



## بررسی کارایی آلفا و گاما آلومینا در حذف فلوراید از آب آشامیدنی

نویسندگان: محمد تقی قانعیان<sup>۱</sup> محمد حسن احرامپوش<sup>۲</sup> بتول محب راد<sup>۳</sup> بنت الهدی آخوندزاده<sup>۴</sup>

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

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

۳. نویسنده مسئول: دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده پردیس بین الملل دانشگاه علوم پزشکی و

خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد شماره تلفن: ۰۹۱۵۵۲۱۴۶۹۹ Email: mohebradb1@mums.ac.ir

۴. کارشناس مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد

### چکیده

**مقدمه:** فلوراید یکی از عناصر ضروری برای بدن بوده و وجود مقادیر مطلوب آن از بروز پوسیدگی دندان جلوگیری می کند. با اینحال جذب بیش از حد فلوراید به بدن انسان می تواند پیامدهای مزمن زیادی، نظیر فلوروزیس را به همراه داشته باشد. هدف از این تحقیق بررسی تأثیر آلفا و گاما آلومینا در حذف فلوراید از آب بوده است.

**روش بررسی:** این تحقیق یک مطالعه تجربی است که در مقیاس آزمایشگاهی انجام شده است. مطالعه روی ۱۸۲ نمونه سنتتیک در یک سیستم ناپیوسته انجام شده و اثر فاکتورهای زمان تماس (۵، ۱۰، ۱۵، ۳۰، ۴۵، ۶۰ دقیقه)، pH (۶، ۷، ۸)، غلظت فلوراید (۱، ۲، ۳، ۴، ۵، ۶، ۷، ۸، ۹، ۱۰ میلی گرم در لیتر) و دوزهای جاذب (۱، ۲/۵، ۵، ۷/۵ میلی گرم در لیتر) بررسی شده است. و در نهایت میزان مطابقت داده ها با ایزوترم های جذب لانگمیر و فروند لیچ تعیین گردید.

**یافته ها:** براساس نتایج آلفا آلومینا دارای کارایی بهتری نسبت به گاما آلومینا در حذف فلوراید بوده است. به نحوی که در pH ۶، دوز جاذب ۵ گرم در لیتر، غلظت فلوراید ۵ میلی گرم در لیتر و زمان ۳۰ دقیقه، راندمان حذف فلوراید توسط آلفا آلومینا ۸۵ درصد و در گاما آلومینا ۷۲/۴ درصد بوده است. بررسی ایزوترم های جذب نشان داد که جذب فلوراید توسط آلفا و گاما آلومینا از مدل لانگمیر پیروی می کند.

**نتیجه گیری:** نتایج حاصل از تحقیق نشان داد که با افزایش pH محلول کارایی جذب فلوراید کاهش یافته و pH بهینه در محدوده ۶ تا ۷ می باشد. کارایی حذف فلوراید با افزایش جرم آلومینا افزایش و با افزایش غلظت اولیه فلوراید کاهش می یابد و حداکثر جذب در ۱۵ دقیقه اول واکنش حاصل می گردد.

**واژه های کلیدی:** آلومینا، منابع آب، فلوراید، جذب سطحی

این مقاله حاصل از پایان نامه دانشجوی کارشناسی ارشد دانشکده پردیس بین الملل یزد می باشد.

## طلوع بهداشت

### فصلنامه علمی پژوهشی

دانشکده بهداشت یزد

سال دوازدهم

شماره: چهارم

زمستان ۱۳۹۲

شماره مسلسل: ۴۱

تاریخ وصول: ۹۱/۱۱/۱۲

تاریخ پذیرش: ۹۲/۳/۲۰



## مقدمه

فلوئور عنصری است که بطور طبیعی در مواد معدنی مختلف وجود دارد. و از طرق مختلف نظیر فعالیت های صنعتی، آتشفشانی و فرایندهای اتمسفری به منابع آب وارد می شود (۱). ترکیبات فلوئور در صنعت بطور گسترده جهت تولید آلومینیم، فولاد و فایبرگلاس و غیره بکار می روند و از طریق پساب ها به محیط زیست تخلیه می شوند (۲). فلوراید برای معدنی کردن بافت های سخت در بدن انسان مفید است اما غلظت های زیاد آن می تواند برای انسان سمی باشد. مطابق با رهنمودهای WHO میزان حد مجاز فلوئور در آب آشامیدنی ۱/۵ میلی گرم بر لیتر است، هرچند این میزان به دمای محیط وابسته است. متأسفانه بیش از ۷۰ میلیون نفر در مواجهه با میزان فلوراید بیش از حد هستند. خمیر دندان نیز حاوی مقادیر بالای فلوراید است که معمولاً بین ۱۰۰۰ و ۱۵۰۰ میلی گرم بر کیلوگرم می باشد. ثابت شده است که در یک روز ممکن است حداکثر میزان ۳/۵ میلی گرم فلوراید بلعیده شود (۲،۱).

