

بررسی کارایی پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید و سود

در حذف فلوراید از محلول‌های آبی

منصور ضرابی^۱، سید محمد آرامی^{*۲}

۱. گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی البرز، کرج، ایران

۲. عضو کمیته تحقیقات دانشجویی دانشگاه علوم پزشکی البرز، کرج، ایران

۳. دانشجوی کارشناسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی، تهران ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۹۲/۹/۲۶؛ تاریخ پذیرش: ۹۳/۲/۱۰

چکیده

زمینه و هدف: فلوراید از جمله عناصر ضروری برای سلامت انسان می‌باشد و در مقادیر استاندارد از پوسیدگی دندان جلوگیری می‌کند. اگر میزان فلوراید بیش از مقادیر استاندارد گردد باعث بروز برخی از بیماری‌ها از قبیل سندرم آلزایمر، عقیمی، شکنندگی استخوانها و اختلال در عملکرد غده تیروئید می‌گردد. بنابراین حذف مقادیر بیش از حد فلوراید برای حفاظت از سلامت انسان و جلوگیری از آلودگی محیط زیست ضروری به نظر می‌رسد.

مواد و روش‌ها: در این مطالعه از پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید و سود جهت حذف یون فلوراید استفاده گردید. پارامترهای مختلفی از قبیل pH (۱۰-۲)، دمای محلول (۲۰ تا ۶۰ درجه سانتی گراد)، دوز جاذب (g/L) (۲-۱۰)، غلظت اولیه فلوراید (۲۰-۵ mg/L) و زمان تماس مورد بررسی قرار گرفت. آزمایشات در سیستم ناپیوسته با تغییر دادن یک پارامتر و ثابت نگهداشتن سایر پارامترها انجام گردید.

یافته‌ها: نتایج نشان داد که با افزایش زمان تماس، غلظت اولیه یون فلوراید و دوز جاذب کارایی حذف افزایش می‌یابد. بیشترین میزان حذف برای فلوراید در pH برابر ۶، دوز جاذب ۱۰ g/L، دمای ۲۰ درجه سانتی گراد، زمان تماس ۹۰ دقیقه و غلظت ۲۰ mg/L مشاهده گردید. همچنین بیشترین میزان حذف فلوراید توسط جاذب اصلاح شده با هیدروکلریک اسید صورت گرفت. بطور کلی نتایج نشان داد که پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید در زمان تماس ۹۰ دقیقه، pH=۶، دمای ۲۰ درجه و غلظت ۲۰ mg/L از فلوراید، در حدود ۹۶ درصد از فلوراید را حذف می‌کند. نتیجه‌گیری: نتایج نشان داد که پوکه معدنی اصلاح شده با اسید کلریدریک و هیدروکسید سدیم قابلیت بالایی در حذف فلوراید از خود نشان می‌دهند و این قابلیت در مورد پوکه معدنی اصلاح شده با اسید کلریدریک بیشتر بود.

کلمات کلیدی: فلوراید، پوکه معدنی، جذب سطحی.

مقدمه

بدن انسان به انواع و اقسام مختلفی از مواد آلی و معدنی نیاز دارد که برای رشد بدن انسان ضروری می‌باشند. برخی از این مواد در مقادیر ناچیز برای بدن انسان بسیار ضروری می‌باشند در حالی که در مقادیر بالاتر بشدت برای انسان سمی تلقی می‌شوند. بدن انسان نیازهای خود را از طریق خوردن، آشامیدن و تنفس به دست می‌آورد که دو مورد اول عمده ترین راههای ورود مواد به بدن انسان می‌باشند.^۱ یکی از عمده ترین مواد معدنی که در طول رشد برای سلامت بدن انسان ضروری است ماده معدنی فلوراید می‌باشد. فلوراید یکی از عمده ترین مواد معدنی در پوسته زمین است و در مقادیر متفاوتی در منابع آبی یافت می‌شود. در مناطق صنعتی نیز هوای تنفسی نیز می‌تواند حاوی مواد فلوراید دار باشد.^۲ عمده ترین راه مواجهه با فلوراید از طریق آب آشامیدنی است. فلوراید در مقادیر مطلوب برای رشد و استحکام استخوانها بخصوص دندانها ضروری می‌باشد، ولی چنانچه از مقادیر مطلوب تجاوز کند می‌تواند باعث پوسیدگی دندان و فلوروزیس اسکلتی در انسان شود.^۳ سازمان بهداشت جهانی (WHO) مقادیر مطلوب فلوراید در آب آشامیدنی را $0.7-1.2 \text{ mg/L}$ ذکر کرده است.^۴ بنابراین چنانچه مقادیر فلوراید از این حد کمتر باشد، باید مبادرت به ایجاد واحدهای فلوریداسیون در تصفیه خانه‌های آب آشامیدنی نمود و در صورتی که مقدار فلوراید از این حد تجاوز کند، باید با استفاده از روشهای مناسب مقادیر اضافی فلوراید از آب حذف شود.^۵ فلوراید از جمله یون‌های آلاینده آب آشامیدنی می‌باشد که اغلب از فرآیند جذب سطحی برای حذف آن استفاده می‌گردد. از گذشته آلومینای فعال و زغال استخوان به عنوان جاذب‌های موثر جهت حذف فلوراید مورد تاکید قرار گرفته اند.^۶ با این وجود، محققان مختلفی در سال‌های اخیر از جاذب‌های طبیعی و همچنین اشکال مختلف اصلاح شده آنها

