

# Đặc trưng và khả năng hấp phụ nitrate của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub>

Nguyễn Trung Thành<sup>1</sup>, Phan Phước Toàn<sup>1,2</sup>, Lê Ngọc Hăng<sup>1</sup>, Phan Hoàng Sang<sup>1</sup>, Nguyễn Thị Thu Trinh<sup>1</sup>, Nguyễn Thị Quỳnh Anh<sup>1</sup>, Trương Khanh Nhật Thảo<sup>1</sup>, Trần Lê Ba<sup>2</sup>

**Tóm tắt**—Vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> trên cơ bản là silica được tổng hợp bằng phương pháp tẩm với hợp chất triamine silane để tạo các nhóm amine hoạt tính trên bề mặt chất mang SiO<sub>2</sub> và được ứng dụng làm chất hấp phụ nitrate trong môi trường nước. Đặc trưng cơ bản của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> được xác định bằng các kỹ thuật như TGA, FTIR, BET, SEM. Khả năng hấp phụ ion nitrate và độ bền của vật liệu được so sánh với nhựa trao đổi anion thương mại (Akualite A420). Kết quả cho thấy vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> có khả năng hấp phụ ion nitrate cao, gấp ~1,14 lần so với Akualite A420 tính theo hiệu quả hấp phụ. Điều này có thể là do ái lực mạnh đối với ion nitrate của các nhóm amine trên bề mặt chất mang SiO<sub>2</sub>. Ngoài ra, kết quả thực nghiệm đã chứng minh vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> có độ bền tốt (đạt hiệu suất ổn định sau 10 lần tái sinh).

**Từ khóa**—triamine, silica oxide; Amine-SiO<sub>2</sub>; hấp phụ nitrate, dung dịch nitrate

## 1. GIỚI THIỆU

Hiện nay, sự phát triển ngày càng mạnh mẽ của các ngành sản xuất nông nghiệp, công nghiệp... đã tạo ra nhiều loại chất thải khác nhau, làm cho môi trường nước ngày càng ô nhiễm. Trong đó, việc loại bỏ nitrate (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) ra khỏi các nguồn nước là vấn đề thường xuyên phải đối mặt. Nồng độ của các hợp chất chứa nitrogen gây hại như ammonium, nitrite, nitrate thường được phát hiện trong các nguồn nước cấp và nhiều loại nước thải khác nhau [1]. Nguyên nhân có thể là do các

quy trình xử lý nước thải không đạt hiệu quả và việc sử dụng quá nhiều phân bón chứa nitrogen trong sản xuất nông nghiệp. Nồng độ nitrate cao là một trong những nguy cơ đối với sức khỏe con người, có thể dẫn đến các vấn đề như “hội chứng trẻ xanh” – methemoglobinemia [2, 3]. Trong khi đó, các ion nitrate có thể chuyển đổi thành các ion nitrite độc hại (nitrosamine) làm gia tăng nguy cơ ung thư cho con người [4, 5]. Chính vì vậy, Tổ chức Y tế Thế giới (WHO) đã đưa ra giới hạn nồng độ NO<sub>3</sub><sup>-</sup> trong nước uống là 25 mg/L [6]. Ở Việt Nam, tổng nồng độ NO<sub>3</sub><sup>-</sup> trong nước ăn uống cũng được giới hạn tối đa 50 mg/L theo Quy chuẩn Kỹ thuật Quốc gia về chất lượng nước ăn uống của Bộ Y tế (QCVN 01:2009/BYT).

