

## ارزیابی کارایی منعقد کننده نانو ذره مگنتایت عامل دار شده در حذف برخی آلاینده ها از اکوسیستم های آبی

محمدامین اردلانی<sup>۱</sup> و مهرداد چراغی<sup>۲\*</sup>

(۱) دانش آموخته کارشناسی ارشد رشته محیط زیست، دانشکده علوم پایه، واحد همدان، دانشگاه آزاد اسلامی، همدان، ایران.

(۲) استاد گروه محیط زیست، دانشکده علوم پایه، واحد همدان، دانشگاه آزاد اسلامی، همدان، ایران.

\*رایانامه نویسنده مسئول مکاتبات: [cheraghi@iauh.ac.ir](mailto:cheraghi@iauh.ac.ir)

<https://doi.org/10.71916/jrn.2024.10306>

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۲/۱۰/۱۳

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۰۸/۰۴

### چکیده

با توجه به اهمیت آب در زندگی و همچنین مسایل محیط زیستی، تصفیه آن از اهمیت خاصی برخوردار می باشد. یکی از مهم ترین روش های تصفیه آب و فاضلاب، منعقدسازی آلاینده های موجود در آب به وسیله منعقدکننده ها می باشد. هدف از این مطالعه تعیین کارایی فرآیند انعقاد جهت کاهش اکسیژن مورد نیاز بیوشیمیایی، اکسیژن مورد نیاز شیمیایی و کل جامدات محلول با استفاده از نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲، ۴ دی نیتروفنیل هیدرازین به عنوان منعقدکننده می باشد. بدین منظور، نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲، ۴ دی نیتروفنیل هیدرازین به عنوان منعقدکننده برای حذف COD، BOD و TDS از فاضلاب شهر همدان به روش هم رسوبی شیمیایی سنتز شدند. خصوصیات ظاهری نانوذرات مغناطیسی با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی، دستگاه پراش پرتو ایکس و اسپکتروسکوپی بررسی شد. آزمایش ها به صورت ناپوسته در مقیاس آزمایشگاهی انجام شد. اثر متغیرهای pH (۱۱-۲)، دوز منعقدکننده (۸۰-۱۰ میلی گرم بر لیتر)، زمان اختلاط (۶۰-۲ دقیقه) و زمان ته نشینی (۵۰-۱۰ دقیقه) بر راندمان حذف COD، BOD و TDS بررسی گردید. تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی نشان داد نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲، ۴ دی نیتروفنیل هیدرازین در اشکال ظاهری کروی و در اندازه ۲۰ تا ۳۵ نانومتر هستند. نتایج به دست آمده نشان داد با زمان اختلاط ۲۰ دقیقه، مقدار منعقدکننده ۶۰ میلی گرم بر لیتر، زمان ته نشینی ۳۰ دقیقه و pH برابر با ۷، کارایی حذف COD، BOD و TDS به ۹۸، ۹۴ و ۹۹/۲ درصد افزایش یافت. نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲، ۴ دی نیتروفنیل هیدرازین می تواند به عنوان یک منعقدکننده موثر و در دسترس جهت حذف COD و TDS از فاضلاب شهری مورد استفاده قرار گیرد.

**واژه های کلیدی:** اکسیژن مورد نیاز شیمیایی، اکسیژن مورد نیاز بیوشیمیایی، فاضلاب شهری، کل جامدات محلول، نانوذره مگنتایت عامل دار شده.

### مقدمه

رادیولوژیکی مورد بررسی قرار می گیرد. آب عامل اصلی انتقال بیماری های خطرناک عفونی مانند حصبه، شبه حصبه، وبا، یرقان عفونی، فلج اطفال و اسهال های خونی می باشد. اصولاً هیچ آبی را نمی توان قبل از بررسی میزان پارامترهای فیزیکی و شیمیایی و اندیکس میکروبی آن با اطمینان خاطر به مصرف شرب رساند. بیماری های متهموگلوبینا، ایتای ایتای، میناماتا، اختلالات گوارشی، فعالیت غیرطبیعی تیروئید ناشی از وجود بیش از حد

آب فراوان ترین مایع در سطح زمین و اساسی ترین عنصر برای بقای موجودات است. منشاء حدود ۸۰ درصد از بیماری های انسان ناشی از عدم دسترسی به آب سالم است. استفاده از آب آشامیدنی سالم و گوارا یکی از مهم ترین فاکتورهای مصرف آب می باشد که از سالیان دور به آن توجه شده است. آب آشامیدنی باید از جنبه های مختلف دارای کیفیت مطلوبی باشد (Sillanpää *et al.*, 2018). معمولاً این ویژگی ها در قالب کیفیت فیزیکی، شیمیایی، باکتریولوژیکی و

این روش‌ها دارای مزایا و معایبی می‌باشند. معایب روش‌های زیستی شامل مصرف بالای انرژی، تولید بالای جرم سلولی، زمین مورد نیاز وسیع و هزینه بالا می‌باشند (Zhu et al., 2012). روش‌های تصفیه هوازی انرژی زیادی مصرف می‌کنند و روش‌های بی‌هوازی علی‌رغم اینکه انرژی مورد نیاز کمتری دارند اما در حذف نوتریت‌ها راندمان پایینی دارند (Verma et al., 2012; Mateus et al., 2018; Can et al., 2019). در میان روش‌های فیزیکی‌شیمیایی، انعقاد به‌عنوان پیش تصفیه به‌کار برده می‌شوند. امروزه استفاده از منعقدکننده‌ها در تصفیه آب و فاضلاب بسیار رایج شده و استفاده از این مواد روبه افزایش می‌باشد که دلیل این امر می‌تواند کارایی بالای این مواد در حذف مواد معلق و کدورت از محلول‌های آبی بوده و آب یا فاضلاب را برای تصفیه در مراحل بعدی به خوبی پردازش نماید (Kim et al., 2019; Liu et al., 2019). از طرفی این مواد نسبتاً ارزان بوده و به راحتی قابل دسترس می‌باشند. در سال‌های اخیر انواع جدیدی از مواد منعقدکننده با استفاده از نمک‌های آهن و آلومینیوم تهیه شدند. از جمله برتری‌های منعقدکننده‌های آهنی نسبت به منعقدکننده‌های متداول می‌توان به کارایی مناسب در محدوده گسترده از pH و کارایی بهتر در دماهای مختلف به‌ویژه در دماهای پایین اشاره نمود. Cheng و همکاران (۲۰۱۸) حذف ترکیبات آلی را با هیدروکسید آهن در فرآیند انعقاد بررسی کردند و به نتایج قابل قبولی دست یافتند. Li و همکاران (۲۰۱۷) از تری‌کلرید آهن و کلرید پلی‌فریک به منظور حذف آلاینده‌های دارویی، حذف کربن آلی محلول و فسفر کل در فرآیند انعقاد استفاده کردند. بنابراین این مطالعه با هدف بررسی فرآیند انعقاد با استفاده از نانوذره مگنتایت عامل-دار شده با ۲، ۴ دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین به‌عنوان پیش تصفیه برای تصفیه فاضلاب انجام شد. در این پژوهش نانوذره مگنتایت عامل‌دار شده با ۲، ۴ دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین برای اولین بار با هدف حذف BOD، COD و TDS از پساب شهری سنتز شد. برای این منظور تاثیر pH، دوز منعقدکننده، زمان اختلاط و زمان ته‌نشینی مورد بررسی قرار گرفت.