اگر میزان فلوئور آب آشامیدنی در محدوده مجاز ۱/۵ میلی گرم بر لیتر باشد مانع از پوسیدگی دندان می شود اما اگر میزان آن از ۱/۵ میلی گرم در لیتر تجاوز کند بر متابولیسم عناصر پتاسیم و کلسیم در بدن اثر می گذارد و اگر میزان فلوئور آب از حد ۲/۵ میلی گرم در لیتر تجاوز نماید، منجر به ایجاد فلوئوروزیس و قهوه ای رنگ شدن دندان ها می شود که به مرور زمان پوسیده و پوک شده و می ریزند (۳،۱). برنامه محیط زیست ملل متحد تخمین زده است که ۱۰ ها میلیون نفر در حداقل ۲۵ کشور در حال توسعه و توسعه یافته به فلوئوروزیس مبتلا شده اند. در سال ۱۹۹۳، ۲۵ میلیون نفر در ۱۵ منطقه از ۳۲ منطقه هند به بیماری بومی

فلوئوروزیس مبتلا شدند. در مکزیک، ۵ میلیون نفر (حدود ۶ درصد جمعیت) در اثر مصرف آبهای زیرزمینی، دچار فلوئوروزیس شدند (۱،۴). معمولاً کودکان زیر ۸ سال به بیماری فلوئوروزیس مبتلا می شوند (۲).

غلظت بالای فلوئور علاوه بر فلوئوروزیس، باعث آسیب به غدد درون ریز، تیروئید، کبد، نرم شدن استخوان ها می شود و تحقیقات زیادی در طول سال های اخیر ثابت کرده اند که اثرات طولانی مدت مواجهه با فلوراید و تجمع آن نه فقط باعث خطرات اسکلتی و دندانی برای انسان می گردد بلکه می تواند موجب تغییر ساختار DNA و نابودی قوه اختیار شود (۱،۵).

تحقیق انجام شده توسط محمد نوری سپهری و همکاران (۱۳۸۶) در روستاهای استان سمنان نشان داد مقدار فلوئور از ۰/۱ تا ۴ میلی گرم در لیتر متغیر است (۶). همچنین مطالعه دیگری که در سالهای ۱۳۸۳ تا ۱۳۸۵ در منطقه ماکو از شهرستانهای سیستان و بلوچستان توسط اصغری مقدم و همکاران انجام شد، نشان داد مقدار فلوراید در آب منطقه مورد نظر بیش از حد استاندارد می باشد. مطالعات هیدرولوژیکی و هیدرو شیمیایی آبخوانهای بازالتی و کارستی ماکو نامناسب بودن مقدار فلوئور در منطقه را نشان می دهد. در این منطقه اهالی شهر ها و روستا هایی که از آب چشمه ها و چاههای بازالتی مصرف می نمایند به بیماری فلوئوروزیس دندانی و احتمالاً استخوانی مبتلا هستند (۷).

با توجه به اثرات بهداشتی نامطلوب ناشی از ازدیاد فلوئور در آب لازم است جهت حذف فلوئور اضافی از آب تمهیداتی به کار رود. بطور کلی روش های متعددی برای حذف فلوراید وجود دارد که شامل جذب سطحی، ترسیب شیمیایی، فیلتراسیون، تعویض یونی، تقطیر و اسمز معکوس است. هر یک از این روش ها مزایا و معایبی



باقیمانده ترکیبات آلومینای مورد نظر را تشکیل داده و اندازه ذرات در محدوده ۲۰ تا ۱۰۰ میکرون بوده است. سایر مواد شیمیایی مورد استفاده در تحقیق محصول شرکت مرک آلمان بوده است. در این مطالعه محلول استوک ۱۰۰ میلی گرم در لیتر فلوراید با انحلال NaF در آب دو بار تقطیر تهیه شد و سپس غلظت‌های مورد نظر با استفاده از رقیق کردن محلول استوک تهیه شد. جهت تنظیم pH از محلول اسید نیتریک و سود ۰/۱ نرمال استفاده شد. میزان متوسط اندازه ذرات آلفا آلومینا ۸ تا ۲۰ میکرون و گاما آلومینا ۸۰ تا ۱۲۰ میکرون بوده است. آزمایشات به صورت ناپیوسته و با تغییر فاکتورهای pH (۶، ۷، ۸)، زمان تماس (۱۵، ۱۰، ۵، ۳۰، ۴۵، ۶۰ دقیقه)، غلظت اولیه فلوراید (۱، ۲، ۳، ۴، ۵، ۶، ۱۰ میلی گرم بر لیتر) و میزان آلفا و گاما اکسید آلومینیوم (۱، ۲/۵، ۵، ۷/۵ گرم بر لیتر) و در دمای آزمایشگاه صورت گرفت. به منظور حصول اطمینان از صحت و دقت نتایج حاصل، از کلیه آزمایشات سه بار تکرار گردید و در مجموع تعداد ۱۸۲ نمونه آزمایش گردید. در این تحقیق مقدار فلوراید به روش رنگ سنجی (روش اسپانس) و با استفاده از اسپکتروفتومتر UV/Vis در طول موج ۵۷۰ نانومتر بر اساس روش ارائه شده در کتاب روش‌های استاندارد آزمایش‌های آب و فاضلاب اندازه‌گیری شد (۹). به منظور تعیین ایزوترم جذب فلوراید بر ذرات اکسید آلومینیوم، آزمایشات جذب با غلظت‌های فلوراید (۱، ۲، ۴، ۳، ۵، ۶ میلی گرم بر لیتر) در pH = ۶ و زمان تماس ۲۴ ساعت در حضور ۲/۵ گرم در لیتر از آلفا و گاما آلومینا صورت گرفت. به منظور ایجاد اختلاط از دستگاه شیکر با سرعت ۱۵۰rpm در حین انجام واکنش استفاده شد و از داده‌های نهایی جهت تعیین مطابقت با ایزوترم‌های جذب لانگمیر و فروندلیچ استفاده گردید (۱۱، ۱۰، ۵).

