بررسی کارایی پامیس با پوشش آهن در حذف فلوراید از محلول‌های آبی

محمدرضا سمرقندی[۲،۱]، منیره طرلانی آذر[۲*]، راضیه مهرانپور[۲]، مهناز احمدیان[۲]

۱. مرکز تحقیقات علوم بهداشتی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران

۲. گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۳/۷/۳ ؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۳/۹/۲۹

چکیده

سابقه و هدف: کمبود فلوئور در منابع آب، مشکلات بهداشتی متعددی را در پی دارد. همچنین غلظت‌های بالای آن نیز تهدید جدی‌تری برای سلامت جامعه می‌باشد. بنابراین بررسی فرآیندهای مختلف فیزیکی، شیمیایی و بیولوژیکی به منظور کاهش غلظت‌های بالای فلوئور از منابع آبی مورد توجه می‌باشد. این پژوهش، با هدف کاهش غلظت یون فلوئور از محلول‌های آبی توسط فرآیند جذب سطحی با پامیس با پوشش آهن انجام پذیرفت.

مواد و روش‌ها: ابتدا تکه‌های پامیس خرد و سایزبندی گردید. پس از چند مرحله آماده‌سازی، ذرات پامیس با محلول نیترات آهن (III) ۰/۵ نرمال پوشش داده شد. سپس تأثیر پارامترهای مؤثر بر کارایی حذف فلوراید شامل pH محلول (۱۰-۲)، زمان واکنش (۱۲۰ min-۵)، غلظت اولیه فلوراید (۲۰mg/L-۳) و دوز جاذب (۱۵ g/L-۱) در سیستم ناپیوسته بررسی گردید. در نهایت مدل‌های ایزوترمی و سینتیک‌های واکنش تعیین شد.

یافته ها: نتایج نشان داد کارایی حذف فلوراید با افزایش دوز جاذب و زمان واکنش افزایش و با افزایش غلظت اولیه فلوراید کاهش می‌یابد. بهترین عملکرد حذف فلوراید (۸٤/۳ درصد) در غلظت فلوراید ۳ mg/L، دوز جاذب ۰/۵ g/L، ٦ =pH و زمان تماس ۳۰ دقیقه مشاهده شد. داده‌های تعادلی جذب از مدل لانگمویر(R^2=۰/۹۹) تبعیت نمود و مطالعه سینتیک جذب نشان داد واکنش با رابطه شبه درجه دوم مطابقت بیشتری دارد.

نتیجه‌گیری: با توجه به نتایج، پامیس با پوشش آهن به عنوان جاذب مؤثر، ارزان قیمت و در دسترس می‌تواند در حذف یون فلوراید از محیط‌های آبی مورد توجه قرار گیرد.

کلمات کلیدی: فلوراید، پامیس با پوشش آهن، فرآیند جذب سطحی، ایزوترم جذب

مقدمه

آلودگی آب‌های زیر زمینی به فلوراید از مشکلات جهانی و جدی محسوب می‌شود. سازمان جهانی بهداشت (WHO) World Health Organization فلوراید را همچون آرسنیک و نیترات جزء آلاینده‌های آب شرب انسان طبقه بندی نموده است.[۱] فلوراید به طور گسترده در محیط زمین شناختی پخش و از طریق انحلال آرام سنگ‌های حاوی فلوراید وارد آب‌های زیرزمینی می‌شود.[۲]

درکنار منابع طبیعی، صنایعی از قبیل تولید شیشه و سرامیک، نیمه هادی‌ها، صفحات الکتریکی، نیروگاه‌های با

* گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران

ایمیل: Monireh.Tarlani@yahoo.com - **شماره تماس:** ۰۹۱۵-۵۸٦۹۸۳۱

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

سوخت زغال‌سنگ و غیره، فاضلاب‌هایی با غلظت بالای فلوراید به محیط تخلیه می‌نمایند.[3] بیش از ۲۰۰ میلیون نفر در جهان از آب شرب با غلظت بیش ۱/۵ mg/L (حدمجاز سازمان جهانی بهداشت) استفاده می‌کنند.[4] غلظت مفید فلوراید در آب آشامیدنی دامنه کوتاهی دارد؛ به طوری که مقادیر کم باعث پوسیدگی دندان به ویژه در بچه‌ها و مقادیر بیش از حد مجاز، منجر به اختلالات ساختاری متعددی می‌شود.[5,6] فلوراید مازاد در بدن می‌تواند با سنتز DNA و همچنین متابولیسم کربوهیدرات‌ها، چربی‌ها، پروتئین‌ها، ویتامین‌ها و مواد معدنی مداخله نماید.[7]

با توجه به اثرات فلوراید اضافی بر سلامت انسان، یافتن تکنولوژی حذف مؤثر یک نیاز ضروری می‌باشد. روش‌های قدیمی همانند انعقاد و ترسیب شیمیایی با آهن (III)[8]، آلومینای فعال[9]، آلوم[10] و کلسیم[11] دارای هزینه‌های عملیاتی و نگهداری بالا، آلودگی ثانویه، روش کار پیچیده و عدم تأمین کارایی مطلوب هستند.[12]

همچنین کاربرد فرآیندهای غشایی در فلوئورزدایی آب آشامیدنی، علی‌رغم عدم نیاز به افزودن مواد شیمیایی در این فرآیندها، با بروز مشکلات گرفتگی و تخریب غشا، هزینه‌های نصب، نگهداری و بهره‌برداری بالا محدود شده است.[12,13] در میان روش‌های مختلف فلوئورزدایی آب و فاضلاب، جذب سطحی به طور گسترده استفاده شده و نتایج رضایت بخشی داشته است. جذب سطحی، روشی مناسب از نظر هزینه، سهولت طراحی، راه‌اندازی و بهره‌برداری می‌باشد.[13] جاذب‌های متعارف و غیر متعارف گوناگونی برای حذف فلوراید از محیط های آبی بررسی شده‌اند. یکی از موادی که در سال‌های اخیر کاربرد زیادی به عنوان جاذب یافته است، سنگ پامیس می‌باشد. پامیس، سنگ آتشفشانی سبک و بسیار متخلخل (با حجم تخلل بیش از ۸۵ درصد) می‌باشد. ذرات پامیس شبیه اسفنج و شامل شبکه‌ای از حفرات نامنظم یا تخم مرغی شکل می‌باشد. پامیس به لحاظ دارا بودن حفراتی در مقیاس میکرون، سطح مخصوص بالایی دارد. همچنین این سنگ می‌تواند ویژگی اسیدی یا بازی داشته باشد. تخلل بالا و داشتن میزان قابل توجهی سیلیکا، آلومینا و زئولیت طبیعی باعث می‌شود این ماده به عنوان یک گزینه امیدبخش در زمینه‌های مختلف صنعتی، شیمیایی و کشاورزی استفاده شود. همچنین اصلاح سطح مواد جاذب با مواد شیمیایی مختلف همچون فلزات، ترکیبات سورفاکتانت آنیونی و کاتیونی و غیره باعث تغییر بارسطحی و افزایش توانایی و ظرفیت جذب در جاذب می‌شود.[14]

با توجه به اینکه معادن پامیس در منطقه غرب کشور به تعداد زیاد وجود دارد، این مطالعه با هدف تعیین کارایی پامیس اصلاح شده با فلز آهن در حذف فلوراید از محیط‌های آبی و تأثیر پارامترهای pH، زمان تماس، غلظت اولیه فلوراید و مقدار جاذب انجام شد. در نهایت ایزوترم‌های جذب و سینتیک‌های واکنش تعیین شد.