Nhiều kỹ thuật khác nhau đã được nghiên cứu và áp dụng để xử lý NO<sub>3</sub><sup>-</sup> như phương pháp sinh học [7], trao đổi ion [8], khử hóa học [9, 10], keo tụ điện hóa [11, 12], kỹ thuật màng [13, 14], hấp phụ [15]. Trong đó, việc loại bỏ anion bằng quá trình hấp phụ thông qua cơ chế trao đổi ion được đánh giá là phương pháp hiệu quả, đơn giản và có chi phí thấp, đồng thời chất hấp phụ có khả năng tái sử dụng nhiều lần [16]. Do đó, các loại nhựa trao đổi ion đang được nghiên cứu khá nhiều trong thời gian gần đây [17-19]. Ngoài ra, các vật liệu silica mao quản trung bình (như SBA-15, MCM-48,..) cũng đã được nghiên cứu tổng hợp và biến tính thêm nhóm amine để loại bỏ các ion NO<sub>3</sub><sup>-</sup> theo cơ chế trao đổi ion khá hiệu quả [15, 20, 21]. Tuy nhiên, các vật liệu dạng này hầu như chưa được ứng dụng thực tế trong điều kiện ở Việt Nam bởi vì phương pháp điều chế phức tạp, dẫn đến giá thành cao và triển khai thực hiện tổng hợp khó khăn. Một điều nữa là trên thị trường Việt Nam hiện nay, các loại vật liệu nhựa trao đổi ion hầu như vẫn phải nhập

Ngày nhận bản thảo 07-05-2018; ngày chấp nhận đăng 09-07-2018; ngày đăng 20-11-2018

Nguyễn Trung Thành<sup>1</sup>, Phan Phước Toàn<sup>1,2</sup>, Lê Ngọc Hăng<sup>1</sup>, Phan Hoàng Sang<sup>1</sup>, Nguyễn Thị Thu Trinh<sup>1</sup>, Nguyễn Thị Quỳnh Anh<sup>1</sup>, Trương Khanh Nhật Thảo<sup>1</sup>, Trần Lê Ba<sup>2</sup> – <sup>1</sup>Trường Đại học An Giang; <sup>2</sup>Trường Đại học Bách Khoa, ĐHQG-HCM

\*Email: ntthanh@agu.edu.vn

khẩu (chủ yếu từ Trung Quốc). Chính vì vậy, việc nghiên cứu chế tạo thành công một vật liệu mới, rẻ tiền, hiệu quả và có khả năng ứng dụng, phù hợp với điều kiện ở Việt Nam là điều cần thiết và mang nhiều ý nghĩa thực tiễn.

Trong nghiên cứu này, một loại SiO<sub>2</sub> thương mại rẻ tiền (dạng bột công nghiệp, có xuất xứ Trung Quốc) lần đầu tiên được sử dụng như là chất mang để gắn các nhóm amine hoạt tính lên bề mặt và ứng dụng loại bỏ các ion NO<sub>3</sub><sup>-</sup> trong môi trường nước nhằm giải quyết nhu cầu vật liệu trong công nghiệp xử lý nước. Mục tiêu cụ thể bao gồm (i) tổng hợp và phân tích các đặc trưng cơ bản của vật liệu; (ii) xác định khả năng hấp phụ ion NO<sub>3</sub><sup>-</sup> trong dung dịch và độ bền của vật liệu tổng hợp so với vật liệu thương mại có sẵn trên thị trường.

## 2. VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP

### Hóa chất

SiO<sub>2</sub>, NaOH, HCl (xuất xứ Trung Quốc); triamine silane, toluene, pentane (được cung cấp bởi công ty Merck); nước cất khử ion (DI water) được sử dụng trong quá trình tổng hợp chất hấp phụ. KBr, các dung dịch chuẩn NO<sub>3</sub><sup>-</sup> (được cung cấp bởi công ty Merck) được sử dụng trong các phân tích đặc trưng của vật liệu và đánh giá hàm lượng NO<sub>3</sub><sup>-</sup> trong các mẫu thí nghiệm.

Nhựa trao đổi anion được sử dụng như một vật liệu thương mại (có tên gọi Akualite A420 - xuất xứ Trung Quốc) so sánh với vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub>.

### Tổng hợp vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub>

Vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> được tổng hợp theo qui trình như sau: một hỗn hợp chất mang SiO<sub>2</sub> và nước khử ion với tỷ lệ 0,3 mL/g SiO<sub>2</sub> được cho vào bình cầu thủy tinh hai cổ chứa 150 mL dung dịch toluene. Bình cầu chứa mẫu được nhúng vào bể dầu silicone với nhiệt độ được thiết lập khoảng 85 °C (được theo dõi bằng nhiệt kế và điều khiển bằng hệ thống điều khiển nhiệt độ bên ngoài). Tiếp theo triamine silane (tỷ lệ 3 mL/g SiO<sub>2</sub>) được cho vào hỗn hợp trên và khuấy trộn liên tục 16 giờ ở nhiệt độ 85 °C. Cuối cùng sản phẩm thu được (có màu vàng nhạt) sau khi lọc rửa với pentane để loại toluene và sấy ở nhiệt độ 100 °C trong 1 giờ [22].