مجاز ناخالصی‌های مضر شیمیایی در آب برای انسان می‌باشد (Bachand et al., 2019; Zandipak et al., 2020). اکسیژن مورد نیاز بیوشیمیایی<sup>۱</sup>، اکسیژن مورد نیاز شیمیایی<sup>۲</sup> و کل جامدات محلول<sup>۳</sup> از پارامترهای مورد استفاده و مهم به‌منظور تعیین آلودگی‌های آلی آب و فاضلاب است. پارامتر BOD یکی از پارامترهای مورد استفاده و مهم به‌منظور تعیین آلودگی‌های آلی آب و فاضلاب است. این پارامتر از طریق اندازه‌گیری اکسیژن مورد نیاز میکروارگانیسم‌های هوازی در حین تجزیه اجزای آلی تعیین شده و در واقع مقدار BOD بیانگر مقدار مواد آلی قابل تجزیه در نمونه پساب است. از آنجایی که BOD با اکسیژن محلول در آب (DO) رابطه عکس دارد، مقادیر بالای BOD بیانگر شرایط فقدان اکسیژن محلول در آب خواهد بود (Eslami et al., 2019; Gan et al., 2019). اکسیژن مورد نیاز شیمیایی (COD) تفاوتی بین مواد بیولوژیکی و مواد غیرآلی قائل نیست. COD در حقیقت مقدار کل اکسیژن مورد نیاز برای اکسید کردن همه مواد آلی به دی‌اکسید کربن و آب می‌باشد. بنابراین میزان COD همیشه از میزان BOD بیشتر است. از دیگر ویژگی‌های مهم آب کل مواد جامد محلول (TDS) است که در واقع مقدار شفافیت آب را مشخص می‌کند. مواد جامد محلول در آب ممکن است مواد آلی یا غیرآلی (مواد معدنی) باشند. هر چقدر TDS آب بیشتر باشد سبب می‌گردد که آب بو، طعم و رنگ نامطلوب‌تری به خود گیرد. اگر پسابی با BOD و COD بالا درون دریاچه، رودخانه و منابع آب طبیعی تخلیه شود، رشد باکتری‌ها و مصرف اکسیژن درون رودخانه‌ها تسریع می‌شود. سطح اکسیژن ممکن است در حدی کاهش یابد که موجب مرگ و میر ماهی‌ها و حشرات آبی شود و همچنین باعث صدمه به اقتصادی که به آنها وابسته است، گردد. درحالی‌که مدیریت و کنترل این عوامل آلاینده نسبت به جبران صدمه وارده به بوم‌سازگان، کم هزینه‌تر است (Aboubaraka et al., 2017).

از جمله روش‌های تصفیه پساب می‌توان به روش‌های بیولوژیکی هوازی و بی‌هوازی مانند لجن فعال، برکه‌های بی‌هوازی، برکه‌های اکسیداسیون، صافی چکنده و سیستم‌های ترکیبی و روش‌های فیزیکی‌شیمیایی اشاره کرد. اما هر یک از

بسته برای استفاده های بعدی ذخیره شد (Sobhanardakani & Zandipak, 2015).

مواد و تجهیزات مورد استفاده

این مطالعه یک پژوهش بنیادی- کاربردی بوده و با توجه به ماهیت آن در مقیاس آزمایشگاهی و در شرایط بسته انجام یافته است. در این مطالعه دی کلرید آهن، تری کلرید آهن، ۲ و ۴-دی نیترو فنیل هیدرازین، سدیم دودسیل سولفات، آمونیاک ۲۵ درصد، اسید نیتریک (۶۵ درصد)، اسید کلریدریک و هیدروکسید سدیم با خلوص آزمایشگاهی از شرکت Merck آلمان تهیه شد. دستگاه های DO متر مدل HYDRO - BIOS BOD، KIEL متر ساخت شرکت زاگ شیمی، COD متر ساخت شرکت زاگ شیمی، کدورت سنج مدل Lovibond و جارتست مدل JTR ۹۰ ساخت شرکت زاگ شیمی مورد استفاده قرار گرفت. به منظور شناسایی منعقد کننده از دستگاه SEM مدل XL30 ساخت شرکت Philips، دستگاه IR مدل 10.01.00 ساخت شرکت Perkin Elmer و XRD مدل PW 3710 ساخت شرکت Philips استفاده شد.

### نمونه برداری

انجام نمونه برداری از فاضلاب در پایان ساعت کاری به صورت مرکب در هر ماه و همچنین از عمق ۳۰ سانتی متری سطح از حوضه های جمع آوری فاضلاب شهر همدان صورت گرفت. نمونه های تهیه شده در شرایط مناسب نگهداری و در دمای ۴ درجه سانتی گراد به آزمایشگاه انتقال داده شد و سپس آزمایش های مورد نیاز شامل اکسیژن محلول، اکسیژن مورد بیوشیمیایی، جامدات محلول کل، درجه حرارت، pH و کدورت بر اساس استاندارد متد در سال ۲۰۰۵ انجام گردید.