مواد و روش‌ها

مواد شیمیایی و دستگاه‌ها

کلیه مواد شیمیایی مصرفی در این تحقیق از شرکت مرک آلمان خریداری شد. محلول استوک فلوراید با حل کردن ۲۲۱ میلی‌گرم نمک فلوراید سدیم در یک لیتر آب بدون یون تهیه گردید[15]. غلظت فلوراید با دستگاه اسپکتروفوتومتر UV/VIS مدل DR-۵۰۰۰ و افزودن معرف اسپادنز تعیین شد. تنظیم pH نمونه‌ها با محلول‌های ۰/۱ نرمال اسید سولفوریک و هیدروکسیدسدیم انجام و با pH متر مدل Hatch-sencion تعیین شد.

آماده‌سازی جاذب

سنگ پامیس از منطقه قروه استان کردستان تهیه و پس از خرد نمودن با الک‌های استاندارد با مش ۲۰ (۰/۸۵mm)، دانه بندی و سپس مطابق روش Kitis و همکاران[16] پوشش‌داده‌شد.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

آزمایشات جذب در سیستم ناپیوسته

تأثیر پارامترهای مؤثر بر جذب شامل pH (۸،٦،٤،۲)، زمان تماس(۱۲۰،۹۰،٦۰،٤٥،۳۰،۱٥،۱۰،٥min)، غلظت اولیه فلوراید (۲۰،۱٥،۱۰،٥،۳ mg/L) و دوز جاذب (۱٥ g/L، ۱۰، ۸، ٥، ۱) مورد بررسی قرار گرفت. پس از تنظیم شرایط مورد نظر، نمونه‌ها در شیکر انکوباتور با دور ۱٤۰ rpmبا دمای ۲٥ درجه سانتی‌گراد قرار داده شد. سپس نمونه‌ها به مدت ٥ دقیقه با دورrpm ٤۰۰۰ سانتریفوژ و غلظت فلوراید باقی‌مانده قرائت شد. برای افزایش ضریب اطمینان و صحت نتایج تمامی آزمایشات دو بار تکرار و میانگین نتایج گزارش گردید. میزان کارایی حذف فلوراید توسط پامیس با پوشش آهن از رابطه ۱ محاسبه گردید:

$$R = \frac{C_i - C_e}{C_i} \times 100 \qquad (۱)$$

Ci و Ce به ترتیب غلظت اولیه و نهایی فلوراید (mg/L) می‌باشند.

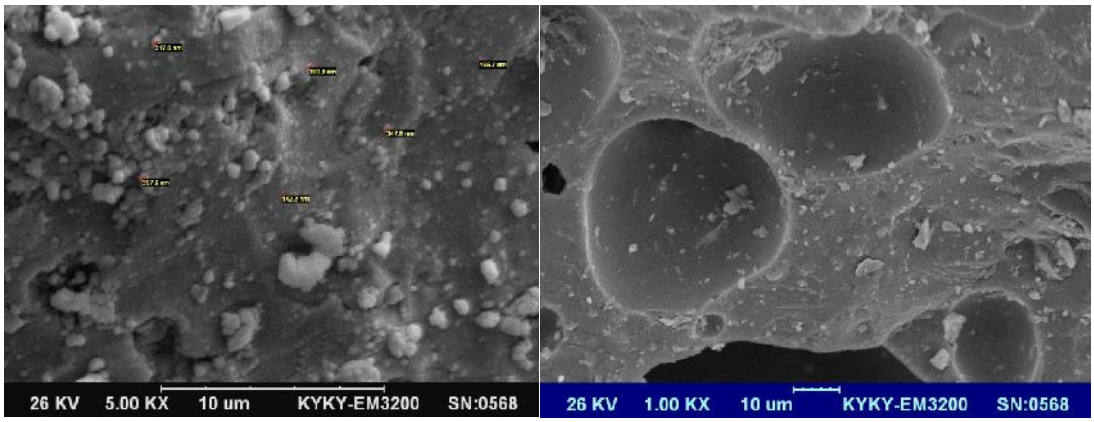
سینتیک واکنش و ایزوترم جذب

برای تعیین سینتیک واکنش نمونه‌هایی با غلظت mg/L ۱۰، ٥، ۳ فلوراید ، pH و دوز جاذب مشخص تهیه شد. در فواصل زمانی بین ۱۲۰min– ٥ از محلول نمونه‌برداری و پس از جداسازی جاذب (طبق مراحل فوق)، غلظت فلوراید باقیمانده بدست آمد. داده‌های حاصل برای تعیین سینتیک جذب استفاده شد. به منظور بررسی ایزوترم‌های جذب نیز نمونه‌هایی با غلظت ۱٥mg/L ، ۱۰ ، ٥ ، ۳ فلوراید، pH و دوز جاذب مشخص تهیه و به مدت ۱ ساعت (زمان تعادل) در انکوباتور همزن دار قرار گرفت. سپس، غلظت باقیمانده فلوراید اندازه-گیری و نتایج حاصل با مدل‌های ایزوترمی لانگمویر و فروندلیخ برازش داده شد.