### Thực nghiệm hấp phụ nitrate trong môi trường dung dịch ở điều kiện phòng thí nghiệm

Đối với các thí nghiệm nghiên cứu khả năng loại bỏ NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, các mẫu vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> được khảo sát trên mẫu dung dịch NO<sub>3</sub><sup>-</sup> có nồng độ là 10 ppm

với liều lượng 30 mg/50 mL dung dịch. Sau thời gian hấp phụ, chất hấp phụ được tách ra bằng cách lọc với giấy lọc Whatman 41 và dung dịch chiết sau lọc được tiến hành phân tích hàm lượng NO<sub>3</sub><sup>-</sup> theo phương pháp SMEWW 4500-NO<sub>3</sub>-E:2012 để đánh giá hiệu quả hấp phụ. Các thí nghiệm đều được lặp lại 4 lần.

Lưu ý rằng: trước khi thực hiện quá trình hấp phụ NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, các vật liệu hấp phụ được hoạt hóa với dung dịch HCl 0,1 M trong thời gian 3 giờ (tỷ lệ 1 g vật liệu/1000 mL acid) ở điều kiện khí quyển.

Đối với thí nghiệm đánh giá độ bền, vật liệu sau khi hấp phụ NO<sub>3</sub><sup>-</sup> được tái sinh và tái sử dụng 10 lần với các điều kiện tương tự như thí nghiệm trước đó. Quá trình tái sinh vật liệu sau hấp phụ được thực hiện tương tự như quá trình hoạt hóa vật liệu đã mô tả ở trên. Các thí nghiệm được lặp lại 4 lần.

### Phân tích đặc trưng của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub>

Đặc trưng hình dạng của Amine-SiO<sub>2</sub> được chụp ảnh bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM). Đặc trưng thành phần hóa học bề mặt của các mẫu Amine-SiO<sub>2</sub> được thực hiện bằng phương pháp quang phổ hồng ngoại (FTIR) với máy Alpha – Bruker. Hàm lượng amine trên chất mang SiO<sub>2</sub> được xác định bằng phương pháp nhiệt trọng trường (TGA). Diện tích bề mặt riêng của chất mang được xác định bằng phương pháp B.E.T (máy Porous Materials, BET-202A). Lưu ý rằng, mẫu SiO<sub>2</sub> trước khi xác định diện tích bề mặt riêng được đuổi khí ở nhiệt độ 150 °C trong thời gian 3 giờ để khử nước từ các lỗ xốp oxide có kích thước meso và micro. Kết quả B.E.T thu được là kết quả đối với mẫu SiO<sub>2</sub> sau khi nung.

### Tính toán hiệu quả hấp phụ nitrate của vật liệu hấp phụ

Hiệu quả xử lý nitrate trong dung dịch được tính toán dựa vào công thức sau:

$$H\% = \frac{C_o - C_t}{C_o} \times 100$$

Trong đó, C<sub>o</sub> và C<sub>t</sub> lần lượt là nồng độ NO<sub>3</sub><sup>-</sup> ban đầu và sau khi tiếp xúc với một khoảng thời gian thích hợp đối với các vật liệu hấp phụ tương ứng (Amine-SiO<sub>2</sub> và nhựa trao đổi ion Akualite A420).