دارند برای مثال رزین‌های تبادل آنیونی کم ظرفیت و گران قیمت هستند. در مقابل این روش‌ها، انجام فرایندهای جذب راحت و معمولاً ارزان می‌باشد و برای تجهیزات غیرمتمرکز تصفیه آب قابل استفاده هستند. در این راستا جاذب‌های متعددی نظیر کربن فعال، پودر آجر، آلومینای فعال و زغال چوب جهت حذف فلوراید مطرح گردیده است. با اینحال آلومینا رایج‌ترین جاذب کاربردی برای حذف فلوراید از آب آشامیدنی می‌باشد و نتایج مطالعات مختلف نشان داده است که وجود یون‌های  $Al^{3+}$  بر روی سطح جاذب، انتخاب‌پذیری و گسترده‌گی حذف فلوراید از محلول‌های آبی را افزایش می‌دهد. بنابراین شکل‌گیری انواع ترکیبات فلوراید یک فاکتور مهم در جذب فلوراید توسط جاذب‌های آلومینا است (۳، ۵، ۸). از این رو، مطالعه حاضر با هدف بررسی کارایی دو نوع جاذب آلفا و گاما آلومینا در حذف فلوراید از آب انجام شده است. در این مطالعه فاکتورهایی مانند زمان تماس، pH محلول، غلظت فلوراید و دز جاذب مورد بررسی قرار گرفتند. همچنین دو نوع مدل ایزوترم جذب شامل لانگمیر و فروندلیچ برای تعیین نوع مدل جذب فلوراید بر روی جاذب‌ها مورد بررسی قرار گرفتند.

## روش بررسی

این تحقیق یک مطالعه تجربی است که در آن از پودر آلفا (آلومینیوم سسکوئیاکسید،  $\alpha - Al_2O_3$ ) و گاما (آلومینای متالوژیکی،  $\gamma - Al_2O_3$ ) آلومینا محصول شرکت آلومینای ایران به عنوان جاذب در حذف فلوراید استفاده گردیده است. بطوری که ۹۸/۵ درصد از ترکیب آلومینای مصرفی از جنس  $Al_2O_3$  بوده و ترکیباتی نظیر  $SiO_2$ ,  $Fe_2O_3$ ,  $Na_2O$ ,  $CaO$

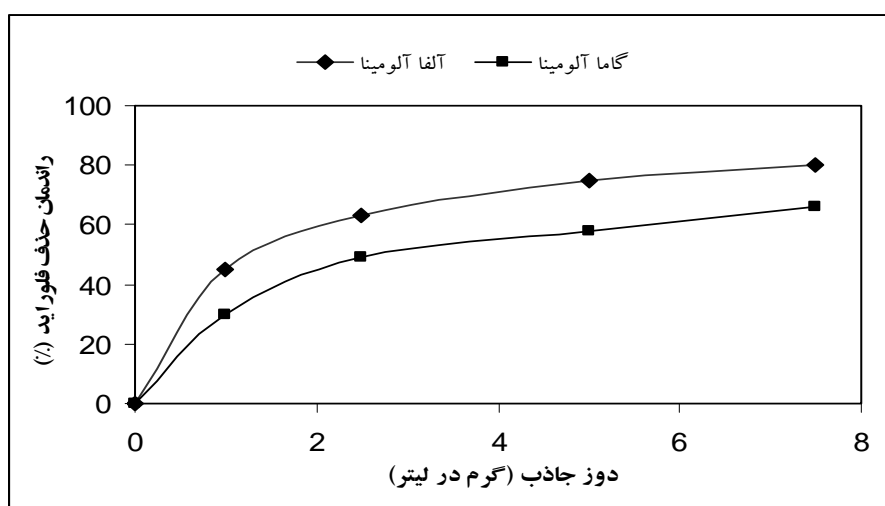


## یافته ها

نتایج آلفا آلومینا دارای راندمان بیشتری در حذف فلوراید بوده، بطوریکه برای غلظت اولیه ۱ و ۶ میلی گرم در لیتر به ترتیب راندمان حذف در آلومینا ۸۳ و ۵۲ درصد و در گاما آلومینا ۷۱ و ۴۵ درصد بوده است.