### آزمایش های انعقاد

به منظور انجام آزمایش ها از دستگاه جارتست و ظروف شیشه ای به حجم ۱ لیتر استفاده شد. در طول اختلاط سریع، دوز مورد نظر از منعقد کننده به هر بشر اضافه شد. پس از اختلاط سریع، به سرعت آن را در فاز اختلاط آرام قرار داده و مدت زمان مورد نیاز با زمان سنج اندازه گیری شد. در این مطالعه، شدت و زمان اختلاط برای اختلاط سریع و اختلاط آهسته به ترتیب  $120 \pm 2$  دور در دقیقه به مدت ۲ دقیقه و  $40 \pm 2$  دور در دقیقه به مدت ۲۰ دقیقه انتخاب شد. پس از اختلاط آهسته، ظروف به آرامی از دستگاه جار خارج شدند و به نمونه ها فرصت های ته نشینی ۳۰ دقیقه داده شد. پس از پایان مدت ته نشینی و جدا کردن منعقد کننده نمونه ای از مایع برای اندازه گیری پارامترهای مورد نظر (COD، BOD و TDS) گرفته شد و اندازه گیری هر یک از پارامترهای مورد بررسی بر اساس روش های ذکر شده در کتاب روش های استاندارد برای آب و فاضلاب صورت گرفت و در نهایت کارایی منعقد کننده در حذف پارامترهای مورد بررسی از طریق رابطه (۱) محاسبه شد (Kim et al., 2019):

$$\text{رابطه (۱)} \quad (\%) \text{ کارایی حذف} = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100$$

در این رابطه:  $C_0$  = غلظت اولیه آلاینده و  $C_e$  = غلظت نهایی آلاینده است.

به منظور بررسی اثر pH بر حذف COD، BOD و TDS توسط نانوذرات مگنتایت عامل دار شده به عنوان منعقد کننده، از

### آماده کردن نانوذرات مغناطیسی مگنتایت ( $Fe_3O_4$ )

نانوذرات مورد استفاده با روش هم رسوبی- کاهش تهیه شدند.  $1/68$  گرم از تری کلرید آهن و دی کلرید آهن در ۲۰۰ میلی لیتر آب بدون یون تحت جو گاز نیتروژن و دمای ۸۵ درجه سانتی گراد در شرایط هم زدن حل گردید و سپس ۲۰ میلی لیتر از آمونیاک ۳۰ درصد قطره قطره به محلول اضافه شد و رنگ محلول به سرعت از نارنجی به سیاه تغییر کرد. نانوذرات تولید شده طبق دستورالعمل مرجع با آب دو بار تقطیر شسته شد و در نهایت توسط یک مگنت جداسازی شد (Zandipak et al., 2020).

### اصلاح نانوذرات مگنتایت با ۲ و ۴-دی نیترو فنیل هیدرازین

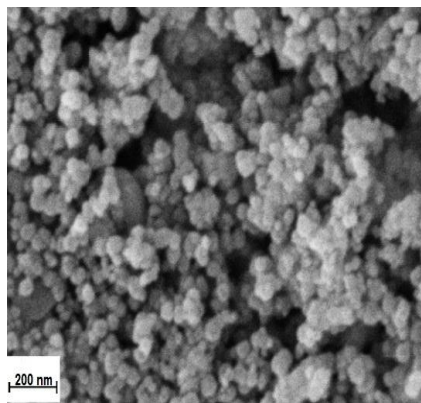
۲ گرم از نانوذرات مگنتایت سنتز شده در ۵۰ میلی لیتر آب سوسپانسیون شد و در ادامه با ۱۰۰ میلی گرم از سدیم دودسیل- سولفات مخلوط شد. سپس ۲۰ میلی لیتر از محلول ۲ و ۴-دی نیترو فنیل هیدرازین اضافه شد. محلول به مدت ۳ ساعت در دمای ۶۰ درجه سلسیوس هم زده شد. در نهایت مخلوط پس از تبخیر شدن، شسته شد و هوا خشک شد و در یک بطری در

محلول‌های HCl و NaOH ۰/۰۱ مولار در دامنه ۲ تا ۱۱ تنظیم گردید. برای بررسی دز منعقدکننده، در pH بهینه، وزن‌های مختلف از نانوذرات مگنتایت عامل‌دار شده به‌عنوان منعقدکننده در دامنه ۱۰ تا ۸۰ میلی‌گرم بر لیتر (۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰، ۶۰، ۷۰ و ۸۰) استفاده شد. برای بررسی زمان اختلاط بهینه، نمونه‌ها در دامنه زمانی ۲ تا ۶۰ دقیقه (۲، ۵، ۱۰، ۱۵، ۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰ و ۶۰) تحت اختلاط قرار گرفتند. در نهایت به‌منظور بررسی زمان ته‌نشینی بهینه، نمونه‌ها در زمان‌های ته‌نشینی مختلف (۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰ و ۵۰ دقیقه) مورد بررسی قرار گرفتند.

### نتایج

#### نتایج بررسی خصوصیات ساختاری منعقدکننده

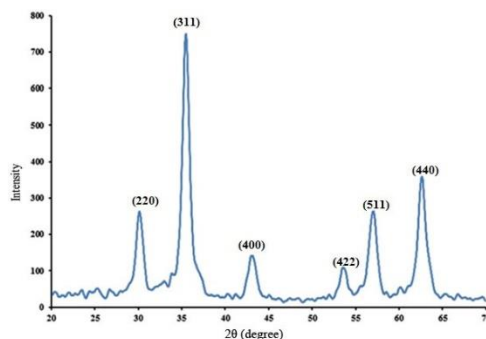
در این مطالعه جهت بررسی خصوصیات ظاهری و ابعاد نانوساختار از تصاویر به‌دست آمده میکروسکوپ الکترونیرویشی استفاده گردید. شکل (۱) تصویر SEM گرفته شده از نانوذره مگنتایت عامل‌دار شده را نشان می‌دهد. با توجه به تصویر، مشاهده می‌شود ذرات نانوساختار مگنتایت دارای اندازه ۲۰-۳۵ نانومتر می‌باشند.



شکل ۱. تصویر SEM از نانوذره مگنتایت عامل‌دار شده

(۳۱۱)، (۴۰۰)، (۴۲۲)، (۵۱۱) و (۴۴۰) مربوط به نانو ذره مگنتایت می‌باشد.