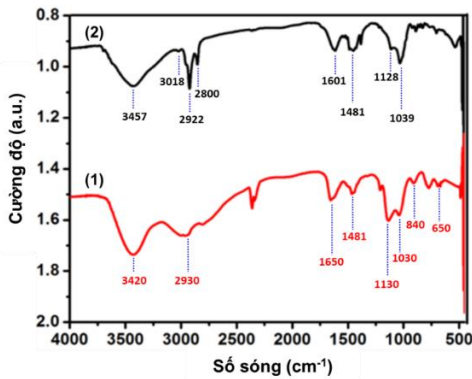
## 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

**Đặc trưng của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub>, nhựa trao đổi anion và SiO<sub>2</sub>**

Đặc trưng hồng ngoại của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> và nhựa Akualite A420 được thể hiện trong Hình 1. Kết quả cho thấy rằng với Akualite A420, các mũi dao động đặc trưng cho liên kết styrene-divinylbenzene trong cấu trúc nhựa đã được ghi nhận. Cụ thể, khoảng dao động từ số sóng 2800 đến 3060 cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho các liên kết khác nhau trong cấu trúc polystyrene, trong đó mũi ở 3018 và 2922 cm<sup>-1</sup> tương ứng cho các liên kết C-H trong vòng và nhóm -CH<sub>2</sub> trong ma trận liên kết ngang của polystyrene [16]. Khoảng dao động từ số sóng 3360 đến 3590 cm<sup>-1</sup> đặc trưng cho liên kết đơn O-H với mũi cao nhất ở vị trí 3457 cm<sup>-1</sup>, trong khi đó mũi ở 1601 cm<sup>-1</sup> là mũi dao động đặc trưng cho các liên kết đơn C-C của vòng styrene [23]. Dãy dao động ở khoảng 1,481 cm<sup>-1</sup> là do biến dạng đối xứng và bất đối xứng của các nhóm methyl trong gốc amine bậc 4 (một nhóm chức năng đặc trưng của nhựa trao đổi anion) [24, 25]. Ngoài ra, kết quả ghi nhận mũi ở 1039 và 1128 cm<sup>-1</sup> có thể là đặc trưng từ các dao động biến dạng của vòng benzen do ma trận liên kết styrene-divinylbenzene của nhựa [26].

Đối với mẫu Amine-SiO<sub>2</sub>, kết quả FTIR ghi nhận các liên kết đặc trưng bao gồm Si-H (650–840 cm<sup>-1</sup>); Si-O-Si (1030-1130 cm<sup>-1</sup>); C=C (1650 cm<sup>-1</sup>); C-H (2930 cm<sup>-1</sup>); -OH (3420 cm<sup>-1</sup>) [27]. Đặc biệt, mũi dao động đặc trưng của nhóm chức amine ở vị trí số sóng 1481 cm<sup>-1</sup> tương tự như phổ FTIR của mẫu nhựa Akualite A420 cũng được ghi nhận. Điều này chứng tỏ các gốc amine đã được gắn thành công lên chất mang SiO<sub>2</sub>.

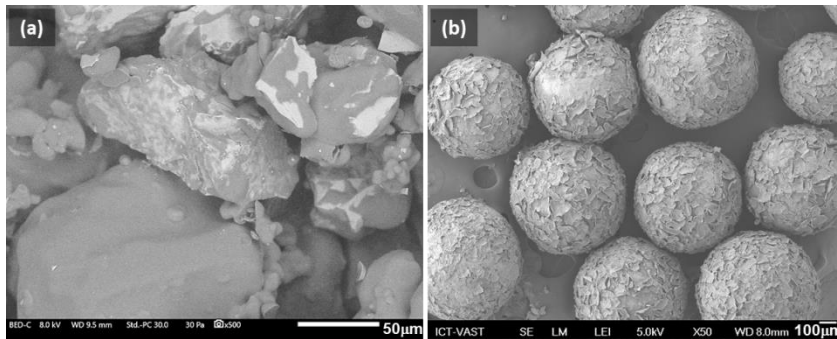
Hình thái học của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> và nhựa Akualite được thể hiện qua ảnh hiển vi điện tử quét (Hình 2). Kết quả quan sát cho thấy Amine-SiO<sub>2</sub> (Hình 2a) có hình dạng không đồng đều với những hạt có cấu trúc riêng biệt; trong khi đó nhựa Akualite (Hình 2b) có hình dạng và kích thước đồng đều, bề mặt khá gồ ghề. Mặt khác, kết quả phân tích diện tích bề mặt riêng cho thấy quá trình tẩm amine lên chất mang SiO<sub>2</sub> hầu như không ảnh hưởng đến vật liệu. Hàm lượng amine trên bề mặt chất mang SiO<sub>2</sub> được xác định bằng phương pháp nhiệt trọng trường (TGA) dựa trên nguyên tắc thay đổi khối lượng vật liệu ở vùng nhiệt độ 550 °C đến 600 °C. Kết quả ghi nhận như trong Bảng 1.