برای حذف فلوراید استفاده کرده اند. برای مثال می‌توان به استفاده از اکسید منیزیم-سزیم،^۷ جاذب سرامیکی^۸، زئولیت طبیعی اصلاح شده با یونهای سه ظرفیتی آهن^۹، خاکستر فرار اصلاح شده با منگنز^{۱۰} و گرانول‌های بنتونیت اصلاح شده با اسید کلریدریک ۱ نرمال^{۱۱} اشاره کرد. پوکه معدنی از جمله مواد متخلل و آمورف می‌باشد که ترکیب عمده آن اکسید سیلیس و آلومینیوم است. پوکه معدنی از گذشته‌های دور در صنعت ساختمان سازی مورد استفاده قرار می‌گرفت. با این حال در سال‌های اخیر به عنوان یک جاذب متخلخل در صنعت تصفیه آب و فاضلاب نیز مورد توجه قرار گرفته است.^{۱۲} به همین منظور، پژوهش حاضر به بررسی کارایی پوکه معدنی اصلاح شده با اسید کلریدریک و هیدروکسید سدیم در جهت حذف فلوراید پرداخته است.

مواد و روشها

روش تهیه و آماده سازی جاذب

جاذب‌های مورد استفاده در این تحقیق از کوه‌های منطقه آذربایجان به صورت خام تهیه گردید. در ابتدای کار، جاذب‌های مورد استفاده به روش دستی خرد گردیده و با الک به اندازه‌های مش ۲۰ دسته بندی گردید. برای اصلاح جاذب‌های مورد استفاده از هیدروکلریک اسید و سود استفاده گردید. روش اصلاح به این ترتیب انجام گرفت که ابتدا یک بشر با حجم یک لیتر از جاذب‌های مورد استفاده پر گردید. سپس در داخل بشر موردنظر آنقدر هیدروکلریک اسید و سود ریخته شد که جاذب‌های مورد استفاده خیس گردند. جاذب‌های خیس شده به مدت ۲۴ ساعت و در دمای اتاق در داخل آزمایشگاه قرار داده شده اند تا واکنش‌های لازم بین جاذب و مواد شیمیایی صورت گیرد. بعد از ۲۴ ساعت، جاذب‌های موردنظر از داخل بشر خارج گردیده و با آب بدون یون شسته

شدند. شستشوی جاذب‌ها آنقدر ادامه یافت که مواد شیمیایی واکنش نداده از روی جاذب حذف گردند. در پایان جاذب‌های مورد استفاده به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۵۵ درجه سلسیوس در داخل فور قرار داده شدند تا کاملاً خشک گردند. بعد از ۲۴ ساعت، جاذب‌های موردنظر از داخل فور خارج گردیده و جهت انجام آزمایشات مورد استفاده قرار گرفتند. روش اصلاح و آماده سازی جاذب با کمی تغییرات و بر اساس روش ذکر شده در متون چاپ شده در سال‌های اخیر اتخاذ گردیده است^{۱۱}.

روش اندازه‌گیری فلوراید

جهت اندازه‌گیری یون فلوراید از روش اسپاندز به شماره 4500-F D مطابق با کتاب روش‌های استاندارد برای آنالیزهای آب و فاضلاب استفاده گردید. بر این اساس، به ۱۰ میلی لیتر نمونه حاوی فلوراید، ۲ میلی لیتر معرف اسپاندز اضافه کرده و بعد از ۱ دقیقه زمان تماس مقدار فلوراید نمونه موردنظر با استفاده از دستگاه DR5000 قرائت گردید^{۱۳}.

یافته‌ها

نتایج حاصل از تاثیر زمان تماس و غلظت اولیه یون فلوراید بر روی کارایی فرآیند حذف یون فلوراید

در شکل ۱ نتایج حاصل از تاثیر زمان تماس و غلظت اولیه یون فلوراید بر روی حذف فلوراید با استفاده از پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید (شکل a) و پوکه معدنی اصلاح شده با سود (شکل b) نشان داده شده است. همانطور که در این شکل نشان داده شده است، راندمان حذف یون فلوراید با افزایش زمان تماس و غلظت اولیه یون فلوراید افزایش می‌یابد و در ۹۰ دقیقه به نقطه تعادل می‌رسد. برای پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید، کارایی حذف در زمان تماس ۹۰ دقیقه برای غلظت‌های ۵، ۱۰، ۱۵ و ۲۰ mg/L از یون فلوراید به ترتیب برابر ۷۱، ۷۴، ۷۸ و ۸۵ درصد مشاهده گردید. برای پوکه معدنی اصلاح شده با سود نیز کارایی حذف در زمان تماس ۹۰ دقیقه برابر ۷۱، ۷۸، ۸۲ و ۸۵ درصد به

شدند. شستشوی جاذب‌ها آنقدر ادامه یافت که مواد شیمیایی واکنش نداده از روی جاذب حذف گردند. در پایان جاذب‌های مورد استفاده به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۵۵ درجه سلسیوس در داخل فور قرار داده شدند تا کاملاً خشک گردند. بعد از ۲۴ ساعت، جاذب‌های موردنظر از داخل فور خارج گردیده و جهت انجام آزمایشات مورد استفاده قرار گرفتند. روش اصلاح و آماده سازی جاذب با کمی تغییرات و بر اساس روش ذکر شده در متون چاپ شده در سال‌های اخیر اتخاذ گردیده است^{۱۱}.