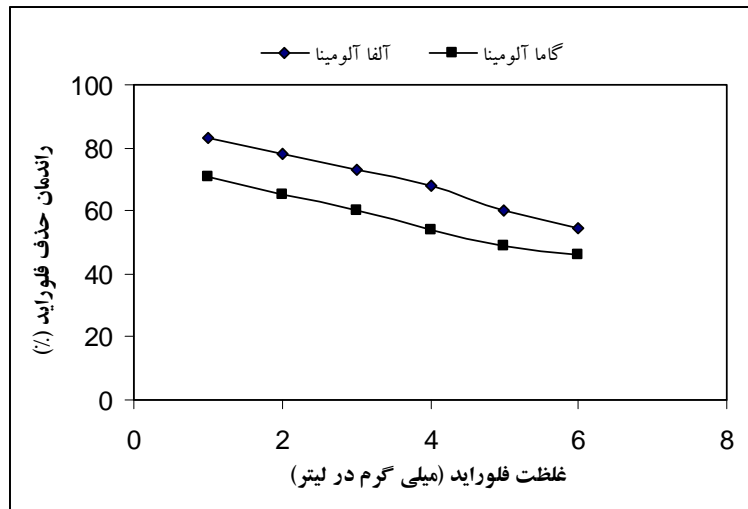
به منظور بررسی اثر pH در حذف فلوراید توسط ذرات آلفا و گاما آلومینا، مقادیر ۱، ۲/۵، ۵ و ۷/۵ گرم در لیتر جاذب، به مدت ۳۰ دقیقه در pH ۶، ۷ و ۸ در تماس با محلول فلوراید با غلظت ۵ میلی گرم در لیتر قرار داده شد که نتایج آن در جدول ۱ ارائه شده است. نتایج حاصل از مطالعه نشان داد که کارایی حذف فلوراید توسط آلفا و گاما اکسید آلومینیم با کاهش pH افزایش می یابد. کارایی حذف فلوراید در غلظت فلوراید ۵ میلی گرم در لیتر و مقدار جاذب ۵ گرم در لیتر آلفا آلومینا در زمان ۳۰ دقیقه به ترتیب در pH ۶، ۷، ۸ حدود ۸۵، ۷۹/۱، ۷۵/۴ درصد بوده است. همچنین کارایی حذف فلوراید در شرایط مشابه توسط گاما آلومینا ۷۲/۴، ۵۷/۷ و ۴۰/۱ درصد بوده است. مقایسه کارایی حذف توسط جاذب های مورد نظر بیانگر کارایی بیشتر آلفا آلومینا در حذف فلوراید می باشد.

در این مطالعه اثر جریمهای (۱، ۲/۵، ۵ و ۷/۵ گرم در لیتر از جاذبهای مورد نظر) در  $pH = 7$  و غلظت ۵ میلی گرم در لیتر فلوراید در زمانهای مختلف بررسی شد. نتایج بیانگر این است که با افزایش جرم جاذب، میزان حذف بطور معمول افزایش می یابد. بطوریکه راندمان حذف فلوراید در مقادیر ۱، ۲/۵، ۵ و ۷/۵ گرم در لیتر آلفا آلومینا در زمان ۳۰ دقیقه به ترتیب ۶۸/۱۶، ۷۸/۳۳، ۸۰/۳۳ درصد بوده و در شرایط مشابه برای گاما آلومینا به ترتیب ۳۰، ۴۵/۷۸، ۵۷/۶۹، ۶۳/۳۵ درصد بوده و دارای روند افزایشی می باشد (شکل ۱). به منظور بررسی اثر غلظت اولیه فلوراید، میزان دوز جاذب ۲/۵ گرم در لیتر در طی مدت ۳۰ دقیقه و در  $pH = 7$  در تماس با محلول فلوراید با غلظت ۱ تا ۶ میلی گرم در لیتر قرار داده شد که نتایج آن در شکل ۲ ارائه شده است. بررسی اثر غلظت اولیه فلوراید بر میزان جذب نشان داد که افزایش غلظت اولیه فلوراید، باعث کاهش درصد جذب شده، در حالیکه ظرفیت جذب افزایش می یابد. داده های حاصل از این مرحله بیانگر ثابت بودن جایگاههای جذب در غلظتهای مختلف فلوراید است. بر اساس



شکل ۱: تاثیر جرم جاذب بر راندمان حذف فلوراید

(غلظت اولیه فلوراید ۵ میلی گرم در لیتر، زمان تماس ۳۰ دقیقه،  $pH = 7$ )



شکل ۲: تاثیر غلظت اولیه فلوراید بر راندمان حذف فلوراید

(زمان تماس ۶۰ دقیقه، pH = ۷، دوز جاذب ۲/۵ گرم در لیتر)

### جدول ۱: اثر pH محلول بر راندمان حذف فلوراید در حضور آلفا و گاما آلومینا

pH	con=۲/۵ g/L		con=۵ g/L		con=۷/۵ g/L	
	$\alpha$	$\gamma$	$\alpha$	$\gamma$	$\alpha$	$\gamma$
۶	۷۲	۶۶/۱	۸۵	۷۲/۴	۹۲	۷۹/۷
۷	۶۰	۴۹	۷۹/۱	۵۷/۷	۸۰/۳	۶۶/۵
۸	۶۰/۵	۳۷/۷	۷۵/۴	۴۰/۱	۷۹/۶	۶۴/۲

داده ها با ایزوترم های فروندلیچ و لانگمیر بررسی شد و ظرفیت جذب، از طریق رابطه زیر محاسبه گردید (۳).

$$q_e = (C_0 - C_e) \frac{V}{m}$$

$q_e$ : میزان آلاینده جذب شده به ازاء واحد جرم جاذب (mg)

(g)

$C_0$ : غلظت اولیه ماده آلاینده در محلول (mg/L)

