



کاربرد استخوان ماهی مرکب به عنوان جاذب طبیعی در حذف فلئور مازاد از آب

آشامیدنی

نویسندگان: سید محمد پرستار^۱ قادر غنی زاده^۲ محمدتقی قانعیان^۳

۱. دانش آموخته کارشناسی ارشد مهندسی محیط زیست، گروه مهندسی محیط زیست - آب و فاضلاب، دانشگاه آزاد اسلامی

واحد بندرعباس

۲. نویسنده مسئول: دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، مرکز تحقیقات بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی بقیه ا... (عج)، تهران،

تلفن: ۰۹۱۲۵۵۹۹۸۲۷ Email: qanizadeh@yahoo.com

۳. دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد

چکیده

مقدمه: کنترل غلظت فلئور در آب آشامیدنی به دلیل اثر بر سلامت انسان بسیار مهم است. هدف مطالعه بررسی کارایی استخوان ماهی مرکب در حذف فلئور مازاد از آب و تعیین تأثیر pH، غلظت جاذب، زمان تماس و غلظت اولیه فلئور بود.

روش بررسی: مطالعه با استفاده از راکتورهای ناپیوسته در مقیاس آزمایشگاهی انجام شد. خرد کردن و دانه بندی جاذب با استفاده از آسیاب برقی و الک های استاندارد ASTM انجام گرفت. مشخصات ساختاری و سطح ویژه جاذب با تکنیک های پراکنش پرتو ایکس (XRD)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و ایزوترم BET تعیین شد. غلظت فلئور با روش نور سنجی در طول موج ۵۷۰ نانومتر تعیین شد. ایزوترم جذب و ظرفیت جاذب با مدل های جذب فروندلیچ، لانگمیر و تمکین تعیین گردید.

یافته ها: سطح ویژه جاذب ۵/۳۶ متر مربع در هر گرم و ترکیب اصلی آن کربنات کلسیم است. در pH خنثی، دوز جاذب ۱۵ g/L، غلظت اولیه فلئور ۷ mg/L و زمان تماس ۱۲۰ دقیقه راندمان حذف معادل ۵۲/۰۲٪ بود. با افزایش دوز جاذب از ۱۵ g/L به ۴۵ g/L این میزان به ۷۵/۲٪ افزایش یافت. داده های جذب با ایزوترم جذب لانگمیر ($R^2 = ۰/۹۹۷$) مطابقت دارد. حد اکثر ظرفیت جذب بر اساس مدل لانگمیر mg/g ۱/۶۴، b معادل ۰/۰۶۳ L/mg و ضریب بدون بعد R_L معادل ۰/۷۶ تعیین شد. بر اساس مدل فروندلیچ نیز میزان ضرائب n و k به ترتیب معادل ۰/۹ و ۰/۰۸ محاسبه شد.

نتیجه گیری: با افزایش زمان تماس، غلظت اولیه فلئور، دوز جاذب و کاهش pH محلول میزان حذف افزایش می یابد.

واژه های کلیدی: جذب، فلئور، استخوان، ماهی مرکب، آب آشامیدنی

طلوع بهداشت

فصلنامه علمی پژوهشی

دانشکده بهداشت یزد

سال دوازدهم

شماره: چهارم

زمستان ۱۳۹۲

شماره مسلسل: ۴۱

تاریخ وصول: ۹۱/۴/۳۱

تاریخ پذیرش: ۹۱/۶/۲۰



مقدمه

فلوتور یکی از عناصر پوسسته زمین است که در تعدادی از مواد معدنی و سنگها یافت می شود (۲، ۱). سازمان بهداشت جهانی (WHO) حداکثر غلظت فلوتور را در آب آشامیدنی حدود ۱/۵ و حد مطلوب آن را ۰/۷-۱/۲ میلی گرم بر لیتر تعیین کرده است (۴، ۳). مقادیر کمتر آن در آب آشامیدنی باعث بروز پوسیدگی دندان و مقادیر بالاتر از حد استاندارد (ترجیحاً بالاتر از ۲ میلی گرم بر لیتر) باعث فلوتوروزیس استخوانی و دندانی می شود (۵، ۱). مطالعات انجام شده نشان می دهد که غلظت فلوتور در آبهای زیر زمینی بیش از ۲۲ کشور توسعه یافته و در حال توسعه از جمله ایران بیشتر از مقادیر توصیه شده سازمان جهانی بهداشت است (۶). آبهای زیر زمینی جزء منابع ترجیحی آب شرب به ویژه در مناطق روستایی می باشند. بنابراین حذف فلوتور مازاد از منابع آبهای آشامیدنی به دلیل جوانب بهداشتی بسیار مهم و مورد توجه است (۷). روشهای مختلفی برای حذف فلوتور به کار رفته که شامل فرآیندهای اسمز معکوس (۹، ۸)، تبادل یونی (۱۰، ۳)، الکترودیالیز (۱۱)، نانوفیلتراسیون (۱۲)، بیوجذب (۱۳)، جذب سطحی توسط آلومینای فعال و اکسید منگنز حاوی پوشش آلومینا (۱۵، ۱۴) است. از میان روشهای فوق استفاده از فرآیند جذب یک روش ساده، ارزان و رو به گسترش است که برای حذف فلوتور از آب مورد توجه قرار گرفته است. انواع مختلف مواد جاذب نظیر آلومینای فعال، خاک رس، زغال چوب و خاکستر فرار برای حذف آلاینده های مختلف مورد استفاده قرار گرفته اند (۱۶) اما با توجه به اینکه در فرآیند جذب هزینه مواد