روش انجام آزمایشات

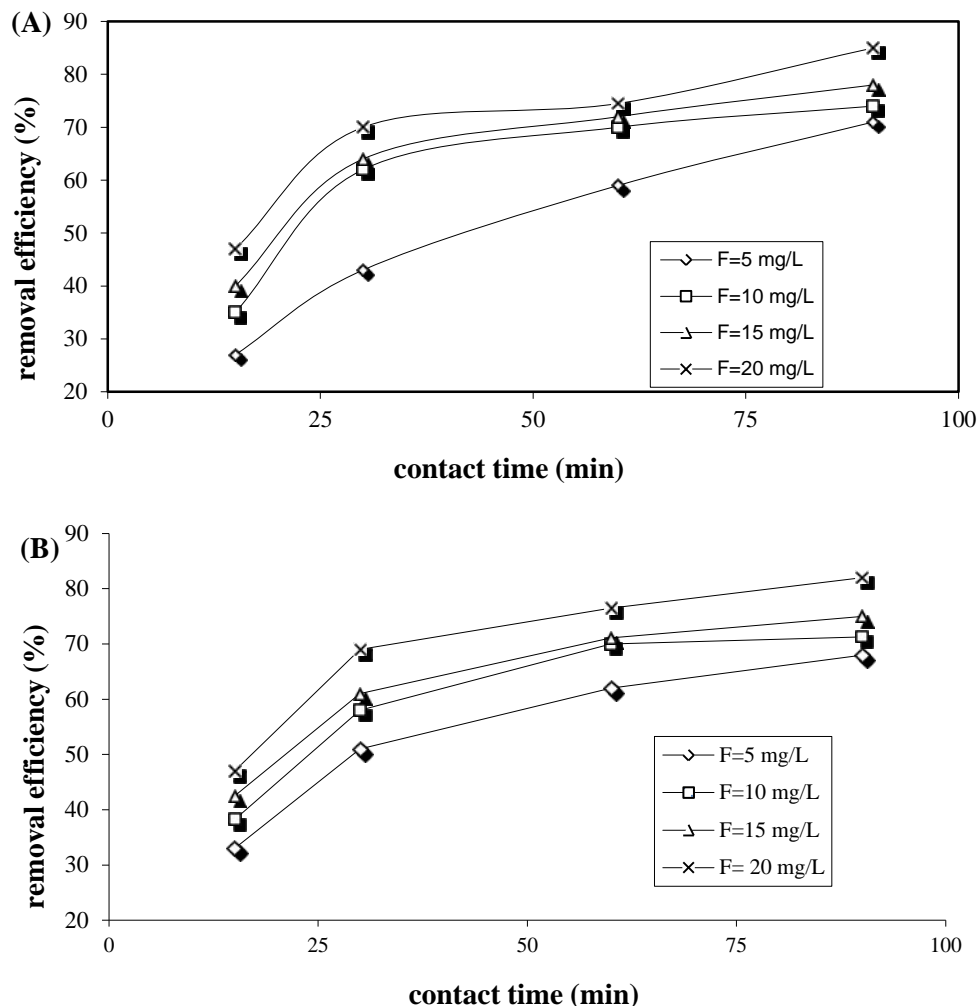
این تحقیق یک مطالعه بنیادی-کاربردی می‌باشد که بصورت سیستم ناپیوسته و در آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی البرز انجام گرفته است. در این مطالعه پارامترهای مورد بررسی جهت حذف فلوراید با پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید و سود شامل pH اولیه محلول (۱۱-۳)، زمان واکنش (۲۰۰-۵ دقیقه)، دمای واکنش (۶۰-۲۰ درجه سانتی گراد) غلظت اولیه جاذب (۱۰-۲ گرم در لیتر) و غلظت اولیه یون فلوراید (۲۰-۵ میلی گرم در لیتر) می‌باشند. روش انجام آزمایشات به این صورت می‌باشد که با تغییر دادن یک پارامتر و ثابت نگه داشتن سایر پارامترها، کارایی جاذب‌های مورد مطالعه در جهت حذف فلوراید مورد بررسی قرار گرفت. برای تعیین تاثیر زمان تماس بر روی کارایی حذف به صورت زیر عمل گردید. جهت بررسی تاثیر زمان تماس و همچنین بدست آوردن زمان تعادل، غلظت‌های ۵، ۱۰ و ۱۵ mg/L از فلوراید با اضافه کردن فلوراید سدیم به آب بدون یون تهیه گردید. سپس ۵۰۰ سی سی از محلول‌های موردنظر به بشرهای ۱ لیتری انتقال داده شده و pH هر یک از بشرها بر روی ۵ تنظیم گردید. بشرهای موردنظر بر روی میکسر قرار داده شده و بعد از اضافه کردن ۶ g/L از پوکه معدنی اصلاح شده به هر کدام از بشرهای

نمودار قرمز مربوط به پوکه معدنی اصلاح شده با سود می‌باشد. نتایج نشان داد که با افزایش میزان هر دو نوع جاذب، کارایی حذف افزایش قابل ملاحظه ای می‌نماید، بطوری که در میزان ۲ g/L از جاذب، کارایی حذف برای پوکه اصلاح شده با هیدروکلریک اسید و پوکه اصلاح شده با سود به ترتیب برابر ۵۵ و ۵۱ درصد مشاهده گردید و با افزایش دوز جاذب به ۱۰، راندمان حذف برای جاذب‌های مورد اشاره به ترتیب به ۹۳ و ۹۱ درصد افزایش یافت. بنابراین مشخص گردید که افزایش میزان جاذب باعث افزایش کارایی حذف خواهد شد.

ترتیب برای غلظت‌های ۵، ۱۰، ۱۵ و ۲۰ mg/L از یون فلوراید مشاهده گردید. بنابراین مشخص گردید که با افزایش زمان تماس کارایی حذف بطور قابل ملاحظه ای افزایش می‌یابد و در زمان تماس ۹۰ دقیقه به تعادل می‌رسد. بنابراین در سایر آزمایشات، زمان تماس برابر ۹۰ دقیقه در نظر گرفته شد.