یافته‌ها

خصوصیات جاذب

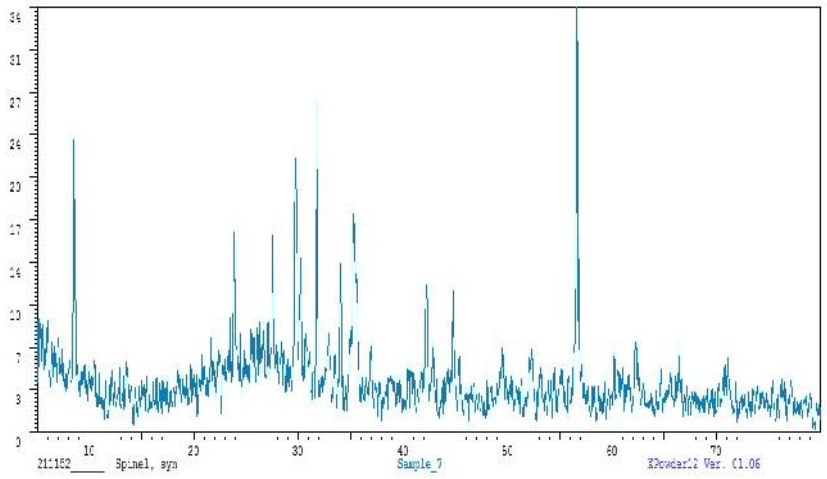
تصویر SEM ساختار پامیس طبیعی و اصلاح شده در شکل ۱ آورده شده است. تغییر ساختار متخلل هموژن به حالت هتروژن در نتیجه کاهش قطر ذرات پامیس می‌باشد. بهبود ساختار منافذ و ظرفیت جذب در نتیجه اصلاح با نمک-های فلزی در مطالعات متعددی به اثبات رسیده است. در پامیس اصلاح شده، سطح مخصوص و ساختار هتروژن ذرات و تعداد کانال‌ها و حفره‌ها افزایش می‌یابد[۱۸،۱۷].



شکل ۱: تصویر SEM پامیس خام(سمت چپ) و پامیس پوشش داده شده با آهن(سمت راست)

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

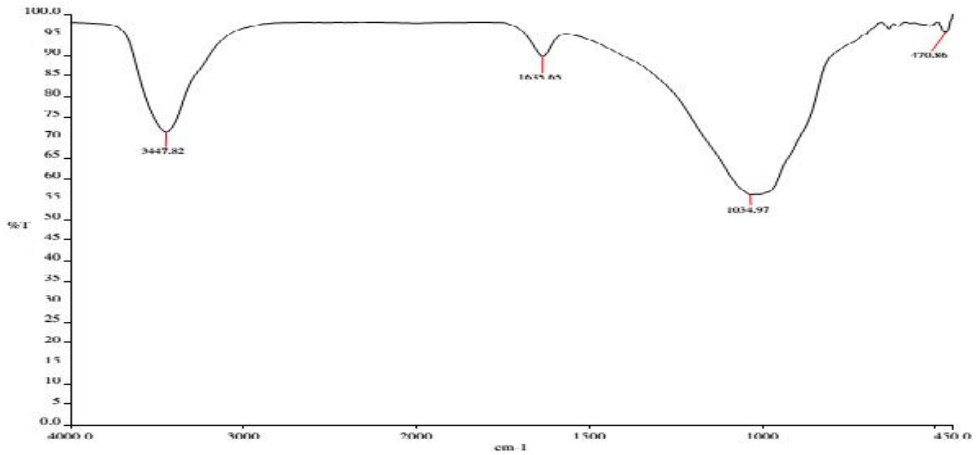
[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]



شکل۲: الگوی طیف XRD پامیس

الگوی XRD نشان دهنده فازهای اصلی و فرعی شامل گروه پیروکسن، فلدسپات، مگنتیت، میکا و SiO_2 (کوارتز) می-باشد. بیشترین شدت پیک‌ها در محدوده SiO_2 قرار دارد و بخش عمده پامیس را این کانی تشکیل می‌دهد[19]. تصویر۲ الگوی XRD پامیس را نشان می‌دهد.

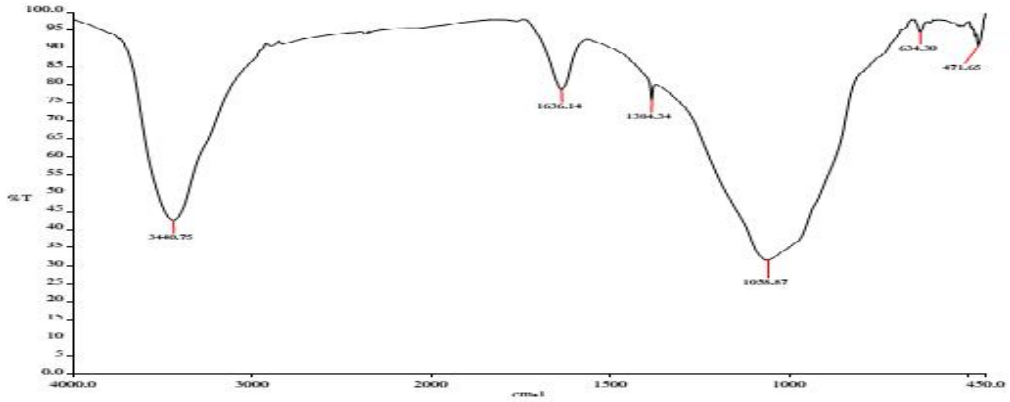
اشکال ۳ و ٤، طیف FT- IR پامیس خام و پامیس با پوشش آهن را نشان می‌دهند. پیک عریض cm^{-1} ۳٤٤۷ به کشش ارتعاشی مولکول‌های آب (رطوبت) در ساختار پامیس و گروه-های OH مربوط می‌شود. همچنین پیک نواحی نزدیک cm^{-1} ۱٦۳۵ به کشش ارتعاشی گروه‌های OH رطوبت جذب شده از محیط بیرون نسبت داده می‌شود. پیوندهای Si-O و Al-O کشش‌های ارتعاشی در cm^{-1} ۱۰۳٤ و حالت خمیده بین cm^{-1} ۵۰۰–٤۰۰ را نشان می‌دهد و کشش ارتعاشی Si-O-Al در cm^{-1} ٦۳٤ مشخص شده است[18].



شکل ۳: طیف FT-IR پامیس خام

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]