جاذب یک مسئله بسیار مهم است محققین اخیراً عملکرد جاذبهایی را بررسی می کنند که ضمن هزینه کمتر بتوانند آلاینده مورد نظر را با راندمان بالاتر حذف کنند تا از نظر اقتصادی مقرون به صرفه باشد. بسیاری از جاذب های استفاده شده به دلایل متعدد نظیر عملکرد در pH اسیدی و غیر خنثی، راندمان پایین و حضور غلظت بالای فلوتور در خروجی آنها با توجه به مقادیر توصیه شده سازمان جهانی بهداشت برای تصفیه آب آشامیدنی مناسب نیستند (۱۵). چن و همکارانش در سال ۲۰۱۰ عملکرد سرامیک را به عنوان جاذب برای حذف فلوتور از محیط آبی بررسی و گزارش کرده اند که این جاذب در محدوده وسیعی از pH اسیدی و قلیایی (۱۱-۴) می تواند فلوتور را حذف کند. این محققین ظرفیت جذب این جاذب را در شرایط مطالعه شده معادل ۲/۱۶ میلی گرم بر گرم گزارش کرده اند (۱۷). یوانگ و همکارانش در سال ۲۰۰۲ و نوروزی و همکارانش در سال ۱۳۸۸ تأثیر آلومینای فعال بر غلظت فلوتور موجود در آب را بررسی و گزارش کرده اند که آلومینای فعال جاذب موثری برای حذف فلوتور از محلولهای آبی است (۱۹، ۱۸). کاشی تراش و همکارانش در سال ۱۳۸۸ عملکرد خاکستر استخوان را در حذف فلوتور از منابع آب آشامیدنی مطالعه و گزارش کرده اند که این جاذب می تواند ۹۰٪ فلوتور را حذف کند (۲۰). مایتی و همکارانش در سال ۲۰۱۱ عملکرد شیمیایی خاک رس را به عنوان جاذب در جذب فلوتور از محلول آبی را مورد بررسی و حداکثر ظرفیت جذب فلوتور را ۳۹/۱ میلی گرم بر گرم گزارش کرده اند (۲۱). با توجه به مشکلات تهیه و تامین بسیاری از این جاذبها و ضرورت توسعه



مدت ۲۴ ساعت و سرد کردن آن از دسیکاتور به مدت ۴ ساعت استفاده گردید. در مرحله بعد برای آماده سازی جاذب در اندازه های مشخص استخوان آسیاب شده و با استفاده از الکهای استاندارد ASTM با مش ۵۰، ۷۰، ۱۰۰ (معادل ۳۰۰-۱۵۰ میکرون) دانه بندی شد. مشخصات ساختاری جاذب مورد نظر با استفاده از تکنیک های پراکنش پرتو ایکس X-ray (Diffraction) (مدل X'pert MPD ساخت شرکت فیلیپس)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (Scanning Electronic Microscope) (ساخت شرکت فیلیپس کشور هلند) و سطح ویژه جاذب با جذب/واجذب گاز ازت و ایزوترم جذب BET (Braunner-Emmet-Teller) تعیین شد. علت انتخاب استخوان ماهی مرکب به عنوان جاذب، طبیعی بودن، فراوانی و ارزان بودن آن است.

در این مطالعه تأثیر پارامترهای مختلف از قبیل تأثیر زمان تماس (۳۰، ۶۰، ۹۰ و ۱۲۰ دقیقه)، غلظت اولیه فلئوئور (۷، ۵ و ۳ میلی گرم بر لیتر)، pH (۹، ۷ و ۵) و دوز جاذب (۱۵، ۱۰، ۷، ۵، ۳ میلی گرم بر لیتر) در حذف آلاینده بررسی شد. آزمایش ها در ظروف پلاستیکی به حجم ۱۰۰ میلی لیتر انجام شد که برای اختلاط نمونه ها از دستگاه همزن آزما گستر (مدل TM 52 ساخت ایران) با سرعت ۱۲۰ rpm استفاده گردید. برای صاف کردن نمونه ها بعد از فرآیند جذب، از کاغذ صافی استفاده شد. pH نمونه ها با سود و اسید کلریدریک یک نرمال تنظیم شد. بعد از تعیین زمان مناسب، دوز جاذب و pH جذب مشخصه های مرتبط با ایزوترم جذب فلئوئور بر روی استخوان ماهی مرکب تعیین گردید. برای تعیین

و معرفی جاذبهای مناسب برای تصفیه آب، این مطالعه با هدف امکان سنجی حذف فلئوئور مازاد آب توسط استخوان ماهی مرکب به عنوان جاذب طبیعی و تعیین تأثیر عوامل pH، دوز جاذب، غلظت اولیه فلئوئور و زمان تماس جاذب بر میزان جذب فلئوئور در شرایط آزمایشگاه (دمای $25 \pm 2^\circ\text{C}$) انجام شد. علت توجه به این جاذب این است که مقادیر زیادی از این جاذب به صورت ماده زائد در مناطق ساحلی کشور بدون هیچ هزینه تولید می شود که به نظر می رسد با آماده سازی اولیه و بسیار ساده نظیر شستشوی معمولی می توان از آن به عنوان ماده پایه برای تصفیه آلاینده های مختلف از آب و فاضلاب استفاده کرد.