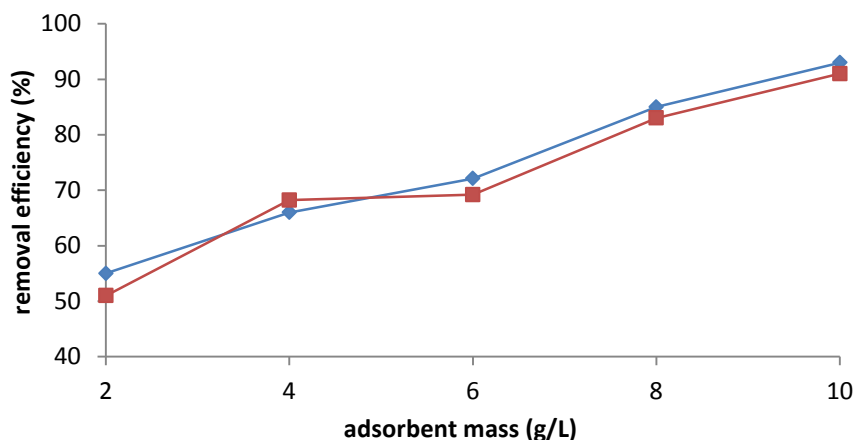
نتایج حاصل از تاثیر دوز جاذب بر روی کارایی فرآیند حذف یون فلوراید

نتایج حاصل از تاثیر میزان جاذب بر روی کارایی حذف یون فلوراید در شکل ۲ نشان داده شده است. در این شکل نمودار آبی مربوط به پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید و



شکل ۱: نتایج حاصل از تاثیر زمان تماس و غلظت اولیه یون فلوراید بر روی کارایی فرآیند حذف با استفاده از پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید

شکل (a) و پوکه معدنی اصلاح شده با سود (شکل b) [دمای ۲۰ درجه سلسیوس، pH برابر ۶، دوز جاذب برابر ۶ g/L]

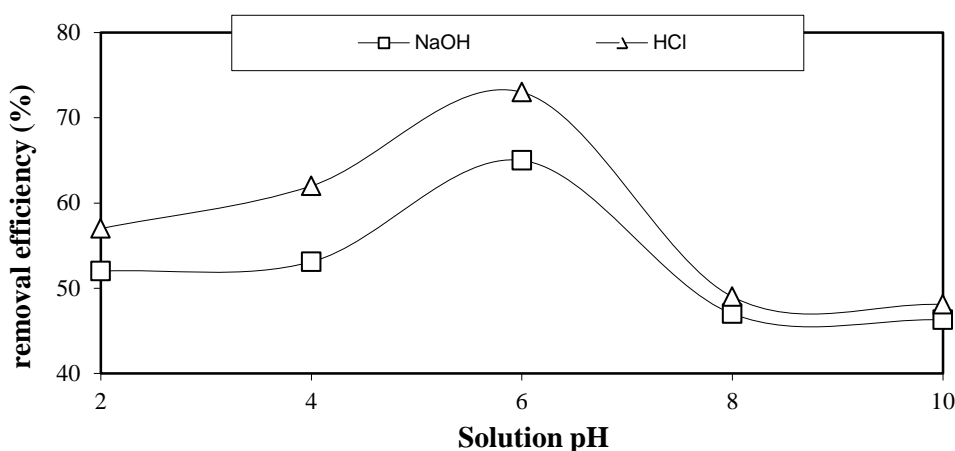


شکل ۲: نتایج حاصل از تاثیر دوز جاذب بر روی کارایی حذف فلوراید با استفاده از پوکه معدنی اصلاح شده (غلظت فلوراید برابر ۱۵ mg/L، زمان تماس ۹۰ دقیقه، دمای ۲۰ درجه سلسیوس، pH محلول برابر ۶)

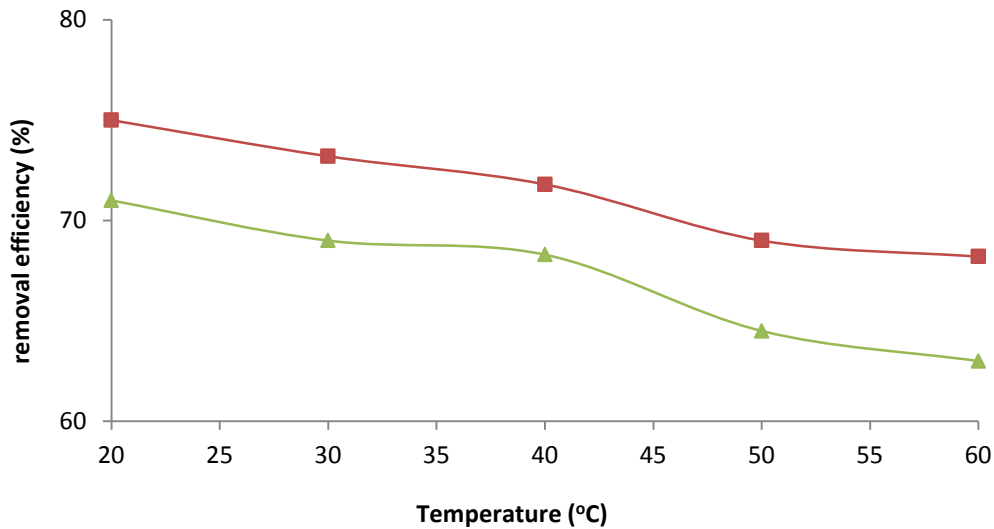
۶، کارایی حذف برای جاذب‌های مورد اشاره به ترتیب به مقادیر ۷۳ و ۶۵ درصد افزایش یافت و در pH برابر ۱۰ میزان حذف به ترتیب به مقادیر ۴۸/۱ و ۴۶/۳ درصد کاهش یافت. بنابراین مشخص گردید که بیشترین میزان حذف فلوراید در pH برابر ۶ که نزدیک به pH آب آشامیدنی می‌باشد، رخ می‌دهد. همچنین مشخص گردید که میزان حذف فلوراید در محیط‌های اسیدی (pH=۲-۴) نسبت به محیط‌های قلیائی (۱۰-۸ pH) بیشتر می‌باشد.