شکل (۲) طیف به‌دست آمده از پراش اشعه X برای نانوذره مگنتایت را نشان می‌دهد. صفحات کریستالی (۲۲۰)،



شکل ۲. طیف به‌دست آمده از پراش اشعه X برای نانوذره مگنتایت

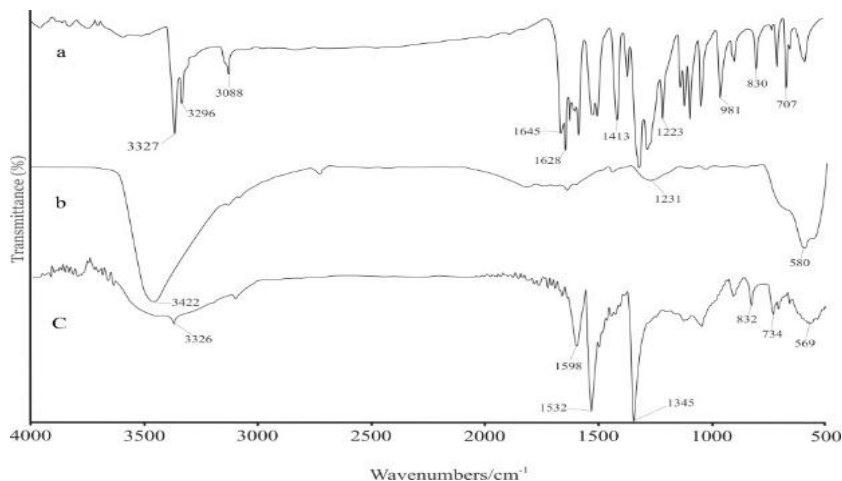
مشاهده می‌شود بعد از عامل‌دار کردن با ۲ و ۴ -دی‌نیتروفنیل- هیدرازین، پیک‌های جدید در  $(1345 \text{ cm}^{-1})$ ،  $(1532 \text{ cm}^{-1})$

طیف IR نانوذره مگنتایت و ۲ و ۴ -دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین و نانوذره مگنتایت عامل‌دار شده با ۲ و ۴ -دی‌نیتروفنیل- هیدرازین در شکل (۳) نمایش داده شده است. همان‌طور که

## ارزیابی کارایی منعقد کننده نانو ذره مگنتایت عامل دار شده در حذف برخی آلاینده ها ... / ۵

و  $(1598 \text{ cm}^{-1})$  ظاهر می شود که مشخصه پیوند N-H بر روی

مگنتایت می باشد.



شکل ۳. تصویری از طیف IR (a) ۲ و ۴-دی نیترو فنیل هیدرازین، (b) نانوذره مگنتایت و (c) نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی-نیترو فنیل هیدرازین

### نتایج بررسی ویژگی های فاضلاب مورد مطالعه

ویژگی های فاضلاب واقعی که از فاضلاب شهر همدان گرفته شده بود، اندازه گیری شد که نتایج آن در جدول (۱) آمده است. مقادیر ذکر شده در جدول (۱) مقادیر میانگین هر یک از پارامترها می باشند.

در این تحقیق به منظور ارزیابی فرآیند انعقاد با استفاده از نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی نیترو فنیل هیدرازین به عنوان پیش تصفیه برای تصفیه فاضلاب شهری و تعیین شرایط بهینه از فاضلاب واقعی استفاده شد. پس از نمونه برداری،

جدول ۱. مقادیر مربوط به پارامترهای مورد بررسی فاضلاب شهر همدان

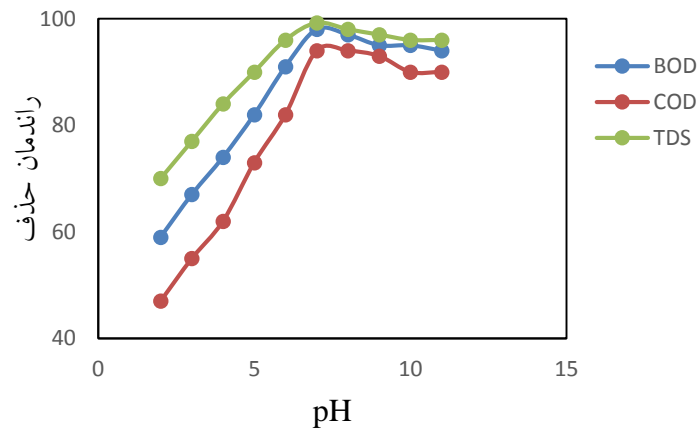
شماره استاندارد متد / ابزار سنجش	میانگین	حداقل	حداکثر	واحد	پارامتر
۵۲۱۰	۲۸۷/۵	۲۷۵	۳۰۰	میلی گرم در لیتر	BOD
۵۲۲۰	۵۰۱	۴۲۹	۶۰۰	میلی گرم در لیتر	COD
۱۰۳۰	۱۰۲۸	۹۵۰	۱۱۵۲	میلی گرم در لیتر	TDS
pH متر	۷/۸	۷	۸/۵	-	pH
EC متر	۱۸۶۱	۱۷۵۰	۱۹۵۰	میکروزیمنس در سانتی متر	EC
دماسنج	۲۹	۲۶	۳۲	درجه سانتی گراد	T

۲ و ۴-دی نیترو فنیل هیدرازین در شکل (۴) آورده شده است. با بررسی نتایج به دست آمده، مشخص می شود که با افزایش pH از ۲ تا ۷ کارایی حذف BOD، COD و TDS به طور کلی افزایش می یابد.