روش بررسی

پژوهش حاضر یک مطالعه کاربردی از نوع تجربی است که در آن استخوان ماهی مرکب به عنوان جاذب طبیعی در حذف فلئوئور مازاد از آب آشامیدنی مورد استفاده قرار گرفت. آب حاوی فلئوئور از انحلال ۲۲۲ میلی گرم نمک فلئوئور سدیم بدون آب (NaF) محصول شرکت مرک آلمان در آب مقطر یون زدایی تهیه شد. جهت تهیه نمونه با غلظتهای مورد نظر رقیق سازی محلول مادر با استفاده از آب مقطر یون زدایی شده انجام شد. اندازه گیری غلظت فلئوئور با استفاده از روش SPADNS و سنجش میزان جذب نور نمونه ها با دستگاه اسپکتروفوتومتر (Cary 100 (VARIAN: 100) در طول موج ۵۷۰ nm انجام گرفت. برای آماده سازی جاذب ابتدا استخوان ماهی مرکب جهت حذف ناخالصی ها به مدت ۱۰ دقیقه در آب مقطر جوشانده شد. برای خشک کردن آن از آون با دمای ۱۰۵-۱۰۳ درجه سانتی گراد به



از pH محیط است مرتبط می باشد. بر اساس نتایج حاصل از این مرحله، راندمان حذف فلئورازاد برای pH ۵، ۷ و ۹ پس از مدت زمان ۱۲۰ دقیقه به ترتیب ۵۱، ۵۰ و ۴۰ درصد می باشد.

در بررسی اثر دوز جاذب نتایج نشان داد که در زمان تماس ۱۲۰ دقیقه و pH=۷ بر اساس شکل ۲ با افزایش مقدار استخوان ماهی مرکب که به عنوان جاذب استفاده شده، درصد حذف فلئورازاد نیز افزایش می یابد. زیرا سطح وسیعتری از جاذب در اختیار فلئورازاد قرار می گیرد و فلئورازاد بیشتری می تواند روی سطح جاذب جذب شود. در این تحقیق از پنج دوز جاذب ۳، ۵، ۷، ۱۰ و ۱۵ گرم در لیتر استفاده شد که بیشترین درصد حذف در غلظت ۱۵ گرم در لیتر اتفاق افتاد که حدود ۵۲٪ است. برای تعیین حداکثر جذب توسط جاذب، از غلظت های ۲۵، ۳۵ و ۴۵ گرم در لیتر نیز در pH ۷، غلظت اولیه فلئورازاد ۵ میلی گرم در لیتر و زمان های تماس ۶۰، ۹۰ و ۱۲۰ دقیقه استفاده شده (شکل ۳) که بیشترین درصد حذف آن در دوز جاذب ۴۵ گرم در لیتر و زمان تماس ۱۲۰ دقیقه رخ داده که برابر ۷۵٪ است.

بطور کلی با افزایش غلظت اولیه ماده جذب شونده، راندمان حذف و جذب توسط جاذب افزایش می یابد. به منظور بررسی اثر غلظت اولیه فلئورازاد در حذف آن آزمایشات در سه غلظت اولیه ۳، ۵ و ۷ میلی گرم در لیتر (که با توجه به مقادیر معمول در برخی آب های زیر زمینی و پساب خروجی برخی کارخانجات انتخاب گردید) انجام گرفت. شکل ۴ نشان می دهد که با افزایش غلظت اولیه فلئورازاد، راندمان حذف افزایش یافته و بیشترین درصد حذف فلئورازاد در غلظت ۷ میلی گرم در لیتر رخ داده است.

ایزوترم و ظرفیت جذب از مدل های ایزوترم فروندلیچ، لانگمیر و تمکین (معادلات ۱-۳) استفاده شد.

یافته ها

شکل ۱ ترکیبات موجود در جاذب مورد نظر را که با استفاده از تکنیک پراکنش پرتو ایکس تهیه شده نشان می دهد. بر اساس این شکل می توان گفت که استخوان ماهی مرکب یک فرم متبلور خوبی دارد. آنالیزهای انجام شده بر روی این تصویر نشان می دهد که جاذب مورد نظر یک ماده کریستالی تک فاز است به طوریکه ساختار ماده کربنات کلسیم (CaCO_3) از نوع آراگونیت است که حاوی ۹۶٪ کربنات کلسیم (CaCO_3) و مقدار ناچیزی از سدیم (۱/۲۸٪ به صورت Na_2O) و فسفر (۰/۵۳٪ به صورت P_2O_5) در ساختار آن وجود دارد.

نتایج بررسی تأثیر زمان تماس بر حذف فلئورازاد توسط استخوان ماهی مرکب در زمان های تماس ۳۰، ۶۰، ۹۰ و ۱۲۰ دقیقه نتایج نشان داد که در دوز فلورازاد ۷ میلی گرم در لیتر، دوز جاذب ۱۵ گرم در لیتر و pH=۷ با افزایش زمان تماس از حدود ۳۰ دقیقه به ۱۲۰ دقیقه میزان حذف فلئورازاد از ۳۷/۷۴ درصد به ۵۲/۰۲ درصد افزایش یافته است به طوریکه سرعت واکنش در ابتدای تماس جاذب با محلول، بیشتر است و با گذشت زمان این سرعت به تدریج کاهش می یابد.