نتایج حاصل از تاثیر pH محلول بر روی کارایی فرآیند حذف یون فلوراید

در شکل ۳ نتایج حاصل از تاثیر pH محلول بر روی کارایی حذف فلوراید نشان داده شده است. نتایج نشان داد که با افزایش pH از ۲ تا ۶ کارایی حذف افزایش یافت و مجدداً با افزایش pH از ۶ تا ۱۰، کارایی حذف کاهش یافت. در pH برابر ۲ کارایی حذف برای پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید و پوکه معدنی اصلاح شده با سود به ترتیب برابر ۵۷ و ۵۲ درصد مشاهده گردید. با افزایش pH محلول به



شکل ۳: نتایج حاصل از تاثیر pH محلول بر روی کارایی حذف فلوراید با استفاده از پوکه معدنی اصلاح شده (غلظت فلوراید برابر ۱۵ mg/L، زمان تماس



شکل ۴: تاثیر دمای محلول بر روی کارایی حذف فلوراید با استفاده از پوکه معدنی اصلاح شده (غلظت فلوراید برابر ۱۵ mg/L، زمان تماس ۹۰ دقیقه، pH برابر ۶، میزان جاذب برابر ۶ g/L)

باعث کاهش کارایی فرآیند می‌گردد.

نتایج حاصل از تاثیر دمای محلول بر روی کارایی فرآیند

حذف یون فلوراید

نتایج حاصل از تاثیر دمای محلول بر روی کارایی حذف فلوراید با استفاده از پوکه معدنی در شکل ۴ نشان داده شده است (نمودار با شاخص مربع مربوط به پوکه معدنی اصلاح شده با HCl و نمودار با شاخص مثلث مربوط به پوکه معدنی اصلاح شده با NaOH). نتایج نشان داد که با افزایش دمای محلول از ۲۰ به ۶۰ درجه سانتی‌گراد، راندمان حذف فلوراید توسط هر دو نوع جاذب کاهش می‌یابد. در دمای ۲۰ درجه سانتی‌گراد راندمان حذف فلوراید با استفاده از پوکه معدنی اصلاح شده با هیدروکلریک اسید و پوکه معدنی اصلاح شده با سود به ترتیب برابر ۷۵ و ۷۱ درصد مشاهده گردید و با افزایش دمای محلول به ۶۰ درجه سانتی‌گراد، راندمان حذف برای جاذب‌های مورد اشاره به ترتیب به ۶۸/۲ و ۶۳ درصد کاهش یافت. بنابراین مشاهده گردید که افزایش دمای محلول

بحث

بررسی تاثیر زمان تماس و غلظت اولیه یون فلوراید بر روی کارایی فرآیند حذف یون فلوراید

زمان تماس یکی از پارامترهای مهم در واکنش‌های شیمیایی می‌باشد. در فرآیند جذب سطحی به دلیل اینکه حذف آلاینده از طریق جذب بر روی جاذب صورت می‌گیرد، بنابراین بر روی سطح جاذب، محل‌های تبادل یون مشخصی وجود خواهد داشت که آلاینده با آنها پیوند برقرار خواهد کرد. این امر زمانی بوقوع می‌پیوندد که میزان آلاینده در اطراف جاذب ثابت باقی بماند. با افزایش غلظت آلاینده در محلول، نیروی رانش در اثر گرادیان غلظت بوجود خواهد آمد که باعث رانش آلاینده به منافذ درونی جاذب خواهد شد. بنابراین علاوه بر سطح جاذب، قسمت‌های درونی جاذب نیز مورد استفاده قرار گرفته و به این

بررسی تاثیر دوز جاذب بر روی کارایی فرآیند حذف

یون فلوراید

افزایش میزان کارایی فرآیند حذف با افزایش میزان جاذب به دلیل افزایش سطح مخصوص و همچنین منافذ داخلی جاذب می‌باشد که باعث افزایش کارایی فرآیند حذف خواهد شد. در مطالعه حاضر نیز، با افزایش غلظت جاذب‌های مورد استفاده، راندمان حذف یون فلوراید افزایش چشمگیری نشان داد. همچنین نتایج حاصل از آنالیز آماری نشان داد که بین افزایش کارایی حذف با افزایش دوز جاذب رابطه معنی داری وجود دارد ($P \text{ value} < 0/05$). در مطالعات مختلفی نیز، نتایج مشابهی گزارش گردیده است. در مطالعه‌ای، از سرامیک گرانولی متخلخل که با اکسیدهای آلومینیوم و آهن پوشانده شده جهت حذف فلوراید استفاده گردیده است. محققان در این مطالعه گزارش کرده اند که با افزایش غلظت جاذب از ۱۰ تا ۳۰ g/L کارایی حذف از ۶۹/۴ به ۹۵/۷ درصد افزایش می‌یابد.^{۱۸} در مطالعه دیگری، از لجن اصلاح شده با اسید جهت حذف یون فلوراید استفاده گردیده و نشان داده شده که با افزایش دوز جاذب از ۵ تا ۵۰ g/L، کارایی حذف از ۴۰ درصد به ۷۳ درصد افزایش می‌یابد.^{۱۷} در مطالعه دیگری، از خاکستر فرار پوشش داده شده با منگنز جهت حذف فلوراید استفاده گردیده است. در این مطالعه در زمان تماس ۱۱۴۰ دقیقه، $\text{pH}=3$ و غلظت ۱۰ mg/L از فلوراید، با افزایش دوز جاذب از ۱ تا ۱۰ g/L، کارایی حذف از ۱ درصد به ۹۲ درصد افزایش یافته است.^{۱۰} بنابراین با توجه به مطالعات صورت گرفته بر روی حذف فلوراید با استفاده از جاذب‌های مختلف مشخص گردید که با افزایش میزان پوکه معدنی، کارایی حذف افزایش می‌یابد و این افزایش نسبت به مطالعات گزارش شده در زمان تماس کمتر و pH نزدیکتر به آب آشامیدنی اتفاق می‌افتد.