نتایج بررسی تاثیر متغیرها بر عملکرد فرآیند انعقاد BOD،

### COD و TDS از فاضلاب شهر همدان

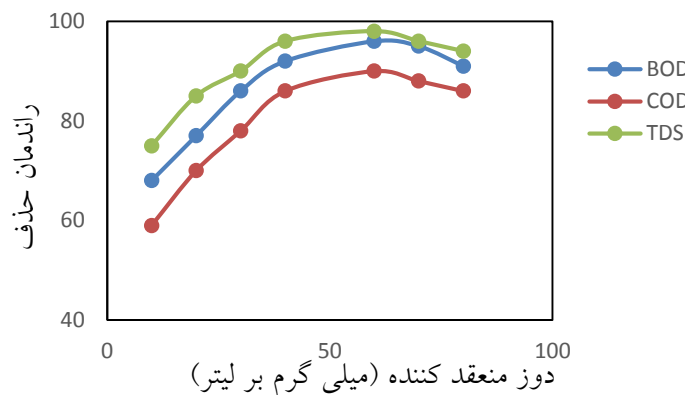
نتایج حاصل از آزمایش های اثر pH بر راندمان حذف پارامترهای BOD، COD و TDS در فرآیند انعقاد و لخته سازی با استفاده از منعقد کننده نانوذره مگنتایت عامل دار شده با



شکل ۴. تاثیر pH اولیه پساب در حذف آلاینده‌ها با استفاده از منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل‌دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین

است. نتایج بیانگر آن بود که اضافه شدن ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر از منعقدکننده برای حذف BOD، COD و TDS منجر به دستیابی به حداکثر میزان حذف می‌شود.

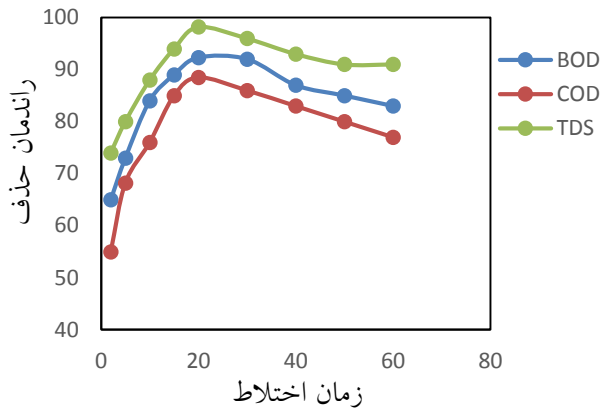
نتایج حاصل از آزمایش‌های اثر دوز منعقدکننده بر راندمان حذف پارامترهای BOD، COD و TDS در فرآیند انعقاد و لخته‌سازی با استفاده از منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل‌دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین در شکل (۵) آورده شده



شکل ۵. تاثیر دوز منعقدکننده بر حذف BOD، COD و TDS

توسط منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل‌دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین تا زمان اختلاط ۲۰ دقیقه افزایش یافته و از زمان ۲۰ تا ۶۰ دقیقه کاهش می‌یابد.

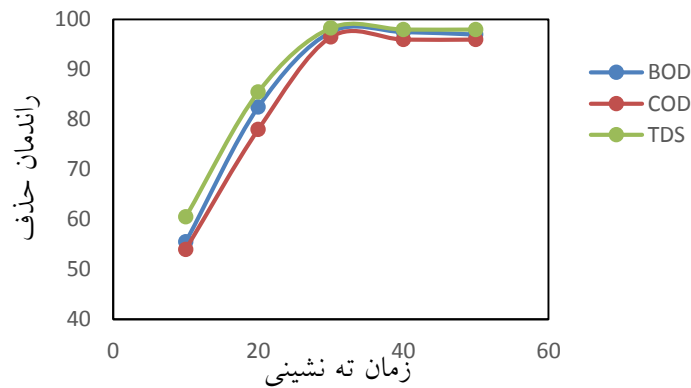
نتایج حاصل از آزمایش‌های زمان اختلاط بر راندمان حذف پارامترهای BOD، COD و TDS در فرآیند انعقاد و لخته‌سازی با استفاده از منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل‌دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین در شکل (۶) آورده شده است. نتایج بیانگر آن بود میزان حذف BOD، COD و TDS



شکل ۶. تاثیر مدت زمان اختلاط منعقدکننده بر میزان حذف BOD, COD, TDS و

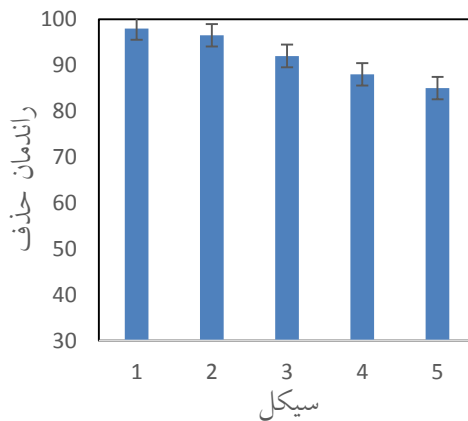
است. با بررسی نتایج به دست آمده مشخص شد با افزایش زمان ته نشینی تا ۳۰ دقیقه کارایی حذف به طور کلی افزایش می یابد و پس از آن ثابت می شود.

نتایج حاصل از آزمایش‌های اثر زمان ته نشینی بر راندمان حذف پارامترهای BOD, COD, TDS در فرآیند انعقاد و لخته سازی با استفاده از منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی نیترو فنیل هیدرازین در شکل (۷) آورده شده



شکل ۷. تاثیر زمان ته نشینی بر میزان حذف BOD, COD, TDS و

نتایج نشان داد منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی نیترو فنیل هیدرازین بدون تغییر در کارایی تا پنج مرتبه قابل استفاده است (شکل ۸).



شکل ۸. قابلیت استفاده مجدد منعقدکننده

منبع	منعقدکننده آلاینده (%)	
	COD	TDS
Guida <i>et al.</i> , 2007	۸۰	-
Dotto <i>et al.</i> , 2019	۸۳/۰۵	-
Aboubaraka <i>et al.</i> , 2017	-	۹۵
Can <i>et al.</i> , 2019	۹۷	۹۵
Shabanizadeh & Taghavijeloudar, 2023	۸۷	-
Hu <i>et al.</i> , 2022	۶۸/۴۱	-

### بحث و نتیجه گیری

شکل (۱) تصویر SEM گرفته شده از نانوذره مگنتایت عامل دار شده را نشان می دهد. با توجه به تصویر مشاهده می شود ذرات نانوساختار مگنتایت دارای اندازه ۲۰-۳۵ نانومتر می باشند. همچنین در شکل (۲) صفحات کریستالی (۲۲۰)، (۳۱۱)، (۴۰۰)، (۴۲۲)، (۵۱۱) و (۴۴۰) مربوط به نانوذره مگنتایت می باشد. طیف IR نانوذره مگنتایت و ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین و نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین در شکل (۳) نمایش داده شده است. همان طور که مشاهده می شود بعد از عامل دار کردن با ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین، پیک های جدید در  $(cm^{-1})$  ۱۳۴۵،  $(cm^{-1})$  ۱۵۳۲ و  $(cm^{-1})$  ۱۵۹۸ ظاهر می شود که مشخصه پیوند N-H بر مگنتایت می باشد.