بررسی اثر pH در حذف فلئورازاد توسط استخوان ماهی مرکب در محدوده pH ۳، ۵، ۷ و ۹ با غلظت فلورازاد ۷ میلی گرم در لیتر نشان داد که با افزایش pH، درصد حذف فلئورازاد کاهش می یابد که این کاهش احتمالاً به تغییر بار الکتریکی سطح جاذب که تابعی



معادلات ایزوترم جذب لانگمویر، فروندلیچ و تمکین که به صورت معادله ۱ و ۲ و ۳ نشان داده شده است؛ استفاده گردید. بر اساس بررسی ضرایب همبستگی منحنی های این سه مدل جذب که مقادیر آنها در شکل های ۵، ۶ و ۷ آمده می توان چنین نتیجه گیری کرد که جذب فلونئور بر روی استخوان ماهی مرکب با توجه به ضریب همبستگی بالاتر ($R^2=0/997$) از ایزوترم جذب

لانگمویر تبعیت می کند.

معادله ۱: ایزوترم جذب لانگمویر

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{Q_{\max} b} + \frac{C_e}{Q_{\max}}$$

معادله ۲: ایزوترم جذب فروندلیچ

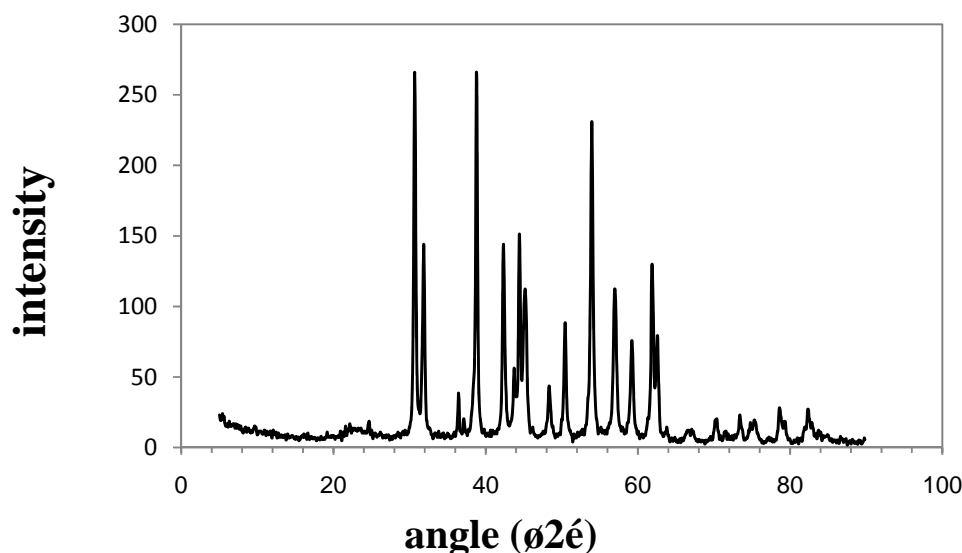
$$\log q_e = \log K + \frac{1}{n} \log C_e$$

معادله ۳: ایزوترم جذب تمکین

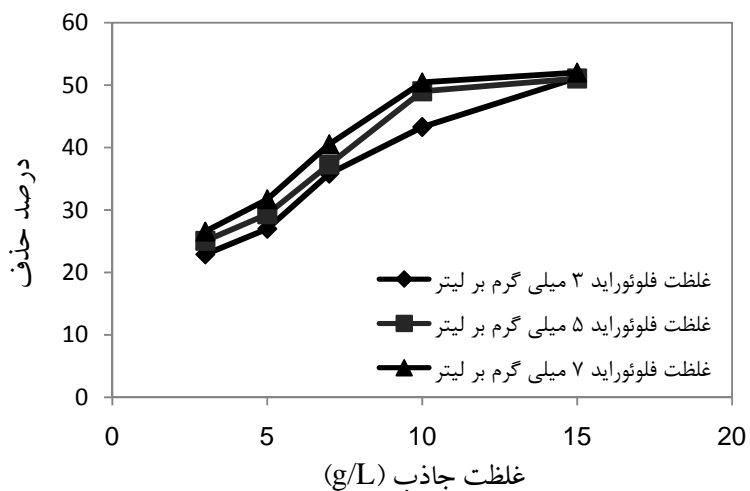
$$q_e = B \ln k_t + B \ln C_e$$

بطور کلی با افزایش غلظت اولیه ماده جذب شونده، راندمان حذف و جذب توسط جاذب افزایش می یابد. به منظور بررسی اثر غلظت اولیه فلونئور در حذف آن آزمایشات در سه غلظت اولیه ۳، ۵ و ۷ میلی گرم در لیتر (که با توجه به مقادیر معمول در برخی آب های زیر زمینی و پساب خروجی برخی کارخانجات انتخاب گردید) انجام گرفت. شکل ۴ نشان می دهد که با افزایش غلظت اولیه فلونئور، راندمان حذف افزایش یافته و بیشترین درصد حذف فلونئور در غلظت ۷ میلی گرم در لیتر رخ داده است.