$C_e$ : غلظت نهایی آلاینده بعد از برقراری تعادل (mg/L)

$V$ : حجم مایع در داخل راکتور (L)

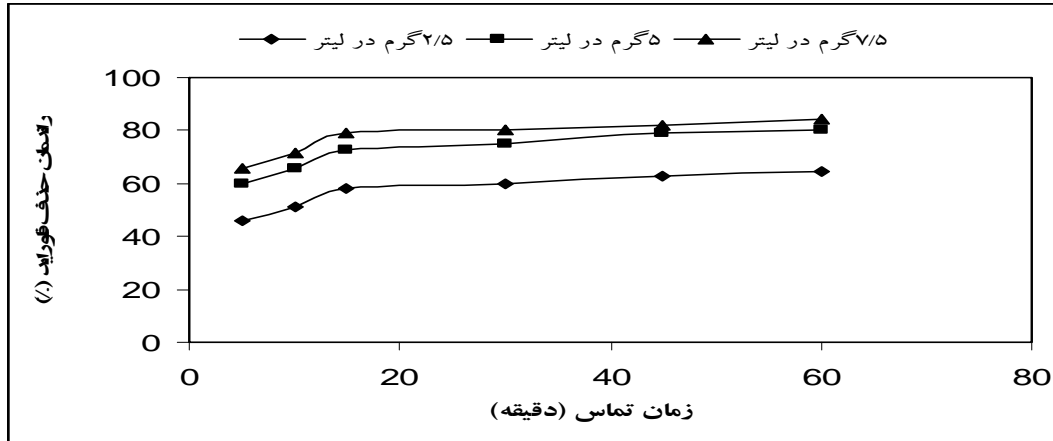
$m$ : جرم جاذب (g)

در این مرحله اثر زمان های تماس مختلف در pH = ۷ و میزان آلفا و گاما آلومینا (۲/۵، ۵، ۷/۵ گرم در لیتر) و غلظت ۵ میلی گرم در لیتر فلوراید بررسی گردید. نتایج حاصل نشان داد که با افزایش زمان تماس، میزان حذف افزایش می یابد به طوری که در طی ۱۵ دقیقه ابتدایی واکنش جذب، بیشترین حذف فلوراید اتفاق می افتد. کاهش شیب نمودار با افزایش زمان تماس نشان دهنده پیشرفت واکنش به سمت ایجاد تعادل و اشباع شدن جاذب می باشد (شکل ۳، ۴).

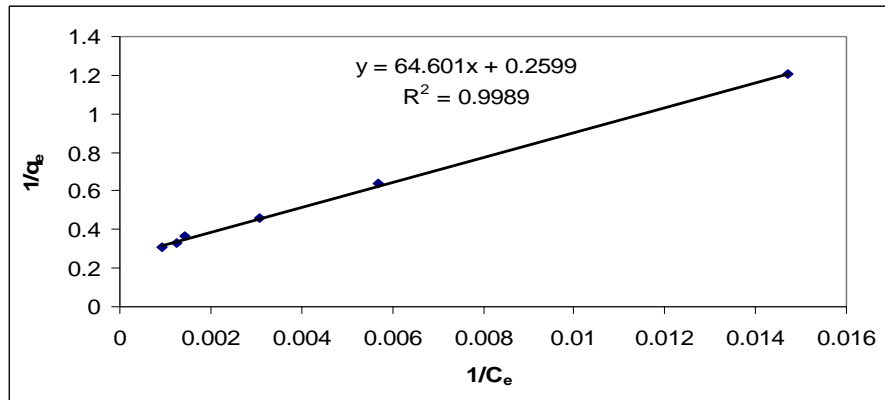
به منظور تعیین ظرفیت جذب و ایزوترم جذب، میزان مطابقت



بررسی داده های حاصل از این تحقیق بیانگر این است که نتایج آزمایشهای جذب فلوتور بر ذرات آلفا و گاما آلومینا با  $R^2 > 0.99$  با ایزوترم جذب لانگمیر مطابقت دارد (شکل ۵، ۶) بوده است. علاوه مقادیر  $R^2$  و  $1/n$  مرتبط با ایزوترم فروندلیچ در ذرات آلفا به ترتیب ۰/۹۸ و ۱/۷۷۵ و در گاما آلومینا ۰/۹۷ و ۲/۰۱۷ بوده است.

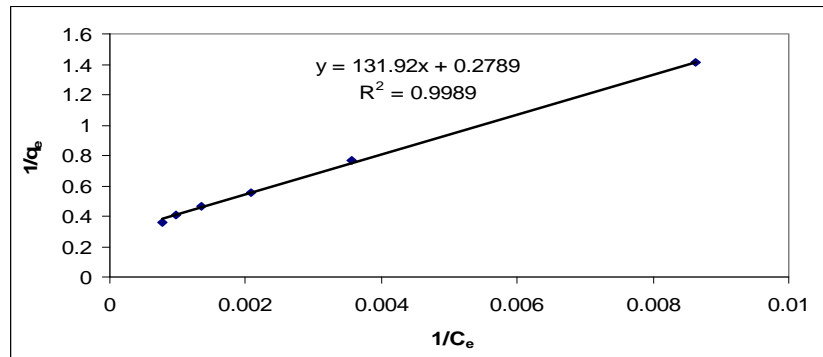


شکل ۳: تاثیر زمان بر راندمان حذف فلوراید توسط آلفا آلومینا



شکل ۵: ایزوترم جذب لانگمیر در حذف فلوراید توسط آلفا آلومینا

(غلظتهای ۱، ۲، ۳، ۴، ۵، ۶ میلیگرم در لیتر فلوراید و ۲/۵ گرم در لیتر جاذب در مدت زمان ۲۴ ساعت)