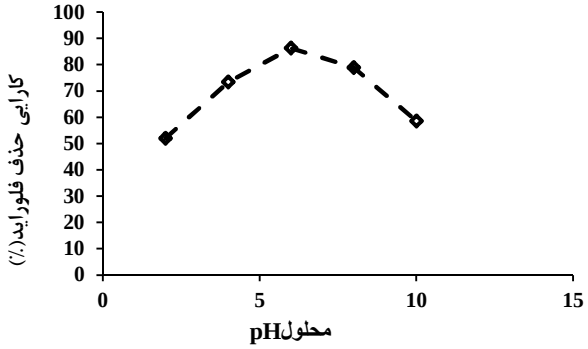
شکل ٤: طیف FT-IR پامیس با پوشش آهن

تأثیر pH محلول

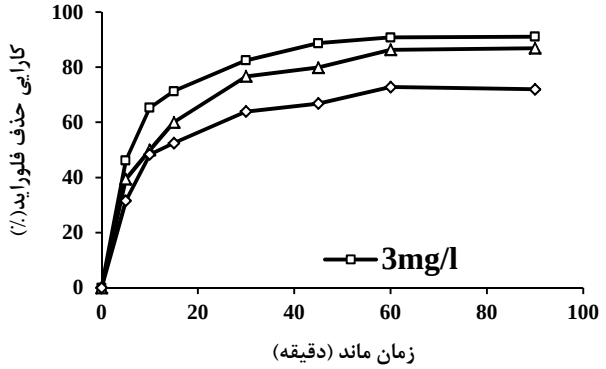
مطابق شکل ٥، با افزایش pH از ٢ به ٦ کارایی حذف فلوراید از ٥٢ درصد به ٨٦/٣ درصد افزایش می‌یابد. با افزایش بیشتر pH، کارایی حذف مجدداً کاهش می‌یابد. به نحوی که در pH=١٠ کارایی حذف به ٥٨/٦ درصد می‌رسد. با توجه به اینکه بیشترین کارایی حذف فلوراید در pH=٦ (pHبهینه) می‌باشد، بنابراین در سایر آزمایشات pH نمونه‌های مورد بررسی ٦ در نظرگرفته شد.

تأثیر زمان تماس

شکل ٦ تأثیر تغییرات زمان واکنش بر حذف فلوراید توسط پامیس با پوشش آهن را در سه غلظت mg/L ١٠، ٥، ٣ نشان‌می‌دهد.



شکل ٥ : تأثیر تغییرات pH محلول در حذف فلوراید (دوز جاذب:g/L ٣، غلظت اولیه فلوراید: mg/L ٥ ، زمان min ٦٠)



شکل ٦: تأثیر تغییرات زمان تماس در حذف فلوراید (دوز جاذب: g/L٣، pH= ٦)

در غلظت‌های بررسی شده، با افزایش زمان واکنش کارایی حذف فلوراید افزایش می‌یابد و واکنش جذب پس از ٦٠ دقیقه به تعادل می‌رسد.

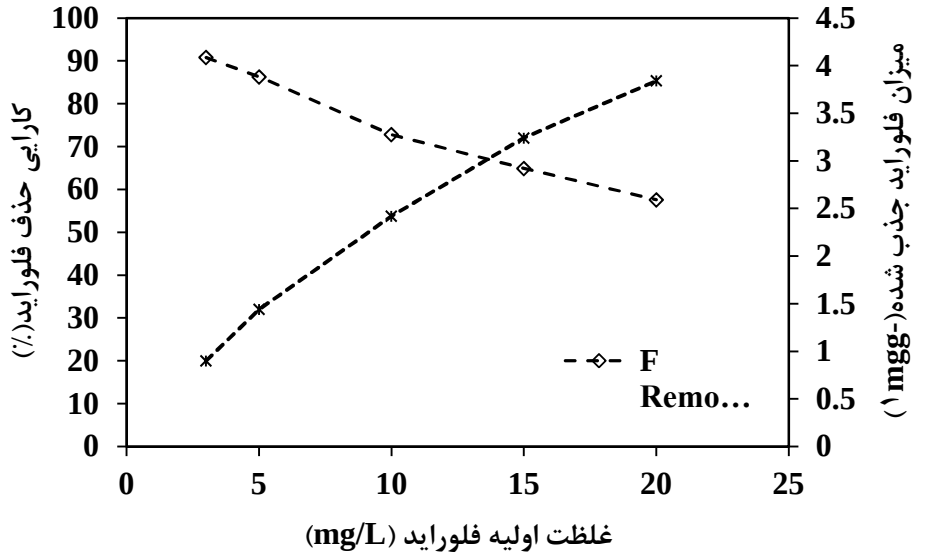
تأثیر غلظت اولیه فلوراید

با توجه به شکل ٧، با افزایش غلظت فلوراید از ٣ به mg/L ٢٠، کارایی حذف از ٩٠/٨ درصد به ٥٧/٦ درصد کاهش می‌یابد. از دیگرسو، همزمان با کاهش کارایی حذف، ظرفیت جذب فلوراید از ٠/٩ به mg/g ٣/٨٤ روند افزایشی دارد.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

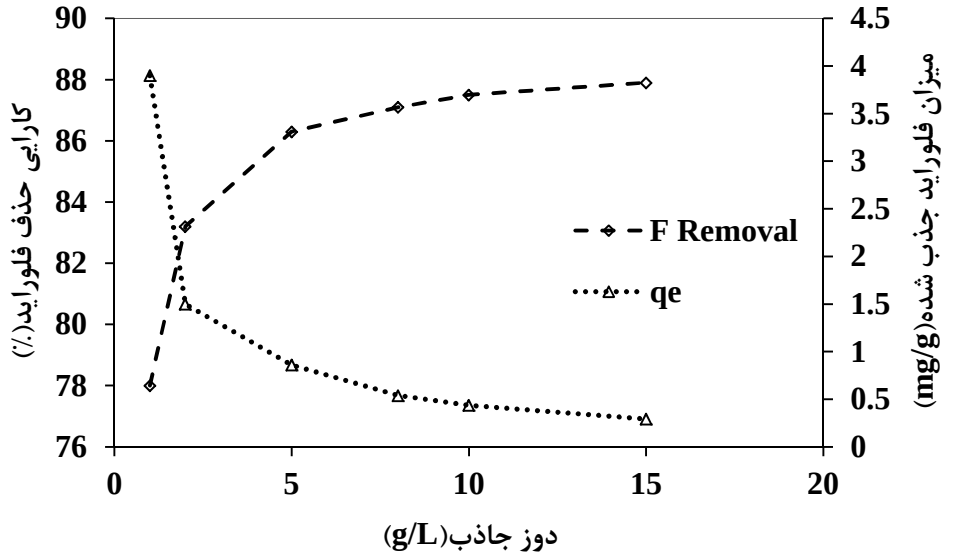
[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128] [Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]



شکل ۷: تأثیر تغییرات غلظت اولیه فلوراید در حذف آن (دوز جاذب: g/L ۳، pH= ٦ ، زمان min ٦٠)

تأثیر دوز جاذب

با افزایش دوز جاذب از ۱ به g/L ۱۵ کارایی حذف از ۷۸ درصد به ۸۷/۹ درصد افزایش می‌یابد (شکل۸). در عین حال با افزایش دوز جاذب به بیش از g/L ۵ تغییر قابل توجهی در کارایی حذف و ظرفیت جذب فلوراید مشاهده نمی‌شود، بنابراین دوز بهینه جاذب، g/L ۵ در نظر گرفته شد.



