface Science*. 2010;257(3):769-75.
32. Sulak M, Demirbas E, Kobya M. Removal of Astatrazon Yellow 7GL from aqueous solutions by adsorption onto wheat bran. *Bioresource Technology*. 2007;98(13):2590-98.
33. Meena AK, Mishra GK, Rai PK, Rajagopal C, Nagar PN. Removal of heavy metal ions from aqueous solutions using carbon aerogel as an adsorbent. *Journal of Hazardous Materials*. 2005;122(1-2):161-70.
34. Aksu Z, Akpınar D. Competitive biosorption of phenol and chromium(VI) from binary mixtures onto dried anaerobic activated sludge. *Biochemical Engineering Journal*. 2001;7(3):183-93.
35. Qin G, Yao Y, Wei W, Zhang T. Preparation of hydrophobic granular silica aerogels and adsorption of phenol from water. *Applied Surface Science*. 2013;280:806-11.



Available online: <http://ijhe.tums.ac.ir>

Original Article



## Performance Evolution of Silica Aerogel Synthesized from Sodium Silicate in the Adsorption of Phenol from Aqueous Solutions

AR Rahmani<sup>1</sup>, F Nazemi<sup>2</sup>, F Barjasteh Askari<sup>3</sup>, H Almasi<sup>4</sup>, N Shabanloo<sup>5</sup>, A Shabanloo<sup>6\*</sup>

<sup>1</sup> Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

<sup>2</sup> Food and drug Laboratory, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

<sup>3</sup> Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Torbat Heydariyeh University of Medical Sciences, Torbat Heydariyeh, Iran.

<sup>4</sup> Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

<sup>5</sup> Department of Chemistry, Faculty of Theoretical Chemistry, Bu-Ali-Sina University, Hamadan, Iran

<sup>6</sup> Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Environmental Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

### ARTICLE INFORMATION:

**Received:** 2 November 2015

**Revised:** 16 January 2016

**Accepted:** 25 January 2016

**Published:** 6 June 2016

**Key words:** Silica aerogel, Phenol, Sol-Gel, Sodium silicate, Aqueous solutions

**\*Corresponding Author:**  
[shabanlo\\_a@yahoo.com](mailto:shabanlo_a@yahoo.com)

### ABSTRACT

**Background and Objectives:** Phenol is a toxic and persistent substance in the environment. The aim of this study was to evaluate the performance of silica aerogel synthesized using sodium silicate in the adsorption of phenol from aqueous solutions.

**Material and Method:** Silica aerogel was prepared by Sol-Gel process. The influence of effective variables such contact time, initial pH of the solution, adsorbent dose, and initial phenol concentration on the adsorption efficiency was investigated. The characterization of prepared silica aerogel and confirmation of phenol adsorption was determined through SEM, XRD analysis and NMR, FTIR spectra respectively. The adsorption data was evaluated via Langmuir and Freundlich isotherms and pseudo-first and pseudo-second-order kinetics.

**Results:** This research found that the phenol adsorption efficiency increased by increasing pH from 3 to 11, so that after 60 min, the absorption efficiency at the 100 mg/L initial phenol concentration and 0.5 g adsorbent obtained 84 and 96.4 % at pH 3 and 11, respectively. The SEM image and XRD pattern of synthesized silica aerogel confirmed the creation of porous and amorphous structure. After the phenol adsorption, the NMR and FTIR spectra of silica aerogel, confirmed the creation of new bands because of phenol molecule at the adsorbent structure. The adsorption of phenol was compatible with Freundlich isotherm and pseudo-second-order kinetic. The maximum absorption capacity ( $q_m$ ) obtained was 47.39 mg/g.

**Conclusion:** Silica aerogel as an adsorbent, due to special characteristics in the structure and usage, can be a promising treatment process for adsorption of toxic and persistent substances.

Please cite this article as: Rahmani AR, Nazemi F, Barjasteh Askari F, Almasi H, Shabanloo N, Shabanloo A. Performance evolution of silica aerogel synthesized from sodium silicate in the adsorption of phenol from aqueous solutions. Iranian Journal of Health and Environment. 2016;9(1):1-14.