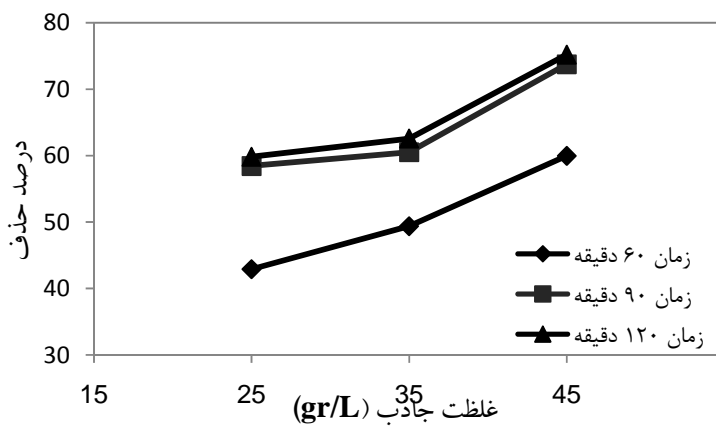
در مطالعات مربوط به جذب آلاینده ها بر روی جاذب های مختلف، تعیین ایزوترم جذب و ظرفیت جاذب مورد استفاده، از مهمترین مشخصه هایی است که باید مورد توجه قرار گیرد. برای بررسی تطابق داده ها با این مدل های جذب از حالت های خطی



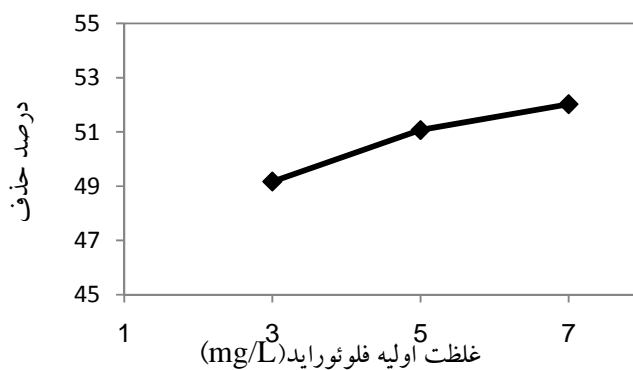
شکل ۱: منحنی XRD استخوان ماهی مرکب



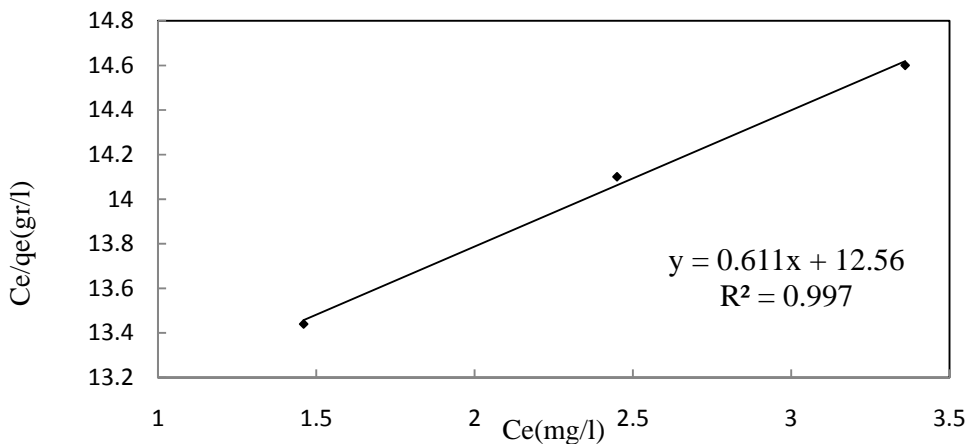
شکل ۲: تأثیر غلظت جاذب در راندمان حذف فلئورازید در زمان ۱۲۰ دقیقه و pH=۷



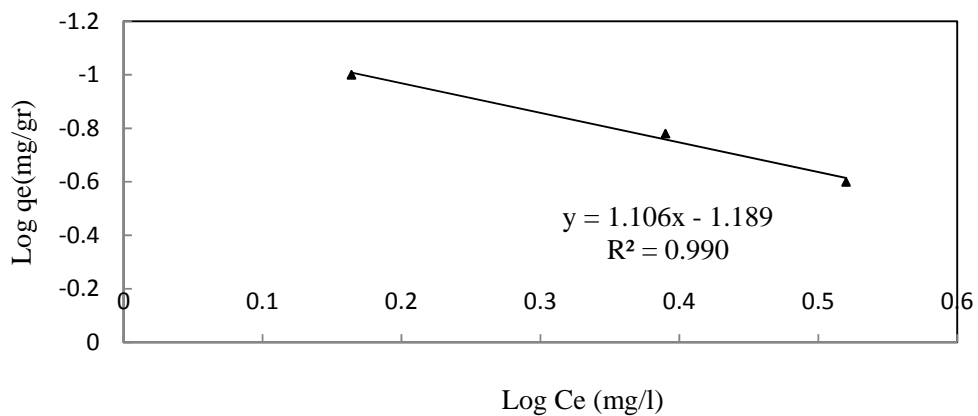
شکل ۳: درصد حذف فلئورازید در pH=۷ و غلظت اولیه فلئورازید ۵ mg/L



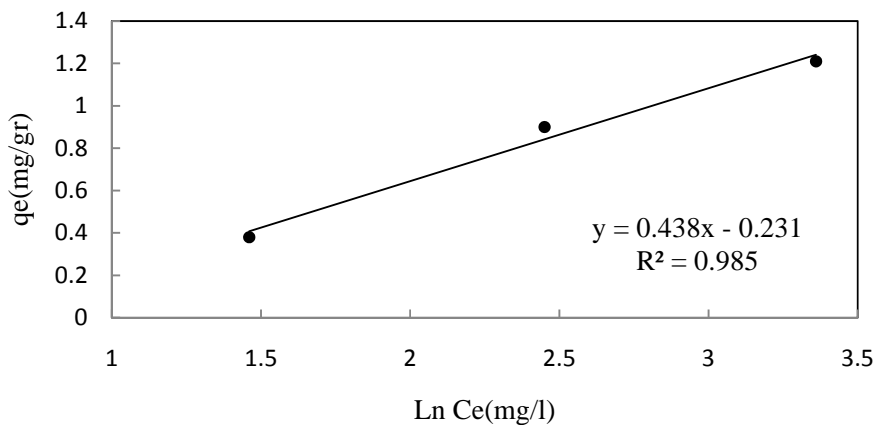
شکل ۴: تأثیر غلظت اولیه فلئورازید در دوز جاذب ۱۵ میلی گرم بر لیتر، زمان تماس ۱۲۰ دقیقه و pH=۷