**Hình 1.** Phổ FTIR của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> (1) và Akualite A420 (2)

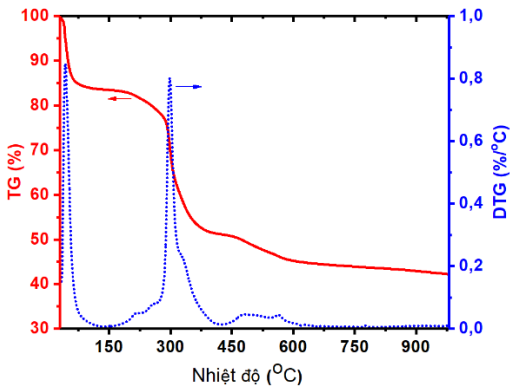
**Bảng 1.** Diện tích bề mặt riêng và lượng amine trên bề mặt chất mang của vật liệu SiO<sub>2</sub> và Amine-SiO<sub>2</sub>

Tên mẫu	Diện tích bề mặt riêng (m <sup>2</sup> /g)	Hàm lượng amine trên chất mang (%)
SiO <sub>2</sub>	32,5	Không phát hiện
Amine-SiO <sub>2</sub>	34,6	~1,6



**Hình 2.** Ảnh SEM của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> (a) và Akualite A420 (b)

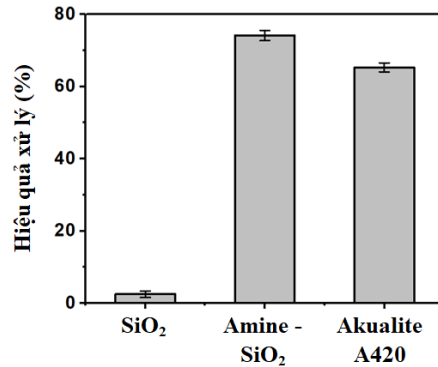
Hình 3 thể hiện kết quả phân tích nhiệt của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> trên vùng nhiệt độ phân tích rộng từ 30 °C đến 975 °C, trong đó có thể chia ra 3 giai đoạn mất khối lượng đặc trưng. Giai đoạn đầu từ 30 °C đến 150 °C mất ~ 15% khối lượng chính là do quá trình giải phóng hơi ẩm và các hợp chất bay hơi có trọng lượng phân tử thấp với đỉnh cực nhiệt ở khoảng 50-100 °C [28, 29]. Sự mất khối lượng ở giai đoạn thứ hai dao động từ 150 °C đến 550 °C được cho là do sự mất nước của các nhóm hydroxyl ở nhiệt độ cao và quá trình nhiệt phân các thành phần hữu cơ trong cấu trúc của vật liệu [29]. Quá trình nhiệt phân các gốc amine xảy ra ở giai đoạn thứ ba khi nhiệt độ tăng từ 550 °C đến 600 °C [30]. Sau giai đoạn này, khối lượng của mẫu giảm ~ 55%, các phản ứng gần như đã xảy ra hoàn toàn và chỉ còn lại thành phần silica [28].



Hình 3. Đường cong TG-DTG của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub>

### Khả năng hấp phụ nitrate của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub>, nhựa trao đổi anion và SiO<sub>2</sub>