شکل۸: تأثیر تغییرات دوز جاذب در حذف فلوراید (غلظت فلوراید: mg/L۵، pH= ٦ ، زمان min ٦٠)

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

مطالعات سینتیک جذب

سینتیک‌های واکنش بیانگر سرعت واکنش‌های شیمیایی می‌باشند. نتایج حاصل از این مطالعه با مدل‌های سینتیکی شبه درجه یک و شبه درجه دو مطابقت داده و متناسب‌ترین مدل تعیین شد. روابط ۲ و ۳ روابط سینتیک‌های شبه درجه یک و دو را نشان می‌دهد.

$$Ln(q_e - q_t) = Lnq_e - k_t t \quad (۲)$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (۳)$$

که qe غلظت تعادلی فاز جاذب(mg/g) ، q_t غلظت فلوراید در لحظه t (mg/g) و k_t و k_2 ثابت سرعت روابط شبه درجه یک و دو می‌باشند.[۱۸] شکل ۹ نتایج حاصل از تطبیق داده‌ها با مدل‌های سینتیکی فوق و جدول ۱ پارامترها و ضرایب مربوط را نشان می‌دهند. همان گونه از نتایج استنباط می‌شود، واکنش جذب فلوراید توسط پامیس با پوشش آهن با مدل شبه درجه دو مطابقت بهتری دارد.

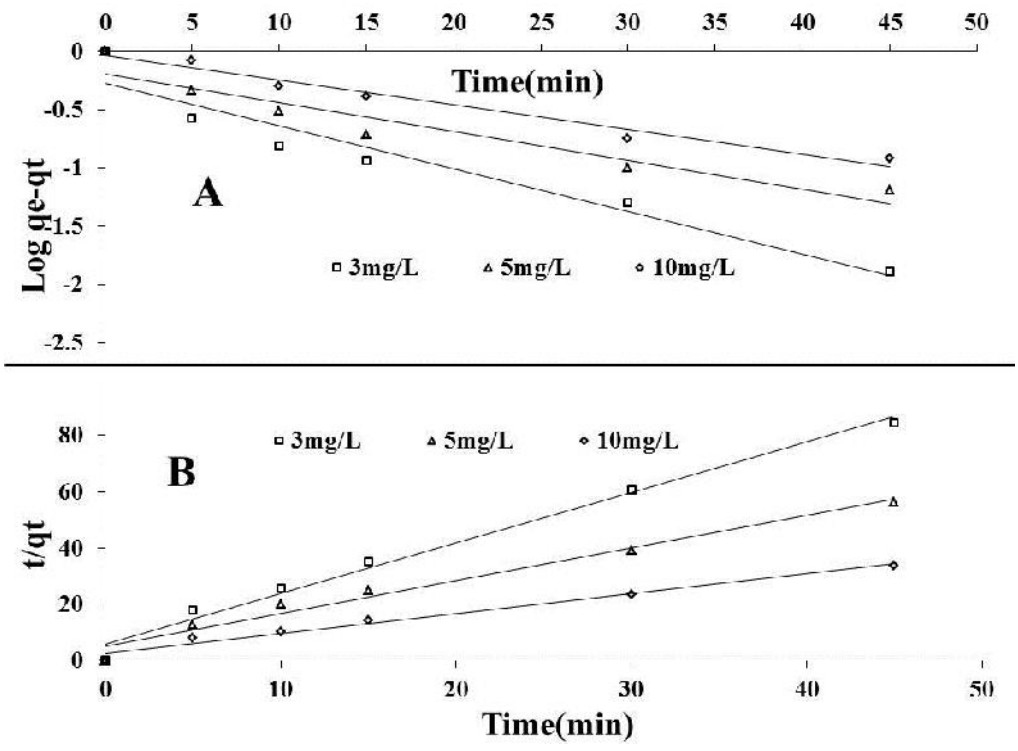
بررسی ایزوترم‌های جذب

به منظور تحلیل نتایج جذب و ایزوترم‌های آن دو مدل لانگمویر و فروندلیخ مورد بررسی قرار گرفت. روابط خطی این دو مدل به ترتیب مطابق روابط ٤ و ٥ می‌باشد.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{bq_m} + \frac{C_e}{q_m} \quad (٤)$$

$$Lnq_e = LnK_f + \frac{1}{n} LnC_e \quad (٥)$$

که Ce و qe به ترتیب غلظت تعادلی در فاز محلول (mg/L) و جامد (mg/g)، q_m حداکثر ظرفیت جذب (mg/g)، b، n و k ثابت‌های مدل می‌باشند.[۱۸]



شکل ۹: تطبیق نتایج حاصل با مدل‌های (A) شبه درجه یک، (B) شبه درجه دو (دوز جاذب: ٥ g/L، pH= ٦)

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

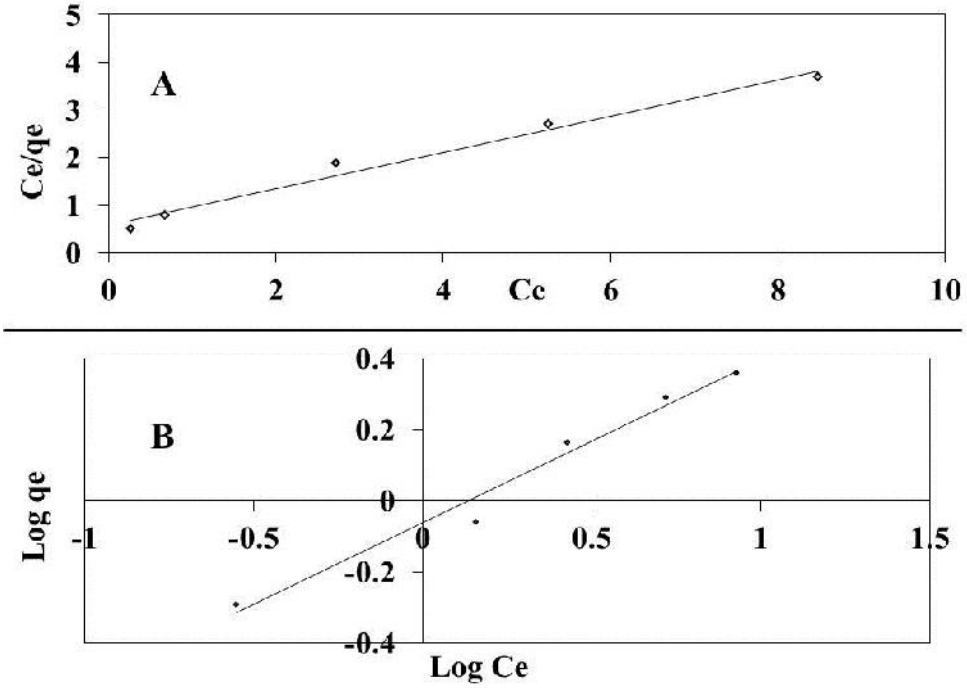
[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