شکل ۶: ایزوترم جذب لانگمیر در حذف فلوراید توسط گاما آلومینا

(غلظت های ۱، ۲، ۳، ۴، ۵، ۶ میلی گرم در لیتر فلوراید و ۲/۵ گرم در لیتر جاذب در مدت زمان ۲۴ ساعت)



## بحث و نتیجه گیری

بر اساس داده های حاصل از تحقیق حاضر، ذرات آلفا آلومینا دارای کارایی بیشتری نسبت به گاما آلومینا در جذب فلوراید بوده است. اختلاف کارایی جذب فلوراید به عوامل مختلفی نظیر اندازه ذرات جاذب وابسته است. در این مطالعه ذرات  $(\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3)$  به دلیل دارا بودن اندازه ۸ تا ۲۰ میکرون نسبت به ذرات گاما با اندازه ۸۰ تا ۱۱۰ میکرون دارای سطح تماس بیشتر بوده و قادر به جذب سطحی بیشتری می باشند. به علاوه ساختار کریستالی و مراحل دمایی بکار رفته در تولید این ذرات نیز بر کارایی جذب فلوراید مؤثر است. نتایج تحقیقات انجام شده توسط Chary و همکاران و Maglia و همکاران نشان داد که هر کدام از انواع اکسیدهای آلومینیم به دلیل ساختمان کریستالی خود توانایی متفاوتی در اتصال با یونهای فلوراید دارند. به علاوه ظرفیت جذب به درجه حرارت و سایر عوامل محیطی بستگی دارد (۱۲، ۱۳). این امر توجیه کننده اختلاف قابلیت جذب فلوراید توسط آلفا و گاما آلومینا می باشد.

نتایج نشان داد جذب فلوراید توسط آلفا و گاما اکسید آلومینیم تحت تأثیر تغییرات pH قرار دارد که می تواند به دلیل فعل و انفعالات سطح آلفا اکسید آلومینیم و فلوراید موجود در محیط واکنش باشد به طوری که در pH ۶ و ۷ فلوراید به شکل آزاد وجود ندارد اما در pH های بالا تر یونهای فلوراید آزاد در محیط واکنش وجود دارد. همچنین ممکن است در pH های بالا به جای تشکیل شکلهای مختلف فلورید آلومینیم، هیدروکسید آلومینیم تشکیل گردد. این نتیجه با نتایج بدست آمده از تحقیقات Ghorai و همکاران و Huijie و همکاران مطابقت دارد (۳، ۱۴). در تحقیقات انجام شده توسط

صمدی و همکاران و Young در حذف فلوراید توسط آلومینای فعال مشخص گردید که بیشترین حذف در pH ۵ تا ۷ حاصل می گردد (۱۵، ۱۶). همچنین تحقیقات شمس حداکثر جذب فلوراید توسط گرانولهای اکسید آهن و اکسید آلومینیم را در pH ۶ تا ۷ نشان داده است (۱۷). همچنین در تحقیق صورت گرفته توسط سیاح زاده و همکاران جهت حذف فلوراید با استفاده از زغال پوست گردو، pH مناسب بین ۶ تا ۸ بیان شده است (۱۸).

همچنین نتایج نشان می دهد که غلظت اولیه فلوراید بر روی میزان حذف تاثیر دارد، به طوری که در غلظتهای بالای فلوراید، کارایی حذف کاهش می یابد، اما این کاهش خطی نیست. مطالعات مشابه نشان داده اند که افزایش غلظت فلوراید باعث کاهش راندمان جذب می گردد (۱۹).

نتایج تحقیقات انجام شده توسط Shimelis و همکاران نشان داد که با افزایش غلظت فلوراید از ۵ تا ۲۰ میلی گرم در لیتر در ۵ دقیقه ابتدای فرایند، راندمان حذف به میزان ۲۰ درصد کاهش می یابد (۲۰). اما با افزایش زمان بیشتر از ۱۲۰ دقیقه بدلیل زمان تماس طولانی تر یونهای فلوراید با جاذب، فرصت جذب افزایش می یافته و تغییرات جذب کاهش می یابد.

همچنین تحقیقات Valdivieso و همکاران نشان داد که کاهش pH می تواند باعث افزایش جذب فلوراید توسط اکسید آلومینیم گردد، که با نتایج بدست آمده از تحقیق حاضر مطابقت دارد (۱۵). نتایج بررسی زمان جذب بیانگر این است که با افزایش زمان جذب ابتدا میزان حذف افزایش می یابد به طوری که در ۱۵ دقیقه ابتدایی بیشترین حذف فلوراید صورت می گیرد. به علاوه کاهش شیب نمودار با افزایش زمان تماس



نشان دهنده پیشرفت واکنش به سمت ایجاد تعادل و اشباع شدن جاذب می باشد.