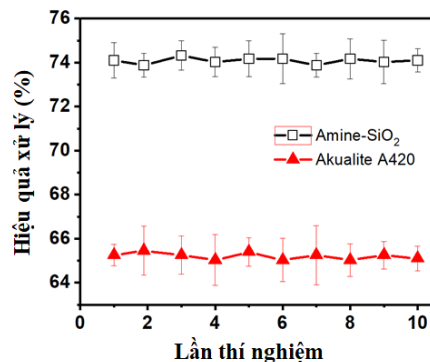
Kết quả nghiên cứu (Hình 4) cho thấy vật liệu tổng hợp Amine-SiO<sub>2</sub> cho hiệu quả xử lý NO<sub>3</sub><sup>-</sup> rất tốt, gấp ~1,14 lần so với nhựa trao đổi ion Akualite A420 (đạt hiệu suất ~ 74% so với 65% tương ứng) và cao hơn rất nhiều lần so với vật liệu SiO<sub>2</sub> thông thường. Mẫu SiO<sub>2</sub> hầu như không có khả năng xử lý NO<sub>3</sub><sup>-</sup> (chỉ đạt ~ 2,5%), tuy nhiên khi đóng vai trò là chất mang cho các gốc amine lại có khả năng hấp phụ NO<sub>3</sub><sup>-</sup> cực tốt và hoàn toàn có khả năng cạnh tranh với các vật liệu thương mại phổ biến trên thị trường. Điều này có thể là do ái lực mạnh đối với ion NO<sub>3</sub><sup>-</sup> của các nhóm amine trên bề mặt chất mang SiO<sub>2</sub>.



Hình 4. Hiệu quả xử lý nitrate của vật liệu (trung bình ± sai số chuẩn, n = 4)

### Độ bền hấp phụ nitrate của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> và nhựa trao đổi anion

Các vật liệu sau khi hấp phụ NO<sub>3</sub><sup>-</sup> được tái sinh bằng dung dịch HCl 0,1 M (như mô tả trong phần thực nghiệm). Độ bền của vật liệu thể hiện qua hiệu quả xử lý NO<sub>3</sub><sup>-</sup> sau nhiều lần tái sinh được trình bày trong Hình 5. Kết quả cho thấy vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> và Akualite A420 (đối chứng) đều có độ bền rất tốt, hiệu quả xử lý sau 10 lần tái sinh vẫn ổn định và tốt như vật liệu mới. Đây là một trong những yếu tố quan trọng khi thương mại hóa sản phẩm.



Hình 5. Độ bền của vật liệu (trung bình ± sai số chuẩn, n = 4)

## 4. KẾT LUẬN

Vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> đã được tổng hợp thành công và được xác định đặc trưng cơ bản bằng các phân tích hiện đại như SEM, FTIR, TGA, BET. Vai trò của nhóm chức năng amine đã được thể hiện rõ qua khả năng hấp phụ NO<sub>3</sub><sup>-</sup> của vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub>. Khi so sánh với vật liệu nhựa thương mại Akualite A420, vật liệu Amine-SiO<sub>2</sub> cũng cho thấy hiệu quả xử lý NO<sub>3</sub><sup>-</sup> cao hơn. Nghiên cứu này góp phần mở đường cho việc ứng dụng vật liệu để

loại bỏ các thành phần ô nhiễm trong môi trường nước.