جدول ۱: نتایج حاصل از برازش داده‌های سینتیکی جذب فلوراید

غلظت(mg/L)	مدل سینتیکی شبه درجه یک			مدل سینتیکی شبه درجه دو		
	R^2	q_e	K_1	R^2	q_e	K_2
۳	۰/۹۶۹۷	۰/۹۲	۰/۰۴۸	۰/۹۸۷۸	۰/۵۵	۰/۵۵
۵	۰/۹۱۵۲	۰/۱۲	۰/۰۵۷	۰/۹۷۵۷	۰/۸۶	۰/۲۵
۱۰	۰/۹۳۵	۰/۵۳	۰/۰۸۴	۰/۹۸۲۸	۱/۴۳	۰/۱۸

جدول ۲: نتایج حاصل از برازش داده های تعادلی جهت تعیین ایزوترم جذب فلوراید

مدل‌های ایزوترمی					
لانگمویر			فروندلیخ		
R^2	q_m	b	R^2	K_f	n
۰/۹۸۱۶	۲/۶۱	۰/۶۶	۰/۹۷۵۶	۱/۱۵	۲/۱۸



شکل ۱۰: نتایج بررسی مدل‌های ایزوترمی (a) لانگمویر و (b) فروندلیخ (دوز جاذب: ۵ g/L ، غلظت فلوراید:mg/L ۱۵-۳ ، pH= ۶)

نمودار ایزوترم‌های لانگمـویر و فرونـدلیخ در شـکل ۱۰ و ضرایب و ثابت‌های هر یک در جدول ۲ آمده اسـت. بـا توجـه به نتایج حاصل فرآیند جذب بررسـی شـده از مـدل لانگمـویر تبعیت بیشتری می‌نماید.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

بحث

تأثیر pH

تغییرات pH محیط واکنش می‌تواند بر ساختار آلاینده و بار سطحی ماده جاذب تأثیر گذارد. با توجه به شکل ۵، بیشترین کارایی حذف فلوراید در pH=٦ می‌باشد. سطح پامیس با پوشش آهن در pH های بیشتر از pHpzc (٦/٥) بار منفی داشته و یون‌های منفی فلوراید از سطح جاذب دفع می‌شوند. در مقابل، در pH های کمتر از pHpzc، بار مثبت داشته و باعث جذب فلوراید می‌شود. با این وجود، تشکیل اسید ضعیف هیدروفلوریک، منجر به کاهش جذب یون‌های آزاد فلوئور در pH های اسیدی می‌شود.[٢٠] از طرفی کاهش حذف فلوراید در محیط‌های قلیایی می‌تواند ناشی از شباهت شعاع اتمی و بار یون‌های فلوراید و یون‌های هیدروکسید و در نتیجه رقابت آنها در جذب بر سطح جاذب باشد.[٢١] واکنش وابسته به pH حذف فلوراید با اکسیدهای فلزی به صورت زیر بیان می‌شود.

$$MOH + H^+ \rightarrow = MH_2^+ \quad (٦)$$

$$= MH_2^+ + F^- \rightarrow = MH_2^+ - F + H_2O \quad (٧)$$

$$MH_2^+ + F^- \rightarrow = MF + H_2 \quad (٨)$$

$$2[= MOH] + 2F^- \rightarrow = MOF - = MF + H_2O \quad (٩)$$

که در این روابط M می‌تواند Al، Fe، Si، Ti و غیره باشد. روابط ٦ تا ٩، واکنش الکترواستاتیک بین بار مثبت سطح جاذب و بار منفی یون‌های فلوراید در محدوده pH اسیدی را بیان می‌کند. رابطه ٧، واکنش تعویض لیگاند بین فلوراید و گروه‌های هیدروکسیل را نشان می‌دهد که در محدوده pH خنثی اتفاق می‌افتد و منجر به جذب محسوسی در این ناحیه می‌شود. این تعویض به دلیل شباهت یون‌های فلوراید و هیدروکسیل رخ می‌دهد.[٢١]

در مطالعه Yadav و همکاران، حداکثر ظرفیت حذف فلوراید با استفاده از پودر آجر بین pH های ٧ و ٨ بود.[٢٢] در مطالعات عسگری و همکاران و همچنین Chen و همکاران، بیشترین کارایی حذف فلوراید در pH=٦ گزارش گردید.[٢٣،٢٠] در مطالعه Sun و همکاران نیز بیشترین حذف فلوراید توسط زئولیت اصلاح شده با آهن (III) در pH= ٧ مشاهده شد.[٢٤] نوری سپهر و همکاران بیشترین میزان حذف فلوراید توسط پامیس طبیعی(NP)، پامیس اصلاح شده با پروکسید هیدروژن(MPH) و پامیس اصلاح شده با کلرید منیزیم(MGMP) را در pH=٦ گزارش دادند.[١٨]

تأثیر زمان تماس

افزایش زمان تماس بین آلاینده و ماده جاذب باعث افزایش ظرفیت جذب می‌شود. همان گونه که در شکل ٦ ملاحظه می‌شود، کارایی حذف فلوراید در دقایق اولیه واکنش سریع بوده و در زمان ٦٠ دقیقه به بیشترین میزان خود می‌رسد. با پیشرفت واکنش سرعت حذف به تدریج کاهش یافته و مقدار جذب ثابت می‌ماند و واکنش به تعادل می‌رسد. این روند به دلیل نیروهای جذب قوی بین یون‌های فلوراید و مولکول‌های جاذب شامل انتشار سریع بر روی سطح خارجی و به دنبال آن انتشار منفذی سریع در محیط بین ذره‌ای برای رسیدن به تعادل می‌باشد. در مطالعه عسگری و همکاران، زمان تعادل جذب فلوراید بر روی پامیس اصلاح شده با هگزا دسیل تری متیل آمونیوم بروماید، حدود ٦٠ دقیقه تعیین شد.[٢٠] نوری سپهر و همکاران زمان تعادل جذب فلوراید توسط جاذب‌های مورد بررسی را ٢١٠ دقیقه گزارش نمودند.[١٨] همچنین در مطالعه Ramdani و همکاران نیز زمان تعادل جذب فلوراید بر روی دو نوع رس اصلاح شده ٤٥ دقیقه تعیین شد.[٢٥]

تأثیر غلظت اولیه فلوراید

مطابق شکل ٧، با افزایش غلظت اولیه و به تبع آن در دسترس بودن تعداد بیشتر یون‌های فلوراید، میزان یون جذب شده در واحد جرم جاذب افزایش می‌یابد. از طرفی تعداد