بررسی تاثیر pH محلول بر روی کارایی حذف یون

فلوراید

ترتیب راندمان حذف افزایش خواهد یافت^{۱۷-۱۴}. در این مطالعه نیز نشان داده شد که افزایش زمان تماس و غلظت اولیه یون فلوراید باعث افزایش کارایی فرآیند حذف توسط جاذب پوکه معدنی می‌گردد. همچنین مشخص گردید که زمان تعادل در حذف یون فلوراید با استفاده از پوکه معدنی در زمان تماس ۹۰ دقیقه مشاهده می‌گردد. نتایج حاصل از آنالیز واریانس یک طرفه نشان داد که بین افزایش کارایی حذف با زمان تماس و غلظت اولیه یون فلوراید رابطه معنی داری وجود دارد ($P \text{ value} < 0/05$). مطالعات مشابهی نیز توسط محققان مختلفی گزارش شده است. در مطالعه ای از پوست پرتقال که با استفاده از یونهای فلزی دو ظرفیتی پوشش داده شده جهت حذف یون فلوراید استفاده گردیده است، در زمان تماس ۶ ساعت و غلظت ۱۰ mg/L، راندمان حذف بسته به نوع جاذب مورد استفاده از ۵۰ تا ۹۳ درصد گزارش شده است.^{۱۶} در مطالعه ای دیگری، از جاذب اکسید سدیم و اکسید منگنز جهت حذف فلوراید استفاده گردیده است. در این مطالعه در زمان تماس ۵ ساعت و غلظت ۱۰ mg/L از یون فلوراید، راندمان حذف در حدود ۸۳ درصد توسط هر دو نوع جاذب گزارش گردیده است.^۸ در مطالعه ای که از ژئولیت طبیعی اصلاح شده با یون فروس جهت حذف فلوراید استفاده گردیده، مشخص شده است که با افزایش غلظت فلوراید تا ۱۰ mg/L راندمان حذف افزایش می‌یابد و برای غلظت‌های بیشتر راندمان حذف کاهش می‌یابد.^۹ در مطالعه دیگری، نشان داده شده است که با افزایش غلظت اولیه یون فلوراید از ۱۰ تا ۲۰ mg/L راندمان حذف توسط لجن اصلاح شده با اسید از ۹۳ درصد به ۹۶ درصد افزایش می‌یابد.^{۱۷} بنابراین، با توجه به مطالعات مشابهی که توسط جاذب‌های مختلف جهت حذف یون فلوراید به آنها اشاره گردید، مشخص می‌گردد که پوکه معدنی در مقایسه با سایر جاذب‌ها قابلیت بسیار بالایی جهت حذف یون فلوراید در زمان تماس کمتر و با راندمان بالاتر از خود نشان می‌دهند.

حذف یون فلوراید در pH برابر ۳ و به میزان ۹۹ درصد بوده است.^{۱۹} در مطالعه دیگری، زانادات سفال اصلاح شده با دی اکسید منگنز جهت حذف فلوراید استفاده گردیده است. در این مطالعه گزارش شده است که بیشترین میزان حذف یون فلوراید در pH برابر ۷/۲ و به میزان ۷۷ درصد مشاهده گردیده است.^{۲۰} در مطالعه دیگری، محققان از خاک مونومرلیت جهت حذف یون فلوراید استفاده کرده اند. در این مطالعه گزارش شده است که بیشترین میزان حذف یون فلوراید در pH برابر ۴ و به میزان ۸۹ درصد مشاهده گردیده است.^{۲۱} در مورد فلوراید، برخی از جاذب‌ها نشان داده اند که بیشترین میزان حذف فلوراید در محیط‌های اسیدی و برخی دیگر از جاذب‌ها نیز در محیط‌های خنثی قادر به حذف فلوراید هستند. به نظر می‌رسد از آنجایی که pH آب آشامیدنی در محدوده ۶/۵ تا ۷/۵ قرار دارد، بنابراین جاذب‌هایی مورد توجه قرار خواهند گرفت که در این محدوده از pH عملکرد بالایی داشته باشند. در این میان، پوکه اصلاح شده نشان داده که بیشترین میزان حذف یون فلوراید را در pH=۶ دارد که در محدوده pH آب آشامیدنی است.