**Lời cảm ơn:** Chân thành cảm ơn Trường Đại học An Giang đã hỗ trợ thiết bị phân tích để hoàn thành nghiên cứu này.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] D. Wan, H. Liu, R. Liu, J. Qu, S. Li, J. Zhang, "Adsorption of nitrate and nitrite from aqueous solution onto calcined (Mg–Al) hydrotalcite of different Mg/Al ratio", *Chemical Engineering Journal*, vol. 195–196, pp. 241–247, 2012.
- [2] L.D. Diên, "Cảnh báo lạm dụng hoá chất trong lương thực, thực phẩm", [cited 2018 March 16th] Available: <http://dantri.com.vn/suc-khoe/hoi-chung-tre-xanh-vi-an-rau-nhiem-doc-1265121168.htm>, 2010.
- [3] Ö. Neşe, K.T. Ennil, "A kinetic study of nitrite adsorption onto sepiolite and powdered activated carbon", *Desalination*, vol. 223, pp. 174–179, 2008.
- [4] D. Majumdar, N. Gupta, "Nitrate pollution of groundwater and associated human health disorders", *Indian J. Environ. Hlth.* 2, vol. 42, pp. 28–39, 2000.
- [5] C.H. Tate, K.F. Arnold, "Health and aesthetic aspects of water quality", New York: McGraw-Hill Inc., 1990.
- [6] I. Mikami, Y. Sakamoto, Y. Yoshinaga, T. Okuhara, "Kinetic and adsorption studies on the hydrogenation of nitrate and nitrite in water using Pd-Cu on active carbon support", *Applied Catalysis B: Environmental*, vol. 44, pp. 79–86, 2003.
- [7] J.P. Bassin, R. Kleerebezem, M. Dezotti, M.C. van Loosdrecht, "Simultaneous nitrogen and phosphate removal in aerobic granular sludge reactors operated at different temperatures", *Water Res.* vol. 46, pp. 3805–3816, 2012.
- [8] X. Xu, B.Y. Gao, Q.Y. Yue, Q.Q. Zhong, "Preparation of agricultural by-product based anion exchanger and its utilization for nitrate and phosphate removal", *Bioresource Technology*, vol. 101, pp. 8558–8564, 2010.
- [9] Y. Liou, S.L. Lo, C.J. Lin, C.Y. Hu, W.H. Kuan, S. Weng, "Methods for accelerating nitrate reduction using zerovalent iron at near-neutral pH: effects of H<sub>2</sub> - reducing pretreatment and copper", *Deposition*, vol. 39, 2006.
- [10] Y.M. Chen, C.W. Li, S.S. Chen, "Fluidized zero valent iron bed reactor for nitrate removal", *Chemosphere*, vol. 59, pp. 753–759, 2005.
- [11] E. Lacasa, P. Cañizares, C. Sáez, F.J. Fernández, M.A. Rodrigo, "Removal of nitrates from groundwater by electrocoagulation", *Chemical Engineering Journal*, vol. 171, pp. 1012–1017, 2011.
- [12] Ş. İrdemez, Y.Ş. Yildiz, V. Tosunoğlu, "Optimization of phosphate removal from wastewater by electrocoagulation with aluminum plate electrodes", *Separation and Purification Technology*, vol. 52, pp. 394–401, 2006.
- [13] J.H. Ahn, K.H. Choo, H.S. Park, "Reverse osmosis membrane treatment of acidic etchant wastewater: Effect of neutralization and polyelectrolyte coating on nitrate removal", *Journal of Membrane Science*, vol. 310, pp. 296–302, 2008.
- [14] E.N. Peleka, P.P. Mavros, D. Zamboulis, K.A. Matis, "Removal of phosphates from water by a hybrid flotation–membrane filtration cell", *Desalination*, vol. 198, pp. 198–207, 2006.
- [15] R. Saad, K. Belkacemi, S. Hamoudi, "Adsorption of phosphate and nitrate anions on ammonium-functionalized MCM-48: Effects of experimental conditions", *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 311, pp. 375–381, 2007.
- [16] A. Sowmya, S. Meenakshi, "Removal of nitrate and phosphate anions from aqueous solutions using strong base anion exchange resin", *Desalination and Water Treatment*, vol. 51, pp. 7145–7156, 2013.
- [17] H.T. Banu, S. Meenakshi, "Synthesis of a novel quaternized form of melamine–formaldehyde resin for the removal of nitrate from water", *Journal of Water Process Engineering*, vol. 16, pp. 81–89, 2017.
- [18] M. Kalaruban, P. Loganathan, W.G. Shim, J. Kandasamy, G. Naidu, T.V. Nguyen, et al., "Removing nitrate from water using iron-modified Dowex 21K XLT ion exchange resin: Batch and fluidised-bed adsorption studies", *Separation and Purification Technology*, vol. 158, pp. 62–70, 2016.
- [19] M. Nujić, D. Milinković, M. Habuda-Stanić, "Nitrate removal from water by ion exchange", *Croatian Journal of Food Science and Technology*, vol. 9, pp. 182–186, 2017.
- [20] S. Hamoudi, R. Saad, K. Belkacemi, "Adsorptive removal of phosphate and nitrate anions from aqueous solutions using ammonium-functionalized mesoporous silica", *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 46, pp. 8806–8812, 2007.
- [21] H. Safia, E. N. Abir, B. Maissa, B. Khaled, "Adsorptive removal of nitrate and phosphate anions from aqueous solutions using functionalised SBA-15: Effects of the organic functional group", *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, vol. 90, pp. 34–40, 2012.
- [22] N.T. Thanh, "amine-bearing activated rice husk ash for CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>S gas removals from biogas", *KKU Engineering Journal*, vol. 43, no. S3, pp. 396–398, 2016.
- [23] L. Lazar, B. Bandrabur, T.F. Ramona-Elena, M. Drobotă, L. Bulgariu, G. Gutt, "FTIR analysis of ion exchange resins with application in permanent hard water softening", *Environmental Engineering and Management Journal*, vol. 13, no. 9, pp. 2145–2152, 2014.
- [24] A. Wołowicz, Z. Hubicki, "Sorption of palladium(II) complexes onto the styrene–divinylbenzene anion exchange resins", *Chemical Engineering Journal*, vol. 152, pp. 72–79, 2009.
- [25] M.R. Gandhi, G. Kalaivani, S. Meenakshi, "Sorption of chromate and fluoride onto duolite A171 anion exchange resin – a comparative study", *Muniyappan Rajiv Gandhi et al./Elixir Pollution*, vol. 32, 2034–2040, 2011.
- [26] B. Lee, L.L. Bao, H.J. Im, S. Dai, E.W. Hagaman, J.S. Lin, Synthesis and Characterization of Organic–Inorganic Hybrid Mesoporous Anion-Exchange Resins for Perrhenate (ReO<sub>4</sub><sup>-</sup>) *Anion Adsorption* 19, 2003.
- [27] D.M. Ibrahim, S.A. El-Hemaly, F.M. Abdel-Kerim, "Study of rice-husk ash silica by infrared spectroscopy", *Thermochimica Acta*, vol. 37, pp. 307–314, 1980.
- [28] Y. Zhang, X.L. Song, S.T. Huang, B.Y. Geng, C.H. Chang, I.Y. Sung, "Adsorption of nitrate ions onto activated carbon prepared from rice husk by NaOH activation", *Desalination and Water Treatment*, vol. 52, pp. 4935–4941, 2014.