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

مکان‌های فعال جذب بر روی سطح جاذب و کارایی حذف کاهش می‌یابد[۲۶]. این نتیجه با نتایج مطالعات Ramdani و همکاران و Sun و همکاران مشابه مطابقت داشت.[۲۵،۲۴]

تأثیر دوز جاذب

با افزایش دوز جاذب، تعداد محل‌های فعال واکنش و همچنین سطح لازم برای جذب یون‌های محلول در آب افزایش می‌یابد. افزایش جاذب، باعث کاهش غلظت یون‌های فلوراید باقی‌مانده در محلول و مقدار آلاینده جذب شده در واحد جرم جاذب می‌گردد[۲۷]. با توجه به شکل ۸، در دوز بهینه ۵ g/L جاذب، کارایی حذف فلوراید ۸۶/۳ درصد و ظرفیت جذب برابر ۰/۸۶ mg/g می‌باشد. در مطالعات مشابه، کارایی حذف فلوراید در دوز ۱۰ g/L از زئولیت اصلاح شده با آهن (III) بیش از ۹۰ درصد تعیین شد.[۲۴] همچنین Ramdani و همکاران دوز بهینه دو نوع رس اصلاح شده ($ANC\text{-}Na^{+}$ و $AC\text{-}N^{+}$) را ۰/۳ و ۰/۴ g/L گزارش دادند. کارایی حذف فلوراید در این مقادیر بیش از ۹۰ درصد بود.[۲۵]

بررسی سینتیک جذب فلوراید

سینتیک جذب، پارامتر مهمی در طراحی سیستم‌های جذب بوده و برای انتخاب شرایط بهره‌برداری در مقیاس‌های واقعی لازم می‌باشد.[۲۸] در مدل سینتیکی شبه درجه یک فرض می‌شود سرعت تغییرات برداشت ماده جذب شونده نسبت به زمان به طور مستقیم با تغییرات غلظت اشباع و مقدار برداشت جاذب متناسب می‌باشد.[۲۹] مدل شبه درجه دو فرض می‌کند که دو واکنش (موازی و یا سری) در جذب ماده جذب شونده بر روی جاذب مؤثرند، اولی سریع بوده و به سرعت به تعادل می‌رسد، در حالی که دومی سرعت کمی داشته و زمان طولانی تری ادامه می‌یابد.[۳۱] در این مطالعه، فرآیند جذب فلوراید از رابطه درجه ۲ پیروی نمود (شکل ۹). واکنش‌های درجه دوم با سرعتی متناسب با توان دوم ماده اولیه پیش می‌روند.[۳۰] بنابراین مکانیسم جذب فلوراید بر روی پامیس اصلاح شده می‌تواند جذب فیزیکی باشد. این نتیجه با نتایج حاصل از مطالعات نوری سپهر و همکاران و عسگری و همکاران مطابقت داشت.[۱۸،۲۰]

بررسی ایزوترم جذب

مدل‌های ایزوترمی لانگمویر و فروندلیخ به طور گسترده برای مطالعه فرآیند جذب استفاده می‌شوند. مدل لانگمویر بر اساس جذب تک لایه در تعداد محدودی جایگاه یکسان می‌باشد. در این مدل فرض می‌شود جذب در مکان‌هایی با انرژی یکسان بر روی سطح جاذب رخ می‌دهد، در حالیکه در ایزوترم فروندلیخ ماده حل شونده بر روی سطوح ناهمسان و در چندلایه جذب می‌شود[۳۱]. مطابق شکل ۱۰، نتایج حاصل از این مطالعه با مدل ایزوترمی لانگمویر مطابقت بهتری دارد و مبین جذب یک لایه فلوراید بر روی پامیس اصلاح شده و همگن بودن سطح جاذب می باشد.[۳۱]

حداکثر ظرفیت جذب فلوراید (q_{max}) حاصل از ایزوترم لانگمویر برابر ۲/۶mg/g محاسبه شد (جدول ۱). q_{max} زئولیت اصلاح شده با آهن (III) در مطالعه Sun و همکاران، برابر با ۲/۳۱ mg/g محاسبه شد[۲۴]. همچنین ظرفیت جذب NP، MPH و MGMP در مطالعه نوری سپهر و همکاران به ترتیب برابر ۴/۵، ۱۱/۷ و ۵/۵ mg/g تعیین شد. مقدار R_L بدست آمده برای واکنش در فاصله بین ۰/۰۷ تا ۰/۳۳ می‌باشد که نشان می‌دهد جذب فلوراید بر روی پامیس اصلاح شده مطلوب است.[۱۸] فاکتور ناهمگنی (1/n) حاصل از رابطه فروندلیخ، کمتر از یک و بیانگر مناسب بودن جذب تحت شرایط آزمایش می‌باشد.[۲۸] در مطالعه عسگری و همکاران، فرآیند جذب فلوراید از مدل ایزوترمی لانگمویر تبعیت نمود.[۲۰] همچنین واکنش حذف فلوراید توسط زئولیت اصلاح شده با آهن (III) و بوکسیت با مدل ایزوترمی لانگمویر مطابقت داشت.[۳۲،۲۴]

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

نتیجه‌گیری

با توجه سهولت دسترسی و هزینه کم تهیه پامیس خام و پوشش‌دهی آن و همچنین کارایی مؤثر و مناسب در حذف فلوراید، می‌توان پامیس با پوشش آهن را به عنوان گزینه‌ای مطلوب و امید بخش در حذف فلوراید از محیط‌های آبی مدنظر قرار گیرد.

تشکر و قدردانی

نویسندگان مقاله از حمایت‌های مالی و معنوی دانشکده بهداشت و معاونت تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی همدان که ما را در انجام این تحقیق یاری نمودند، تشکر و قدردانی می‌نمایند.