با توجه به شکل ۳ و ۴ مشاهده می گردد در ابتدا با پیشرفت زمان، درصد حذف فلوراید افزایش می یابد اما پس از گذشت حدود ۶۰ دقیقه درصد حذف فلوراید به یک مقدار تقریباً ثابتی می رسد که مبین رسیدن به تعادل در جاذب است. در زمان رسیدن به تعادل، منحنی درصد حذف فلوراید با محور زمان تقریباً موازی می شود. این نتیجه با نتایج حاصل از حذف فلوراید توسط ذرات هیدروکسید آهن که توسط شمس و همکاران صورت گرفت مطابقت دارد (۱۷). بر اساس این نتایج، حدود ۹۵ درصد جذب در همان ۱۵ دقیقه ابتدایی و ۴ تا ۵ درصد باقی مانده در ساعات باقی مانده انجام می شود. نتایج مطالعه Huijie و همکاران نشان داد که در ساعات اولیه جذب فلوراید توسط خاکستر استخوان اصلاح شده با آلومینیم، جذب بسیار سریع بوده و با گذشت زمان سرعت جذب کاهش می یابد (۳). مطالعات مشابه نشان داده است که تغییر در pH محلول باعث تشکیل هیدروکسید آلومینیوم و آزاد سازی مجدد فلوراید شده و همچنین با افزایش دوز جاذب، سطح تماس جاذب با آلاینده افزایش می یابد و در نتیجه راندمان جذب افزایش می یابد (۱۸).

تحلیل داده های جذب فلوراید بر ذرات آلفا و گاما آلومینا با ایزوترم جذب نشان داد که جذب فلوراید بر آلفا و گاما آلومینا با ایزوترم جذب لانگمیر ( $R^2=0.99$ ) مطابقت دارد. این نتیجه با تحقیقات انجام شده توسط Young و همکاران، Beneberu و همکاران و صمدی و همکاران مطابقت دارد (۱۶، ۲۰، ۸). طبق مدل لانگمیر جذب فلوراید توسط آلفا اکسید آلومینیوم از نوع تک لا یه ای می باشد.

مقایسه دو نوع جاذب مورد نظر نشان داد که جاذب آلفا آلومینا نسبت به گاما آلومینا از ظرفیت جذب بیشتری برخوردار بوده است. با این حال نتایج داده های مرتبط با هر دو جاذب نشان داد که با کاهش pH، افزایش زمان تماس و دوز جاذب راندمان جذب افزایش می یابد. با توجه به کارایی مناسب این دو نوع جاذب و به دلیل تولید آنها در کشور و مناسب بودن قیمت، می توانند در حذف فلوراید مورد استفاده قرار گیرند.

### تقدیر و تشکر

این مقاله حاصل پروژه دانشجویی کارشناسی ارشد بوده و نویسندگان مقاله لازم می دانند از کسانی که در اجرای این پژوهش مساعدت نموده اند، تشکر و قدردانی نمایند.

### References

- 1-Jorfı S, Rezaei Kalantary R, Mohseni Bandpi A, Jaafarzadeh N, Esrafilı A, Alaei L. Fluoride Removal from Water By Adsorption using Bagasse, Modified Bagasse and Chitosan. Iranian Journal of Health and Environment 2011; 4( 1): 35-48. [Persian]
- 2- Antwi E, Cudjoe Bensah E, Cudjoe Ahiekpor J. Use of Solar Water Distiller for Treatment of Fluoride-Contaminated Water: The case of Bongo district of Ghana. Desalination 2011; 278:333-36.





- 3-Huijie Z, Hongqiang W, Guozhen W and Kui Z. Removal of Fluorine from Water by the Aluminum-Modified Bone Char. International Conference on Biology, Environment and Chemistry :2010. IACSIT Press, Singapore. Available from: [www.ipcbee.com/vol1/105-Z00210](http://www.ipcbee.com/vol1/105-Z00210).
- 4- Zhao Y, Li X, Liu L. Fluoride Removal by Fe(III)-loaded Ligand exchange Cotton Cellulose Adsorbent from Drinking Water. Carbohydrate Polymers 2008 ;72:144–150.
- 5- Samadi MT, Nourozi R, Azizian S, Dadban Shahamat Y, Zarabi M. Survey Impact of Activated Alumina in Fluoride Concentration Present in Water and Appointment Adsorption Isotherm and Kinetics. Iranian Journal of Health and Environment 2009; 2( 3): 224-31. [Persian]
- 6- Nouri Sepehr M, Arab F, Shahravan M. Study of Drinking Water Fluoride Levels in Drinking Water in Villages in Semnan Province literature in 1386," Tenth National Congress on Environmental Health, Hamadan University of Medical Sciences, 8-10 November 2007; 329-40.[Persian]
- 7- Asghari M A, Fyjany A. Hydrological and Hydrochemical Studies of Basalt Aquifers and Karst Area Maku in the Geological Formation of the Earth , Journal of Earth Sciences 2008;67(17):67-70. [Persian]
- 8- Young K, Hwei-Mei C. The Adsorption of Fluoride ion from Aqueous Solution by Activated Alumina. Water, Air, and Soil Pollution 2002; 133: 349–360.
- 9- APHA. Standard Methods for the Examination of Waters and Wastewaters. 21 ed. Washington DC. American Public Health Association (APHA). 2005.
- 10- Ben Nasr A, Walha K, Charcosset C, Ben Amar R. Removal of Fluoride ions Using Cuttlefish Bones. Journal of Fluorine Chemistry 2011; 132(1):57–62.
- 11- Ayoob S, Gupta A.K. Performance Evaluation of Alumina Cement Granules in Removing Fluoride from Natural and Synthetic Waters. Chemical Engineering Journal 2009; 150(2-3): 485–91. Available from: [www.elsevier.com/locate/cej](http://www.elsevier.com/locate/cej).
- 12- Maglia F, Gennari S, Buscaglia V. Energetic of Aluminum Vacancies and Incorporation of Foreign Trivalent Ions in  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: An Atomistic Simulation Study. Journal of the American Ceramic Society 2007; 91(1): 283-90.
- 13- V.R.charry K, Ramana Rao P, Venkat Rao V. Catalytic Functionalities of Nickel Supported on Different Polymorphs of Alumina. Catalysis communications 2008; 9(5): 886-93.
- 14- Ghorai S, Pant K. Investigations on the Column Performance of Fluoride Adsorption by Activated Alumina in a Fixed-Bed. Chemical Engineering Journal 2004; 98(1-2): 165-73. Available from: [www.elsevier.com/locate/cej](http://www.elsevier.com/locate/cej).