بررسی تاثیر دمای محلول بر روی کارایی فرآیند حذف

یون فلوراید

دمای محلول یکی دیگر از پارامترهای مهم و تاثیرگذار بر روی فرآیند جذب سطحی می‌باشد و در اغلب موارد، فرآیند جذب سطحی گرمازا است. بنابراین در فرآیند جذب سطحی با افزایش دمای محلول، کارایی حذف کاهش خواهد یافت. در برخی از موارد نیز، فرآیند جذب سطحی گرماگیر بوده و با افزایش دمای محلول کارایی حذف افزایش می‌یابد.^{۱۸} در مطالعه حاضر نیز مشخص گردید که با افزایش دمای محلول از ۲۰ تا ۶۰ درجه سانتی گراد، کارایی حذف یون فلوراید کاهش می‌یابد. نتایج آنالیز آماری واریانس یکطرفه نشان داد که رابطه معنی داری بین دمای محلول و میزان راندمان حذف وجود دارد (P value < ۰/۰۵). نتایج مشابهی توسط محققان مختلف در

pH محلول از جمله پارامترهای موثر بر کارایی فرآیندهای اکسیداسیون- احیاء و فرآیند جذب سطحی می‌باشد که حذف آلاینده‌ها را تحت تاثیر قرار می‌دهد. pH به معنی غلظت یون هیدروژن در محیط می‌باشد که با افزایش غلظت یون هیدروژن، pH محلول کاهش یافته و محلول اسیدی می‌گردد و با کاهش غلظت یون هیدروژن، pH محیط افزایش یافته و محلول به حالت قلیائی تبدیل می‌گردد. در فرآیندهای جذب سطحی، pH از دو طریق حذف آلاینده را تحت تاثیر قرار می‌دهد: یکی از طریق بمباران سطح جاذب با استفاده از یونهای مثبت هیدروژن و یونهای منفی هیدروکسیل به ترتیب در محیط‌های اسیدی و قلیائی، و دیگری از طریق تشکیل ترکیب با یونهای موجود در محلول در محیط‌های اسیدی و قلیائی^{۱۷-۱۳}. در مورد یون فلوراید، در محیط‌های اسیدی (pH کمتر از ۳)، اسید ضعیف هیدروفلوریک تشکیل می‌گردد که باعث کاهش حذف فلوراید می‌گردد. همچنین در اینگونه محیط‌ها، یونهای مثبت هیدروژن با یونهای منفی فلوراید برای جذب بر روی جاذب باهم رقابت خواهند کرد که منجر به کاهش کارایی فرآیند خواهد شد، اما به احتمال زیاد تشکیل اسید هیدروفلوریک بیشترین تاثیر را در کاهش کارایی فرآیند خواهد داشت. در محیط‌های قلیائی نیز (pH بالاتر از ۸) یونهای منفی هیدروکسیل غالب خواهند شد و با یونهای فلوراید برای جذب شدن بر روی جاذب باهم رقابت خواهند کرد، بنابراین منجر به کاهش کارایی فرآیند خواهد گردید.^{۱۸، ۱۹} در مطالعه حاضر مشخص گردید که حذف یون فلوراید در pH مساوی ۶ اتفاق می‌افتد. نتایج حاصل از آنالیز واریانس یک طرفه نشان داد که بین pH اولیه محلول و راندمان حذف رابطه معنی داری وجود دارد (P value < ۰/۰۵). محققان مختلفی، گزارش‌های مختلفی از تاثیر pH محلول در حذف یون فلوراید توسط جاذب‌های مختلف ارائه داده اند. در مطالعه ای، از دانه‌های خرما تصفیه شده با اسید کلریدریک جهت حذف یون فلوراید استفاده گردیده است. در این مطالعه گزارش شده که بیشترین میزان

بستگی دارد.

نتیجه گیری

نتایج حاصل از این مطالعه نشان داد که جاذب پوکه معدنی یک جاذب ارزان قیمت و موثر در فلوراید از محلول‌های آبی می‌باشد و با مقایسه کارایی آن با جاذب‌های مختلف، مشخص گردید که این نوع جاذب در شرایط نزدیک به pH محلول‌های آبی بیشترین عملکرد را دارد.

تشکر و قدردانی

از کمیته تحقیقات دانشجویی دانشگاه علوم پزشکی البرز بخاطر حمایت مالی از طرح تحقیقاتی حاضر تشکر و قدردانی می‌گردد.

حذف یون فلوراید با استفاده از جاذب‌های مختلف گزارش گردیده است. در مطالعه ای، از ژئولیت طبیعی اصلاح شده با کلرید کلسیم جهت حذف یون فلوراید استفاده گردیده است و نشان داده شده است که با افزایش دمای محلول کارایی فرآیند حذف افزایش می‌یابد.^{۲۲} در مطالعه دیگری، از جاذب تهیه شده با استفاده از تیتانیم اکسی سولفات جهت حذف فلوراید استفاده گردیده و نشان داده شده است که حذف فلوراید با افزایش دمای محلول کاهش می‌یابد.^۴ در مطالعه ای که از سیمان سبک جهت حذف فلوراید استفاده گردیده، مشخص شده که با افزایش دمای محلول راندمان حذف فلوراید نیز افزایش می‌یابد.^{۲۳} با توجه به مطالبی که در بالا به آنها اشاره گردید مشخص می‌گردد که تأثیر دمای محلول بر روی کارایی فرآیند حذف به نوع آلاینده موردنظر و همچنین جاذب مورد استفاده