منابع

1. W.H.O. Guidelines for Drinking-Water Quality[Electronic resource].2th ed,Geneva 2008: 375–77.
2. Gaciri S, Davies T. The occurrence and geochemistry of fluoride in some natural waters of Kenya. J Hydrol 1993;143(3): 395-412.
3. Shen F, Chen X, Gao P, Chen G. Electrochemical removal of fluoride ions from industrial wastewater. Chem Eng Sci J 2003;58(3): 987-93.
1. W.H.O. Guidelines for Drinking-Water Quality[Electronic resource].2th ed,Geneva 2008: 120–30.
5. Mahramanlioglu M, Kizilcikli I, Bicer I. Adsorption of fluoride from aqueous solution by acid treated spent bleaching earth. J Fluorine Chem 2002;115(1):41-7.
6. Chinoy N. Effects of fluoride on physiology of animals and human beings. Indian J Environ Toxicol 1991; 1: 17-32.
7. Zhou Y, Yu C, Shan Y. Adsorption of fluoride from aqueous solution on La^{3+} impregnated cross-linked gelatin. Sep Purif Technol 2004;36(2):89-94.
8. Tressaud A. Fluorine and the Environment: Agrochemicals, Archaeology, Green Chemistry and Water: Agrochemicals, Archaeology, Green Chemistry and Water.1th ed. Elsevier scince and technolog rights.Oxford 2006: 54-67. 6-2-1)
9. Ghorai S, Pant K. Equilibrium, kinetics and breakthrough studies for adsorption of fluoride on activated alumina. Sep Purif Technol 2005; 42(3): 265-71.
10. Sujana M, Thakur R, Rao S. Removal of fluoride from aqueous solution by using alum sludge. J Coll Interf Sci 1998;206(1): 94-101.
11. Huang CJ, Liu J. Precipitate flotation of fluoride-containing wastewater from a semiconductor manufacturer. Water Res 1999;33(16): 3403-12.
12. Ayoob S, Gupta A, Bhat VT. A conceptual overview on sustainable technologies for the defluoridation of drinking water. Crit Rev Env Sci Technol 2008;38(6): 401-70.
13. Mohapatra M, Anand S, Mishra B, et al. Review of fluoride removal from drinking water. J Environ Manage 2009;91(1): 67-77.
14. Kitis M, Karakaya E, Yigit NO, et al. Heterogeneous catalytic degradation of cyanide using copper-impregnated pumice and hydrogen peroxide. Water Res 2005; 39: 1652-62.
15. APHA, AWWA, WEF. Standard methods for the examination of water and waste water. 20th ed, WashingtonD.C 2005: 709. 7-4-2)
16. Kitis M, Kaplan S, Karakaya E, et al. Adsorption of natural organic matter from waters by iron coated pumice. Chemosphere 2007;66(1): 130-38.
17. M. Li, X. Zhu, F. Zhu, et al. Application of modified zeolite for ammonium removal from drinking water, Desalination 2011;271: 294–300.
18. Noori Sepehra 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.
19. E. Katsou, S. Malamis, M. Tzanoudaki, et al. Regeneration of natural zeolite polluted by lead and zinc in wastewater treatment systems, J Hazard Mater 2011;189: 773–86.
20. Asgari G, Roshani B, Ghanizadeh G. The investigation of kinetic and isotherm of fluoride adsorption onto functionalize pumice stone. J Hazard Mater 2012;217: 123-32.
21. Sivasankar V, Ramachandramoorthy T, Darchen A. Manganese dioxide improves the efficiency of earthenware influoride removal from drinking water. Desalination 2011;272: 179-86.
22. A.K. Yadav, C.P. Kanshik, A.K. Haritash, et al. Defluoridation of groundwater using brick powder as an adsorbent. J Hazard Mater 2006;128: 289–93.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

23. Chen N, Zhang Z, Feng C, et al. Fluoride removal from water by granular ceramic adsorption. J Coll Interf Sci 2010;348(2): 579-84.

24. Sun Y, Fang Q, Dong J, et al. Removal of fluoride from drinking water by natural stilbite zeolite modified with Fe (III). Desalination 2011;277: 121–27.

25. 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.

26. Karthikeyan M, Kumar KKS, Elango KP. Batch sorption studies on the removal offluoride ions from water using eco-friendly conducting polymer/bio-polymer composites. Desalination 2011;267: 49–56.

27. Maliyekkal SM, Shukla S, Philip L, Nambi IM. Enhanced fluoride removal from drinking water by magnesia-amended activated alumina granules. Chem Eng J 2008;140:183-92.

28. Sujana MG, Anand S. Iron and aluminium based mixed hydroxides: A novel sorbent for fluoride removal from aqueous solutions. Appl Surf Sci 2010;256: 6956–62.

29. Nandi B.K, A. Goswami, and M.K. Purkait, Adsorption characteristics of brilliant green dye on kaolin. J Hazard Mater 2009;161(1): 387-95.

30. Zazouli M A, Yousefi Z, Taghavi M, et al. Cadmium removal from aqueous solutions using modified single-walled carbon nanotubes with L – cysteine. J Mazand U Med Sci 2012;22(98): 37-47 [In Persian].

31. Zhu HY, Jiang R, Xiao L, Zeng GM. Preparation, characterization, adsorption kinetics and thermodynamics of novel magnetic chitosan enwrapping nanosized γ-Fe2O3 and multiwalled carbon nanotubes with enhanced adsorption properties for methyl orange**.** Bioresource Technol 2010;101: 5063-69.

32. Sujana M, Anand S. Fluoride removal studies from contaminated ground water by using bauxite. Desalination 2011;267(2): 222-27.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]

Survey the Efficiency of Iron- Coated pumice in Fluoride Removal from Aqueous Solutions

Mohammad Reza Samarghandi[1], Monireh Tarlani azar[2*], Razieh Mehranpoor[2], Mahnaz Ahmadian[2]

1. Health Research Center, Faculty of Public Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

2. Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Public Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

E-mail: Monireh.Tarlani@.yahoo.com

Received: 25 Sep 2014 ; Accepted: 20 Dec 2014

ABSTRACT

Background: Shortage of fluoride in water sources leads to numerous health problems. Also excess fluoride concentration is a more serious threat for health of community. Thus investigating of various physical, chemical, and biological processes for excess fluoride reduction from water supplies is considerable. This study aimed to reduce fluoride ion concentration from aqueous solutions by adsorption process by iron-coated pumice.

Methods: Firstly, the pumice pieces were grinded and sized. After several preparation stages pumice particles were covered by 0.5 N iron nitrates (III) solution. Then the effect of parameters including pH (2-10), reaction time (5-120 min), initial fluoride concentration (3– 20 mg/L), and the adsorbent dose (0.1-1.5 g/L) on removal efficiency of fluoride were investigated in a batch system. Finally adsorption isotherms and kinetics models were determined.

Results: The results showed that the removal of fluoride increased by increasing of reaction time and adsorbent dose, and reduced by increasing of initial fluoride concentration. The Iron coated pumice exhibited the best performance for fluoride removal (84.3%) at fluoride concentration 3 mg/L, adsorbent dose 0.5 g/L, pH= 6, and contact time 30 min. The adsorption equilibrium data fitted well with the Langmuir model (R^2= 0.9989), and kinetic adsorption study showed that pseudo-second order kinetic is more favorable.

Conclusion: According to results, the iron-coated pumice is an efficient, low cost and available adsorbent that can be considered for eliminating of fluoride ions from aqueous solutions.

Keywords: Fluoride, Iron-Coated Pumice, Adsorption Process, Adsorption isotherm

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-14]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.2.2.128]