نتایج بررسی تاثیر pH بر فرآیند انعقاد توسط منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین بیانگر آن بود که با افزایش pH محلول تا ۷ درصد حذف BOD، COD و TDS به ترتیب به میزان ۹۸، ۹۴ و ۹۹/۲ درصد افزایش می یابد (شکل ۴). pH محلول یکی از مهم ترین پارامترها در فرآیند انعقاد و حذف آلاینده ها از راه محلول های آبی است. فقط با استفاده از یک منعقدکننده در pH مطلوب حذف حداکثر آلاینده اتفاق می افتد. از سوی دیگر، مواد شیمیایی منعقدکننده محدوده pH مطلوب آن که در عمل انعقاد و لخته سازی رخ می دهد در کوتاهترین زمان انجام می شود. نتایج حاصل از مطالعه نشان داد نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین در pH اسیدی راندمان حذف کمتری نسبت به قلیایی و خنثی دارد که علت

آن را می توان تشکیل فلوک های نامناسب و شکننده در pH اسیدی دانست. کارایی حذف نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین در pH خنثی بهتر از اسیدی و قلیایی بوده است به دلیل اینکه فلوک های تشکیل شده در pH خنثی درشت تر از فلوک های تشکیل شده در pH اسیدی است، بنابراین راحت تر ته نشین می شوند و کارایی حذف در pH خنثی بیشتر است. همچنین مشخص گردید  $pH_{pzc}$  نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین، ۵ است. در نتیجه در  $pH > 5$  سطح منعقدکننده دارای بار منفی است. بنابراین نیروی جاذبه الکتروستاتیکی بین مواد منعقدکننده و مواد آلاینده موجود در فاضلاب عامل مهمی در افزایش درصد حذف BOD، COD و TDS است. نتایج پژوهش بیانگر آن بود که حذف BOD، COD و TDS از فاضلاب توسط منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین، وابسته به pH است، به طوری که در pH برابر با ۷، بالاترین کارایی حذف صورت می گیرد. این نتایج با یافته های پژوهش محوی و همکاران (۱۳۹۱) و طاهریان و معماری پور (۱۳۹۸) که بر روی حذف BOD، COD و TDS از محیط آبی با استفاده از منعقدکننده های مختلف انجام شده بود، مطابقت داشت.

تعیین دوز بهینه جهت به حداقل رسانیدن هزینه های مصرف ماده منعقدکننده و میزان تولید لجن و نیز کسب شرایط مناسب تصفیه از اهمیت قابل ملاحظه ای برخوردار می باشد. از این رو در مطالعه حاضر، اثر دوز منعقدکننده (نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی-نیتروفنیل هیدرازین) در دامنه ۱۰ تا



## ارزیابی کارایی منعقد کننده نانو ذره مگنتایت عامل دار شده در حذف برخی آلاینده ها ... / ۹

در پژوهشی مشخص شد که با افزایش زمان اختلاط، کارایی نانوذره تترا کلرید زیرکونیوم در حذف فلوراید افزایش یافته است (Gan et al., 2019). از طرفی در تایید نتایج پژوهش حاضر، برخی پژوهشگران گزارش کردند کارایی منعقدکننده‌های آلومینیوم و آهن در حذف کربن آلی و ترکیبات جیوه از پساب در زمان ۲۰ دقیقه حاصل شده است (Bachand et al., 2019).

آخرین پارامتری که جهت بهینه‌سازی فرآیند انعقاد با استفاده از منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین انجام گرفت، تاثیر زمان ته‌نشینی جهت رسوب لخته‌های تشکیل شده در مرحله فلکولاسیون می‌باشد. شکل (۷) روند ته‌نشینی فلوک‌ها را در زمان‌های مختلف نشان می‌دهد. نتایج حاصل از مطالعه نشان داد در زمان تماس ۳۰ دقیقه بالاترین سرعت ته‌نشینی مشاهده شد و پس از زمان ۳۰ دقیقه، در سرعت ته‌نشینی فلوک‌ها با گذشت زمان تغییر قابل ملاحظه‌ای مشاهده نشد. این نتایج با یافته‌های پژوهش محوی و همکاران (۱۳۹۱) و طاهریان و معماری پور (۱۳۹۸) که با استفاده از منعقدکننده‌های مختلف نسبت به حذف BOD، COD و TDS از محیط آبی اقدام کردند، مطابقت دارد. برای بررسی قابلیت استفاده مجدد از منعقدکننده، آزمایش‌های قابلیت استفاده مجدد مورد بررسی قرار گرفت (شکل ۸). بدین منظور از محلول اسید هیدروکلریک ۰/۱ مولار به همراه آب مقطر استفاده شد. نتایج نشان داد نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین بدون تغییر در کارایی تا پنج مرتبه قابل استفاده بوده و در چنین شرایطی استفاده از این منعقدکننده از نظر اقتصادی قابل توجیه می‌باشد. در جدول (۲)، بیشترین راندمان حذف نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین برای حذف BOD، COD و TDS با منعقدکننده‌های دیگر مقایسه شد. داده‌های جدول (۲) حاکی از آن است که بیشترین راندمان حذف نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین بیشتر از سایر منعقدکننده‌ها است.