شکل ۵: ایزوترم لانگمیر در جذب فلونئور با استخوان ماهی مرکب



شکل ۶: ایزوترم فروندلیچ در جذب فلونئور با استخوان ماهی مرکب



شکل ۷: ایزوترم تمکین در جذب فلونئور با استخوان ماهی مرکب



بحث و نتیجه گیری

بررسی اثر جرم جاذب و تعیین جرم بهینه جاذب های مورد استفاده در فرآیندهای جذب یکی از مهمترین مسائلی است که باید مورد توجه قرار گیرد. هر چند بر اساس یافته های این مطالعه میزان جذب آلاینده ها با افزایش میزان جاذب افزایش یافته است اما بررسی دقیق تر نتایج مطالعه نشان می دهد که با افزایش جرم جاذب میزان فلئوئور جذب شده در واحد جرم جاذب کاهش یافته است. علت چنین پدیده ای به عدم اشباع شدن نقاط فعال در جذب آلاینده ارتباط دارد. به طوریکه با افزایش جرم جاذب ظرفیت کل نقاط فعال موجود در سطح جاذب به طور کامل مورد استفاده قرار نگرفته و همین امر منجر به کاهش میزان جذب در واحد جرم جاذب می گردد. نتایج مشابهی توسط دیگر محققین نیز گزارش شده است که مایتی و همکارانش در سال ۲۰۱۱ عملکرد شیمیایی خاک رس را به عنوان جاذب در جذب فلئوئور از محلول آبی بررسی کرده و گزارش کرده اند که با توجه به افزایش نسبت جرم جاذب به حجم مایع، راندمان حذف به آن نسبت افزایش نیافته است که با یافته های این پژوهش مطابقت دارد (۲۱).

pH محیط واکنش یکی از مهمترین عواملی است که با تأثیر بر بار سطحی جاذب، راندمان فرآیند را تحت تأثیر قرار می دهد. بر اساس نتایج مطالعه حاضر با افزایش pH، درصد حذف کاهش یافت در حالی که تفاوت بین pH ۵ و ۷ بسیار ناچیز ولی در pH ۹ کاهش قابل توجهی داشته است. این مکانیزم را می توان با بررسی ترکیبات استخوان ماهی مرکب بهتر درک کرد. وقتی استخوان

ماهی مرکب در آب مخلوط می شود گونه های HCO_3^- ، CO_3^{2-} ، Ca^{2+} ، CaHCO_3^+ و CaOH^+ تولید می کند. وقتی pH محلول بالا باشد، در نقطه بدون بار الکتریکی ($\text{pH} > \text{pH}_{\text{ZPC}}$)، جزء منفی غالب خواهد بود و سطح، بار منفی خواهد داشت. وقتی که محلول بیشتر اسیدی باشد، در نقطه بدون بار الکتریکی ($\text{pH} < \text{pH}_{\text{ZPC}}$)، جزء مثبت غالب خواهد بود و سطح، بار مثبت خواهد داشت. وقتی استخوان ماهی مرکب به عنوان جاذب در محلول قرار دارد، با کاهش pH، Ca^{2+} بیشتری فراهم می شود که این عمل منجر به افزایش درصد حذف فلئوئور از محلول می گردد.

واکنش جذب از نوع تبادل یونی می باشد و pH بالا منجر می شود که در خواص الکتروجنبشی سطح استخوان ماهی مرکب تغییر ایجاد شود و افزایش بار منفی در سطح جاذب باعث کاهش جذب فلئوئور می شود. نتایج مطالعه انجام شده توسط مایتی و همکارانش در سال ۲۰۱۱ که از خاک رس به عنوان جاذب جهت حذف فلئوئور از محلول آبی استفاده کردند، نشان داد که با افزایش pH از ۵ به ۱۴ راندمان جذب کاهش می یابد (۲۱). نتایج مشابهی توسط نوروزی و همکارانش در سال ۲۰۰۹ که بر تأثیر آلومینای فعال بر غلظت فلئوئور موجود در آب بررسی کرده اند گزارش شده است که با یافته های این پژوهش مطابقت دارد (۱۸).

تغییرات غلظت اولیه فلئوئور از عوامل دیگری است که میزان جذب را در این سیستم ها تحت تأثیر قرار می دهد. بر اساس یافته های این مطالعه با افزایش غلظت اولیه فلئوئور از ۳ به ۷ میلی



مطالعات میکروسکوپ الکترونی نشان می دهد که استخوان ماهی مرکب به خوبی متبلور و یکنواخت است.

۳- سرعت واکنش در ابتدای تماس جاذب با محلول بیشتر است و با گذشت زمان این سرعت کاهش می یابد. در زمان ۳۰ دقیقه حدود ۳۵ درصد از فلئور موجود حذف گردید.

۴- در pH ۵ و ۷ درصد حذف بالایی رخ داده است و تفاوت این دو در درصد حذف بسیار ناچیز است. pH ۷ خنثی بوده و قابل شرب است به همین دلیل pH ۷، pH بهینه معرفی شده است.