منابع

1. Paripurnanda L, Saravanamuthu V, Jaya K, Ravi N. Defluoridation of drinking water using adsorption processes. *J Hazard Mater* 2013;248-249(3): 1-19.
2. Samadi MT, Zarrabi M, Noorisepehr M, Mirzaee Ramhormozi S, Azizian S, Amrane A. Removal of fluoride ions by ion exchange resin: kinetic and equilibrium studies. *Environ Eng Manage J* 2014;13(1): 205-14.
3. Yue S, Huaming G. Fluoride adsorption on modified natural siderite: Optimization and performance. *Chem Eng J* 2013;223: 183-91.
4. Qinghai G, Eric JR. Fluoride removal from water by meixnerite and its calcination product. *App Clay Sci* 2012;56: 7-15.
5. Dilip T, Sadhana R, Raju K, Siddharth M, Subrt J, Nitin L. Magnesium incorporated bentonite clay for defluoridation of drinking water. *J Hazard Mater* 2010;180: 122-30.
6. Kamel B, Amid PK. Adsorption of fluoride onto crystalline titanium dioxide: Effect of pH, ionic strength, and co-existing ions. *J Colloid Interface Sci* 2013;394: 419-27.
7. Shubo D, Han L, Wei Z, Jun H, Gang Y. Mn-Ce oxide as a high-capacity adsorbent for fluoride removal from water. *J Hazard Mater* 2011;186: 1360-1366.
8. Nan C, Zhenya Z, Chuanping F, Miao L, Dirui Z, Rongzhi C, Norio S. An excellent fluoride sorption behavior of ceramic adsorbent. *J Hazard Mater* 2010;183: 460-5.
9. Youbao S, Qinghua F, Junping D, Xiaowei C, Jiaqiang X. Removal of fluoride from drinking water by natural stilbite zeolite modified with Fe (III). *Desalination* 2011;277: 121-7.
10. Xiaotian X, Qin L, Hao C, Jianfeng P, Li S, Hao A, Jianping Z. Adsorption of fluoride from aqueous solution on magnesia-loaded fly ash cenospheres. *Desalination* 2011;272: 233-9.
11. Yuxin M, Fengmei S, Xilai Z, Jun M, Congjie G. Removal of fluoride from aqueous solution using granular acid-treated bentonite (GHB): Batch and column studies. *J Hazard Mater* 2011;185: 1073-80.
12. Noorisepehr M, Sivasankar V, Zarrabi M, Senthil Kumar M. Surface modification of pumice enhancing its fluoride adsorption capacity: An insight into kinetic and thermodynamic studies. *Chem Eng J* 2013;228: 192-204.
13. APHA, Standard methods for the examination of water and wastewater, 21st ed, Washington D.C. 2005.
14. Takaaki W, Yuta U, Shuji N, Katsuyasu S. Adsorption behavior of fluoride ions using a titanium hydroxide-derived adsorbent. *Desalination* 2009;249: 323-30.
15. Patricia M, Alicia FC. Fluoride removal from water by chitosan derivatives and composites: A review. *J Fluorine Chem* 2011;132: 231-40.
16. Hari P, Bimala P, Katsutoshi I, Hidetaka K, Keisuke O, Hiroyuki H, Shafiq A. Adsorptive removal of fluoride

- from aqueous solution using orange waste loaded with multi-valent metal ions. *J Hazard Mater* 2011;192: 676-82.
17. Soydo V, Sriwilai K, Siriluk C. Removal of fluoride in aqueous solution by adsorption on acid activated water treatment sludge. *Appl Surf Sci* 2010;256: 5458-62.
18. Nan C, Zhenya Z, Chuanping F, Dirui Z, Yingnan Y, Norio S. Preparation and characterization of porous granular ceramic containing dispersed aluminum and iron oxides as adsorbents for fluoride removal from aqueous solution. *J Hazard Mater* 2011;186: 863-8.
19. Abhijit M, Jayanta KB, Sirshendu D. Chemical treated laterite as promising fluoride adsorbent for aqueous system and kinetic modeling. *Desalination* 2011;265: 28-36.
20. Venkataraman S, Thiyagarajan R, André D. Manganese dioxide improves the efficiency of earthenware in fluoride removal from drinking water. *Desalination* 2011;272: 179-186.
21. Ramdani A, Taleb S, Benghalem A, Ghaffour N. Removal of excess fluoride ions from Saharan brackish water by adsorption on natural materials. *Desalination* 2010;250: 408-13
22. Zhijie Z, Yue T, Mingfeng Z. Defluorination of wastewater by calcium chloride modified natural zeolite. *Desalination* 2011;276: 246-52.
23. Ensar O. Equilibrium isotherms and kinetics studies for the sorption of fluoride on light weight concrete materials. *Colloids Surf A* 2007;295: 258-63.

Investigation of Modified Pumice with HCl and NaOH for Removal of Fluoride from Aqueous Solution

Mansur Zarrabi¹, Seyed Mohammad arami^{2,3}

1. Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Alborz University of Medical Sciences, Karaj, Iran

2. Students Research Committee, Faculty of Health, Alborz University of Medical Sciences, Karaj, Iran

3. Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Shahid Beheshti University of Medical Sciences, Tehran, Iran

E-mail: m.arami_f@yahoo.com

Received: 17 Des 2013 ; Accepted: 30 Apr 2014

ABSTRACT

Background: Fluoride is an essential element for human health body, since in standard levels, it prevents the tooth decay. If fluoride concentration in drinking water exceeds from standard levels, it can leads to some diseases such as alzheimer syndrome, sterility, brittle bones, and thyroid disorder. So, removal of excess amounts of fluoride seems to be essential in order to health protection and prevention of the environment.

Methods: In this work, modified pumice with HCl and NaOH were used for removal of fluoride from aqueous solution. Several experimental parameters including pH (2-10), temperature (20-60°C), adsorbent dosage (2-10 g/L), initial fluoride concentration (5-20 mg/L), and contact time were studied. All experiment were conducted in batch system by keeping constant one parameter and changing others.

Results: Results showed that removal efficiency was increased with increase in contact time, initial fluoride concentration and adsorbent dosage. The maximum removal efficiency was observed at pH 6, 10 g/L adsorbent dosage, 20°C solution temperature, 90 min reaction time and 20 mg/L of fluoride concentration. Moreover, the maximum removal efficiency was observed by adsorbents modified with HCl. In general, results revealed that modified Pumice with HCL could remove 96% of fluoride at 90 min contact time, pH=6, 20°C and 20 mg/L of fluoride concentration.

Conclusion: Results showed that pumice modified with HCl and NaOH had high capacity in removal of fluoride which the capacity was higher for pumice modified with HCl.

Keywords: Fluoride, Pumice, Surface adsorption.