با توجه به نتایج، نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین که به روش هم‌رسوبی شیمیایی سنتز شد، در شرایط بهینه pH برابر با ۷، دوز منعقدکننده برابر با ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر، زمان اختلاط برابر با ۲۰ دقیقه و زمان

۶۰ میلی‌گرم بر لیتر مورد بررسی قرار گرفت. همان‌طور که از شکل (۵) مشاهده می‌شود حداکثر راندمان حذف BOD، COD و TDS در دوز منعقدکننده ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر حاصل شد. به عبارت دیگر، بالاترین راندمان حذف معادل ۹۶، ۹۰ و ۹۸ درصد در دوز منعقدکننده ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر به دست آمد. همچنین نتایج نشان داد افزایش بیشتر از ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر از دوز منعقدکننده مصرفی بهبود راندمان حذف BOD، COD و TDS را به دنبال نداشت. به عبارت دیگر افزایش بیشتر دوز منعقدکننده مصرفی سبب تثبیت مجدد ذرات یا پایداری مجدد ذرات کلوییدی و برگشت بار ذرات می‌شود. نتایج تحقیقی نشان داد حذف رنگ با افزایش میزان منعقدکننده تا مقدار مشخصی در فرآیند انعقاد افزایش می‌یابد (Verma et al., 2012). نتایج تحقیق دیگری نشان داد بالاترین کارایی حذف آلاینده‌های آب آشامیدنی در غلظت برابر با ۳۰ میلی‌گرم بر لیتر منعقدکننده (نانوذره مگنتایت عامل دار شده با گونه گیاهی گز) حادث شده است که با یافته‌های این پژوهش مطابقت دارد (Mateus et al., 2018). همچنین، نتایج تحقیق دیگری نیز نشان داد با افزایش میزان منعقدکننده‌های سولفات آهن، تری‌کلرید آهن، تری‌سولفات آلومینیوم و تری‌کلرید آلومینیوم، کارایی حذف COD و TOC افزایش یافته است (Can et al., 2019).

در فرآیند انعقاد، زمان اختلاط یکی از پارامترهای مهم در واکنش‌های شیمیایی هستند. در واقع زمان اختلاط، زمان لازم برای رسیدن به بیشترین مقدار حذف آلاینده در جهت استفاده از حداکثر توان فرآیند است. نتایج بررسی تاثیر زمان اختلاط بر فرآیند حذف BOD، COD و TDS توسط منعقدکننده نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین بیانگر آن بود که با افزایش زمان اختلاط تا ۲۰ دقیقه، کارایی حذف BOD، COD و TDS به میزان ۹۲/۳، ۸۸/۵ و ۹۸/۲ درصد افزایش و در زمان‌های بالاتر به دلیل شکسته شدن فلوک‌های ایجاد شده در اثر اختلاط در دستگاه جارست حذف BOD، COD و TDS کمتر کاهش می‌یابد (شکل ۶). با افزایش زمان اختلاط از ۲۰ به ۶۰ دقیقه افزایش چشمگیری در حذف BOD، COD و TDS صورت نمی‌گیرد، بنابراین زمان بهینه جهت فلکولاسیون ۲۰ دقیقه انتخاب شد.

- Cheng, Z., Yang, B., Chen, Q., Ji, W. and Shen, Z. (2018) Characteristics and difference of oxidation and coagulation mechanisms for the removal of organic compounds by quantum parameter analysis. *Chemical Engineering Journal*, 332(1): 351-360.
- Dotto, J., Fagundes-Klen, M.R., Veit, M.T., Palacio, S.M. and Bergamasco, R. (2019) Performance of different coagulants in the coagulation/flocculation process of textile wastewater. *Journal of cleaner production*, 208(4): 656-665.
- Eslami, H., Ehrampoush, M.H., Esmaeili, A., Salmani, M.H., Ebrahimi, A.A., Ghaneian, M.T., Falahzadeh, H. and Fouladi Fard, R. (2019) Enhanced coagulation process by Fe-Mn bimetal nano-oxides in combination with inorganic polymer coagulants for improving As (V) removal from contaminated water. *Journal of Cleaner Production*, 208(3):384-392.
- Gan, Y., Wang, X., Zhang, L., Wu, B., Zhang, G. and Zhang, S. (2019) Coagulation removal of fluoride by zirconium tetrachloride: Performance evaluation and mechanism analysis. *Chemosphere*, 218(1): 860-868.
- Guida, M., Mattei, M., Della Rocca, C., Melluso, G. and Meriç, S. (2007) Optimization of alum-coagulation/flocculation for COD and TSS removal from five municipal wastewater. *Desalination*, 211(1-3): 113-127.
- Hu, R., Liu, Y., Zhu, G., Chen, C., Hantoko, D. and Yan, M. (2022) COD removal of wastewater from hydrothermal carbonization of food waste: Using coagulation combined activated carbon adsorption. *Journal of Water Process Engineering*, 45(1): 102462.
- Kim, K.-W., Shon, W.-J., Oh, M.-K., Yang, D., Foster, R.I. and Lee, K.-Y. (2019) Evaluation of dynamic behavior of coagulation-flocculation using hydrous ferric oxide for removal of radioactive nuclides in wastewater. *Nuclear Engineering and Technology*, 51(3):738-745.
- Li, N., Sheng, G.-P., Lu, Y.-Z., Zeng, R.J. and Yu, H.-Q. (2017) Removal of antibiotic resistance genes from wastewater treatment plant effluent by coagulation. *Water Research*, 111(4): 204-212.
- Liu, Y., Zhang, J., Huang, H., Huang, Z., Xu, C., Guo, G., He, H. and Ma, J. (2019) Treatment of trace thallium in contaminated source waters by ferrate pre-oxidation and poly aluminium chloride coagulation. *Separation and Purification Technology*, 227(3): 115663.
- Mateus, G.A.P., Paludo, M.P., dos Santos, T.R.T., Silva, M.F., Nishi, L., Fagundes-Klen, M.R., Gomes, R.G. and Bergamasco, R. (2018) Obtaining drinking water using a magnetic coagulant composed of magnetite nanoparticles functionalized with *Moringa oleifera* seed extract. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 6(4): 4084-4092.
- Shabanizadeh, H. and Taghavijelouidar, M. (2023) A sustainable approach for industrial wastewater treatment using pomegranate seeds in flocculation-coagulation process: Optimization of COD and turbidity removal by response surface methodology
- ته‌نشینی برابر با ۳۰ دقیقه از بیشترین کارایی حذف BOD و COD و TDS برخوردار بود. در مجموع، نتایج حاصل از آزمایش‌ها مشخص کرد نانوذره مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل‌هیدرازین قابلیت جداسازی بالا و ظرفیت انعقاد چشمگیری برای حذف BOD، COD و TDS داشته و کاربرد آن در تصفیه فاضلاب‌های شهری پیشنهاد می‌شود. از جمله محدودیت‌های پژوهش می‌توان به هزینه بالای سنتز نانوذرات مگنتایت عامل دار شده با ۲ و ۴-دی‌نیتروفنیل-هیدرازین و همچنین استفاده از آنها در مقیاس صنعتی اشاره کرد.
- ### سپاسگزاری
- این مقاله برگرفته از پایان‌نامه کارشناسی‌ارشد مصوب دانشگاه آزاد اسلامی واحد همدان با کد ۱۷۱۲۹۴۰۵۰۷۶۱۷۷۷۱۳۹۸۱۶۲۳۴ نویسنده‌گان از معاونت محترم پژوهش و فن‌آوری دانشگاه برای فراهم کردن امکانات اجرای مطالعه سپاسگزاری می‌کنند.
- ### منابع
- طاهریون، م. و معماری‌پور، ع. (۱۳۹۸) ارزیابی فرآیند انعقاد و لخته‌سازی در حذف فلزات سنگین از پساب شیمیایی مجتمع فولاد مبارکه. *علوم و تکنولوژی محیط زیست*، ۲۱(۶): ۶۱-۶۶.
- محو، ا.ح.، دهقانی، م.ه.، کیانی‌فیض‌آبادی، ق. و بارانی، م. (۱۳۹۱) ارزیابی عملکرد سه منعقدکننده مختلف جهت تصفیه شیرابه کارخانه کمپوست اصفهان. *تحقیقات نظام سلامت*، ۸(۱): ۱۴۶-۱۵۵.
- Aboubaraka, A.E., Aboelfetoh, E.F. and Ebeid, E.-Z.M. (2017) Coagulation effectiveness of graphene oxide for the removal of turbidity from raw surface water. *Chemosphere*, 181(2): 738-746.
- Bachand, S.M., Kraus, T.E., Stern, D., Liang, Y.L., Horwath, W.R. and Bachand, P.A. (2019) Aluminum-and iron-based coagulation for in-situ removal of dissolved organic carbon, disinfection byproducts, mercury and other constituents from agricultural drain water. *Ecological Engineering*, 134(3): 26-38.
- Can, O.T., Gengec, E. and Kobya, M. (2019) TOC and COD removal from instant coffee and coffee products production wastewater by chemical coagulation assisted electrooxidation. *Journal of Water Process Engineering*, 28(3): 28-35.