۵- در این تحقیق ایزوترم جذب در مدل های فروندلیچ، لانگمویر و تمکین مورد بررسی قرار گرفت که نشان داد جذب بیشتر از مدل تمکین تبعیت می کند. ضریب همبستگی در ایزوترم مدل تمکین ($R^2 = 0.9989$) بیشتر از دو مدل فروندلیچ و لانگمویر است.

۶- در انجام این تحقیق کلیه متغیرها مورد آزمایش قرار گرفت و تأثیرات هر یک از آن ها به طور کامل بحث گردید. بالاترین و مناسب ترین درصد حذف فلئور در pH=۷، غلظت اولیه فلئور ۷ میلی گرم در لیتر، دوز جاذب ۱۵ گرم در لیتر و زمان تماس ۱۲۰ دقیقه به دست آمد که برابر ۵۲ درصد است. در پایان این آزمایشات و با مشخص شدن فلئور اولیه مناسب و pH بهینه، مقدار دوز جاذب را افزایش داده تا حداکثر مقدار جذب فلئور توسط استخوان ماهی مرکب مشخص گردد که این مقدار در دوز جاذب ۴۵ گرم در لیتر و زمان تماس ۱۲۰ دقیقه اتفاق افتاده است که برابر ۷۵/۲ درصد است.

در پایان می توان نتیجه گرفت که استفاده از استخوان ماهی مرکب

گرم در لیتر راندمان حذف افزایش می یابد. چنین نتایجی توسط کامگا و همکارانش در سال ۲۰۱۰، لی و همکارانش در سال ۲۰۰۱ و شمس و همکارانش در سال ۲۰۰۹ تایید شده است (۲۲، ۱۶).

یکی دیگر از عوامل مهمی که در راندمان حذف تأثیر می گذارد، زمان تماس است که در این مطالعه با افزایش زمان تماس درصد حذف افزایش می یابد. سرعت واکنش در ابتدای تماس جاذب با محلول بیشتر است و با گذشت زمان این سرعت به تدریج کاهش می یابد و در زمان کمتر از ۳۰ دقیقه یونهای فلئور به سرعت بر روی سطح جاذب به علت تداخل شیمیایی خاص جاذب و قدرت جذب آن می نشیند. با گذشت زمان و قرار گرفتن یون های فلئور در منافذ داخلی جاذب، این سرعت کاهش می یابد تا به تعادل برسد. اکثر محققینی که در زمینه حذف فلئور توسط جاذب مطالعاتی انجام داده اند، نتایج مشابهی با یافته های پژوهش حاضر گزارش کرده اند که نشان می دهد یافته های این پژوهش با یافته های دیگر پژوهشگران مطابقت دارد.

در پایان نتیجه گیری نهایی که از انجام این تحقیق می توان ارائه نمود به طور اجمالی به شرح زیر است:

۱- استخوان ماهی مرکب به عنوان جاذب برای حذف فلئور مازاد از آب آشامیدنی موثر است. از مزیت های مهم این جاذب، طبیعی بودن جاذب است که سلامت مردم را به خطر نمی اندازد و از لحاظ فراوانی، به وفور در مناطق جنوب کشور یافت می شود.

۲- تجزیه و تحلیل عنصر نشان داد که در استخوان ماهی مرکب ۹۶ درصد کربنات کلسیم وجود دارد. الگوی پراش اشعه ایکس و



تشکر و قدردانی

نویسندگان لازم می‌دانند از کسانی که ما را در انجام این پژوهش یاری نموده‌اند تشکر و قدردانی نمایند، لازم به ذکر است این مقاله حاصل پایان نامه دانشجویی می‌باشد.

به عنوان جاذب در حذف فلئور مازاد از آب آشامیدنی یک روش مناسب، طبیعی و مقرون به صرفه است و می‌توان از آن برای حذف فلئور استفاده کرد.

References

- 1-Chidambaram S, Ramanathan AL, Vasudevan S. Fluoride removal studies in water using natural materials. *Wat SA* 2003; 29(3): 339-43.
- 2-Tor A. Removal of fluoride from water using anion exchange membrane under Donnan dialysis condition. *J Hazard. Mate* 2007; 141(3): 814-18.
- 3-Castel C, Schweitzer M, Simonnot M.Q, Sardin M. Selective removal of fluoride ions by a two way ion exchange cyclic process. *J Chemi Engin Sci* 2000; 55(17): 3341-53.
- 4-Fan X, Parke D.J, Smit M.D. Adsorption of fluoride on low cost materials. *Wat.Res* 2003; 37(20): 4929-37.
- 5-Islam M, Patel R. Thermal activation of basic oxygen furnace slag and evaluation of its fluoride removal efficiency. *Chem Engi J* 2011; 169(1-3): 68-77.
- 6 –Viswanathan N, Meenakshi S. Enriched fluoride sorption using alumina/chitosan composite *Original J Haz Mat* 2010; 178(1-3) 226-32
- 7 –Gao X.B, Zhang F.C, Wang C, Wang Y.X. Coexistence of High Fluoride Fresh and Saline Groundwaters in the Yuncheng Basin, Northern China. *Procedia Earth and Planetary Sci* 2013; 7; 280-83
- 8 - Maheshwari M. R.C. Fluoride in drinking water and its removal. *J Haz Mat* 2006; 137(1): 456-63.
- 9 –Chen N, Zhang Z, Feng C, Zhu D, Yang Y, Sugiura N. Preparation and characterization of porous granular ceramic containing dispersed aluminum and iron oxides as adsorbents for fluoride removal from aqueous solution. *J Haz Mat* 2011; 186(1) 863-68.
- 10-Wisniewski J, Rozanska A. Donnan dialysis with anion-exchange membranes as a pretreatment step before electro dialytic desalination. *Desalination* 2006; 191(1-3): 210-18.
- 11 - Zeni M, Riveros R, Melo K, Primieri R, Lorenzini S. Study on fluoride reduction in artesian well- water from electro dialysis process. *Desalination* 2005; 185(1-3): 241-44.