- [29] W. Song, B. Gao, X. Xu, F. Wang, N. Xue, S. Sun, *et al.*, “Adsorption of nitrate from aqueous solution by magnetic amine-crosslinked biopolymer based corn stalk and its chemical regeneration property”, *Journal of hazardous materials*, vol. 304, pp. 280–290, 2016.
- [30] E. Vunain, N. Opembe, K. Jalama, A. Mishra, R. Meijboom, “Thermal stability of amine-functionalized MCM-41 in different atmospheres”, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, vol. 115, no. 2, pp. 1487–1496, 2014.

## Characterizations and nitrate adsorption capacity of Amine-SiO<sub>2</sub> material

Nguyen Trung Thanh<sup>1</sup>, Phan Phuoc Toan<sup>1,2</sup>, Le Ngoc Hang<sup>1</sup>, Phan Hoang Sang<sup>1</sup>, Nguyen Thi Thu Trinh<sup>1</sup>, Nguyen Thi Quynh Anh<sup>1</sup>, Truong Khanh Nhat Thao<sup>1</sup>, Tran Le Ba<sup>2</sup>

<sup>1</sup>An Giang University, <sup>2</sup>Ho Chi Minh City University of Technology, VNU-HCM  
Corresponding author: ntthanh@agu.edu.vn

Received 07-05-2018; Accepted 09-07-2018; Published 20-11-2018

**Abstract**—Amine-SiO<sub>2</sub> material (basically on silicon dioxide) was synthesized by the grafting method with triamine silane to form activated amine groups on the surface of SiO<sub>2</sub> support and was applied as a novel adsorbent for nitrate removal from aqueous solution. The characterizations of Amine-SiO<sub>2</sub> were determined by using TGA, FTIR, BET, SEM. Nitrate adsorption capacity and durability of Amine-SiO<sub>2</sub> were compared with the anion exchange resin (Aqualite A420 commercial). The results showed that Amine-SiO<sub>2</sub> had high nitrate

adsorption capacity, ~ 1.14 fold higher than the Aqualite A420 ion exchange resin, based on the adsorption efficiency. This might be due to a strong affinity for nitrate ions of the activated amine groups on the surface of SiO<sub>2</sub> support. In addition, the experimental results also proved that Amine-SiO<sub>2</sub> material had good durability (stable performance after 10 regeneration times).

**Keywords**—triamine, silica dioxide, Amine-SiO<sub>2</sub>, nitrate adsorption, nitrate solution.