- Verma, A.K., Dash, R.R. and Bhunia, P. (2012) A review on chemical coagulation/flocculation technologies for removal of colour from textile wastewaters. *Journal of Environmental Management*, 93(1):154-168.
- Zandipak, R., Sobhan Ardakani, S. and Shirzadi, A. (2020) Synthesis and application of nanocomposite Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>@SiO<sub>2</sub>@CTAB-SiO<sub>2</sub> as a novel adsorbent for removal of cyclophosphamide from water samples. *Separation Science and Technology*, 55(3): 456-470.
- Zhu, Y., Hu, J. and Wang, J. (2012) Competitive adsorption of Pb(II), Cu(II) and Zn(II) onto xanthate-modified magnetic chitosan. *Journal of Hazardous Materials*, 221(1): 155-161.
- (RSM). *Journal of Water Process Engineering*, 53(7): 103651.
- Sillanpää, M., Ncibi, M.C., Matilainen, A. and Vepsäläinen, M. (2018) Removal of natural organic matter in drinking water treatment by coagulation: A comprehensive review. *Chemosphere*, 190(2): 54-71.
- Sobhanardakani, S. and Zandipak, R. (2015) 2,4-Dinitrophenylhydrazine functionalized sodium dodecyl sulfate-coated magnetite nanoparticles for effective removal of Cd(II) and Ni(II) ions from water samples. *Environmental Monitoring and Assessment*, 187(7): 412-412.

## Evaluating the coagulant efficiency of functionalized magnetite nanoparticles in removing some pollutants from aquatic ecosystems

Mohammad Amin Ardalani<sup>1</sup>, Mehrdad Cheraghi<sup>2\*</sup>

- 1) M.Sc. Graduated in Environmental Science, Department of the Environment, College of Basic Sciences, Hamedan Branch, Islamic Azad University, Hamedan, Iran.
  - 2) Professor, Department of the Environment, College of Basic Sciences, Hamedan Branch, Islamic Azad University, Hamedan, Iran.
- Corresponding Author Email Address: [cheraghi@iauh.ac.ir](mailto:cheraghi@iauh.ac.ir)

Date of Submission: 2023/10/26

Date of Acceptance: 2024/01/04

### Abstract

Considering the importance of water in life as well as environmental issues, its purification is of particular importance. One of the most important methods of water and wastewater treatment is the coagulation of pollutants in water by coagulants. The aim of this study was to determine the efficiency of coagulation process to reduce biochemical oxygen demand (BOD), chemical oxygen demand (COD) and total soluble solids (TDS) using magnetite nanoparticles functionalized with 2,4-dinitrophenyl hydrazine as a coagulant. This study was an empirical investigation in which 2,4-dinitrophenylhydrazine functionalized magnetite nanoparticles were synthesized by co-precipitation method and were used as a coagulant for the removal of BOD, COD, and TDS from Hamedanmunicipal sewage. Nanoparticles were characterized using SEM, XRD, and FTIR methods. Experiments were conducted discontinuously and the variable effects such as pH (2-11), coagulation dose (10-80 mg), mixing time (2-60 min), and sedimentation time (10-50 min) on the efficacy of BOD, COD, and TDS removal were studied. SEM image showed that the 2,4-dinitrophenylhydrazine functionalized magnetite nanoparticles had spherical shapes with the size of 20-35 nm. The obtained results showed that with 20 min of mixing time, 60 mg/L of coagulant, 30 min of settling time and pH equal to 7, the removal efficiency of BOD, COD and TDS increased to 98%, 94% and 99.2%. 2,4-dinitrophenylhydrazine functionalized magnetite nanoparticles can be used as an effective and available coagulant to remove BOD, COD and TDS from municipal wastewater.

**Keywords:** BOD, COD, Functionalized magnetite nanoparticles, Municipal wastewater, TDS.