- 12-Kang Hu, James M.D. Nanofiltration membrane performance on fluoride removal from water. *Journal of Membrane Science* 2006; 279(1-2): 529-38.
- 13-Venkata Mohan S, Ramanaiah S.V, Rajkumar B, Sarma P.N. Removal of fluoride from aqueous pHase by biosorption onto algal biosorbent *Spirogyra sp.-IO2*: Sorption mechanism elucidation. *Journal of Hazardous Materials* 2007; 141(3): 465–74.
- 14-Shihabudheen, Maliyekkal M, Atul Kumar Sh. Manganese-oxide-coated alumina: A promising sorbent for defluoridation of water. *Water Research* 2006; 40(19): 3497–3506
- 15-Subhashini Gh, Pant K.K. Investigations on the column performance of fluoride adsorption by activated alumina in a fixed-bed. *Chem Eng J* 2004; 98(1-2): 165–73.
- 16- Kanga T, Alonzo V, Charles P, Nanseu N. Preparation and characterization of charcoals that contain dispersed aluminum oxide as adsorbents for removal of fluoride from drinking water. *CARBON* 2010; 48(2): 333–43.
- 17-Chen N, Zhang Z, Feng Ch, Li M, Zhu Dirui, Chen Rongzhi, Sugiura N. An excellent fluoride sorption behavior of ceramic adsorbent. *J Haz Mat* 2010; 183(1-3): 460–65.
- 18- Nourozi R, Samadi M.T, Azizian S, Dadban Shahamat Y, Zarabi M. Survey Impact of Activated Alumina in Fluoride Concentration Present in Water and Appointment Adsorption Isotherm and Kinetics. *Journal Health and Environ* 2009; 2(3): 224-31. [Persian]
- 19 - Kumar E, Bhatnagar A, Kumar U, Sillanpää M. Defluoridation from aqueous solutions by nano-alumina: Characterization and sorption studies. *J Haz Mat* 2011; 186(2–3): 1042-49
- 20- kashitrash Z, Samadi M.T. Investigating fluoride Removal from Water by Using of bone char. *Congress of Iran Environmental Health* 2009; 12: 1286-93. [Persian]
- 21- Maiti A, Kumar B.J, De S. Chemical treated laterite as promising fluoride adsorbent for aqueous system and kinetic modeling. *Desalination* 2011; 265(1-3): 28–36.
- 22- Li Y, Wang S, Cao A, Zhao D. Adsorption of fluoride from water by amorphous alumina supported on carbon nanotubes. *Chem Phys Lett* 2001; 350(5-6): 412–16.



Application of cuttlefish bone as a natural sorbent for the removal of excess fluoride from drinking water

Parastar M(MS.c)¹ Ghanizadeh G (Ph.D)² Ghaneian MT (Ph.D)³

1. Master of Science Department of Environmental Engineering- Water and Wastewater, Islamic Azad University, Bandar Abbas Branch, Bandar Abbas, Iran.
2. Corresponding Author: Associate Professor of Environmental Health Engineering Department, Health Research Center, Baqiyatallah University of Medical Sciences, Tehran, Iran.
3. Associated Professor, Department of Environmental Health Engineering Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.

Abstract

Introduction: Control of fluoride concentration in drinking water due to health effects is very important. The potential of Cuttlefish bone (CB) as a natural sorbent and the effects of pH, contact time, fluoride concentration and adsorbent dosage for the adsorptive removal of excess fluoride from water were examined.

Methods: The study was carried out in laboratory scale via batch reactor. The CB was crushed and pulverized by standard ASTM sieves. The chemical composition and solid structure of CB was determined using X-ray diffraction (XRD) and scanning electronic microscopy (SEM). Measurement of the surface area was carried out via N₂ gas adsorption and BET isotherm. The concentration of fluoride was measured by SPADNS method and spectrophotometry on 570 nm. Isotherm and adsorption capacity was determined by Langmuir, Freundlich and Temkin adsorption models.

Results: The main component of CB is CaCO₃ which has 5.36 m²/g surface area. The results indicated the following: 120 minimum contact time, neutral pH, 15 g/l of sorbent and 7 mg/l of fluoride concentration led to 52.2 % of fluoride removal; increasing adsorbent dosage from 15 to 45 g/l led to increasing fluoride removal up to 75.2%. The adsorption data conform to Langmuir model ($R^2=0.997$) in which maximum adsorption capacity was 1.64mg/g and dimensionless coefficient of R_L and b was 0.76 and 0.063 L/mg, respectively. Based on Freundlich model the coefficient of n and k was found to be 0.9 and 0.08, respectively.

Conclusion: Increasing of contact time, fluoride concentration, adsorbent dosage and pH decreasing led to enhancing fluoride adsorption.

Keywords: Adsorption, Fluoride, Cuttlefish bone, Drinking water.