- 15- Valdivieso L, Bahena R, Song S, Urbina H. Temperature Effect on the Zeta Potential and Fluoride Adsorption at the  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Aqueous Solution, *Journal of Colloid Interface Sciences*. 2006; 298(1):1-5.
- 16- Samady.M, Norozy.R, Investigating Fluoride Removal from Water by Using of Bon Char, Conference on Environmental healt, Iran Shahid beheshti university of medical sciences 2009. [Persian]
- 17- Shams M , Nabizadeh Nodehi R , Mahvia AM . Efficiency of Granular Ferric Hydroxide (GFH) for Removal of Fluoride from Water. Research report, *Fluoride* January-March 2010;43(1):35–40. Available from: <http://www.sid.ir>.
- 18- Sayahzadeh .A. Use Walnut Shell Charcoal as an Adsorbent in Removing Fluoride from Drinking Water 4<sup>th</sup> National civil Engineering Conference, 2008. Available from: [http://www.civilica.com/Paper-NCCE04-NCCE04\\_225.html](http://www.civilica.com/Paper-NCCE04-NCCE04_225.html). [Persian]
- 19- Esmaili L. Removal Fluoride from Drinking Water in some Villages Pakdasht by Sequestration with Alum. 6<sup>th</sup> National Conference on Environmental Health, Mazandaran University of Medical Sciences:2003. [Persian]
- 20- Beneberu S, Feleke Z, Bhagwan Singh C. Removal of Excess Fluoride from Water by Aluminum Hydroxide. *Bulletin of the Chemical Society of Ethiopia* 2006; 20(1): 17-34. Available from: <http://www.ingentaconnect.com/content/cse/bcse>



## Study of the efficiency of $\alpha$ and $\gamma$ -Alumina on removing fluoride from Drinking water

Ghancian MT (Ph.D)<sup>1</sup>Ehrampoush MH (Ph.D)<sup>2</sup> Mohebrad B (MS.c)<sup>3</sup> Akhondzadeh BH(BS)<sup>4</sup>

1-Associate professor, Department of Environmental Health Engineering, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.

2-Professor, Department of Environmental Health Engineering, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.

3-Corresponding Author: M.Sc Student of Environmental Health Engineering, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.

4-BS in Environmental Health Engineering, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran.

### Abstract

**Introduction:** Fluoride is one of the essential elements for human health and presence of its acceptable value prevents from tooth decay but excessive absorption of fluorine into the body cause many chronic problems such as flourosis. The aim of this study was to evaluate the effect of  $\alpha$ -Alumina and  $\gamma$  -Alumina on removal of fluoride from water.

**Methods:** This experimental study was performed in laboratory scale and was performed on 182 synthetic samples in a batch system. In this study the effect of parameters such as contact time (10,5,60,45,30,15min), pH(6,7,8), fluoride concentration (1,2,3,4,5,6 mg/l) and absorbent dosages (1,2/5,5,7/5,10 mg/l) was evaluated. Finally the accuracy rate of information with the Langmuir and Freundlich isotherms was determined.

**Results:** The results showed that  $\alpha$ -Alumina had better efficiency to remove fluoride from water . fluoride removal efficiency by  $\alpha$ -Alumina and  $\gamma$ -Alumina were 85% and 72/4%, respectively at pH of 6, 5 gr/l absorbent dosage, 5gr/l fluoride concentration and 180 minutes time. Investigating absorption isotherm showed that fluoride absorption by  $\alpha$ -Alumina and  $\gamma$ -Alumina follows Langmuir model.

**Conclusion:** On the basis of the results, fluoride removal efficiency would decrease with increasing pH and the initial concentration of fluoride and decreasing alumina mass. Optimum pH range is 6 to7 and Maximum absorption occurs in 15 minutes.

**Keywords:** Alumina, Water Supply, Fluorides, Adsorption