

Optimization of Fluoride Adsorption from Aqueous Solution by Marble Powder Using Taguchi Model

Bahman Ramavandi¹,
Mehdi Ahmadi²,
Javad Faradmal³,
Sima maleki⁴,
Ghorban Asgari⁴

¹ Assistant Professor, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Bushehr University of Medical Sciences, Bushehr, Iran

² Assistant Professor, Environmental Technologies Research Center, Department of Environmental Health Engineering, Ahvaz Jundishapur University of Medical Sciences, Ahvaz, Iran

³ Assistant Professor, Department of Biostatistics and Epidemiology, Modeling of Noncommunicable diseases Research center, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

⁴ Assistant Professor, Social Determinants of Health Research Center, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

(Received January 12, 2014 ; Accepted July 21, 2014)

Abstract

Background and purpose: Taguchi method is a powerful design in experimental studies. This method, with the minimum number of test factors affecting the process, will save cost and time. This study was done using the Taguchi method to optimize the adsorption of fluoride from aqueous solutions by an adsorbent prepared from marble powder.

Material and methods: Marble powder was supplied from Hamadan workshops stonemason and then grinded and sieved to the desired particle size using standard ASTM (mesh 40). Four parameters affecting the adsorption process (pH, contact time, temperature, and adsorbent dose) were considered in four levels. Residual fluoride concentration was measured by a spectrophotometer. Minitab V.16 (L-16 Orthogonal Array) was used to analyze the data.

Results: Taguchi model indicated that optimization conditions for fluoride adsorption by marble powder were adsorbent dose 0.7 mg/L, pH=2, temperature 25°C, and contact time 5 min. ANOVA results showed that the most and least of influential parameters on adsorption process was associated with adsorbent dosage and solution pH, respectively.

Conclusion: Taguchi statistical method as an efficient, effective, and without the need for a large number of experiments indicated that the marble powder as a new adsorbent, no cost, and without secondary pollutant has a high efficiency for fluoride removal from aqueous environments.

Keywords: Experimental design, Taguchi, marble powder, fluoride, adsorption

بهینه سازی بهینه سازی جذب فلوراید از محلول آبی توسط پودر سنگ مرمر با استفاده از مدل تاگوچی

بهمن رماندی^۱

مهدی احمدی^۲

جواد فردمال^۳

سیما ملکی^۴

قربان عسگری^۴

چکیده

سابقه و هدف: روش تاگوچی یکی از قدرتمندترین ابزارهای طراحی آزمایشات است. در این روش، با حداقل تعداد آزمایشات عوامل موثر بر فرایند، در هزینه و زمان صرفه جویی خواهد شد. بنابراین، این مطالعه با هدف استفاده از روش تاگوچی جهت بهینه کردن فرایند جذب فلوراید با جذب تهیه شده از سنگ مرمر از محیط‌های آبی انجام شد.

مواد و روش‌ها: در این مطالعه تجربی، پودر ماربل از زانداک کارگاه‌های سنگبری همدان تهیه و سپس آسیاب و توسط الکل‌های استاندارد ASTM در محدوده مش ۴۰ دانه‌بندی گردید. با انتخاب ۴ پارامتر موثر در فرایند جذب (pH، زمان تماس، دما و دوز جذب) در ۴ سطح، توسط نرم‌افزار Minitab 16 (ماتریکس ترکیبی L₁₆) انتخاب و آزمایشات با این ماتریکس انجام شد. غلظت باقیمانده فلوراید توسط دستگاه اسپکتروفتومتر اندازه‌گیری گردید.

یافته‌ها: نتایج داده‌ها در مدل تاگوچی نشان داد، دوز جذب ۰/۷ گرم در لیتر پودر ماربل، pH برابر ۲، دمای ۲۵ °C و زمان تماس ۵ دقیقه شرایط بهینه در فرایند جذب فلوراید با جذب پودر ماربل می‌باشد. نتایج حاصل از آنالیز واریانس نشان داد که از بین متغیرهای موثر در فرایند جذب، بیش‌ترین و کم‌ترین میزان تاثیر به ترتیب مربوط به دوز جذب و pH محلول بوده است.

استنتاج: روش آماری تاگوچی به عنوان یک روش کارآمد، موثر و بدون نیاز به تعداد زیاد آزمایش‌ها نشان داد که پودر ماربل به عنوان یک جذب جدید، بدون هزینه، بدون ایجاد آلاینده ثانویه، کارایی بالایی در حذف فلوراید از محیط‌های آبی دارد.

واژه‌های کلیدی: طراحی آزمایش، تاگوچی، پودر ماربل، فلوراید، جذب

مقدمه

غذایی می‌شود (۱،۲). آلودگی منابع آبی به فلوراید در اثر عوامل طبیعی و فعالیت‌های انسانی یک مشکل عمده در سراسر جهان است (۱). آخرین اطلاعات نشان می‌دهد

فلوراید یک عنصر طبیعی در میان مواد معدنی، رسوبات ژئوشیمیایی و سیستم‌های طبیعی آب است که از طریق آب آشامیدنی یا تغذیه از گیاهان وارد زنجیره

مؤلف مسئول: قربان عسگری - همدان: روبروی پارک مردم، دانشگاه علوم پزشکی همدان، دانشکده بهداشت، گروه مهندسی بهداشت محیط E-mail: asgari@umsha.ac.ir

۱. استادیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، دانشکده بهداشت، گروه مهندسی بهداشت محیط
 ۲. استادیار، مرکز تحقیقات فن آوری های زیست محیطی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور اهواز، اهواز، ایران
 ۳. استادیار، گروه آمار زیستی و اپیدمیولوژی، مرکز تحقیقات علوم مدل‌سازی بیماری‌های غیرواگیر، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران
 ۴. استادیار، مرکز تحقیقات عوامل اجتماعی موثر بر سلامت، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران
- تاریخ دریافت: ۱۳۹۲/۱۰/۲۲ تاریخ ارجاع جهت اصلاحات: ۱۳۹۲/۲/۳۱ تاریخ تصویب: ۱۳۹۳/۴/۳۰

و... وابسته است. جاذب‌های مختلفی نظیر کیتوزان(۷)، آلومینای فعال(۸)، پودر آجر(۹)، بوکسیت غنی تیتانیوم(۱۰)، باگاس(۷) و زئولیت غنی شده با آلومینیوم(۱۱) در مطالعات مختلف به منظور حذف فلوراید از محلول‌های آبی مورد مطالعه قرار گرفته است. بیشتر جاذب‌های استفاده شده با توجه به ترکیب شیمیایی باعث ایجاد آلاینده‌های خطرناک در آب می‌شوند. بنابراین، محققین همواره به دنبال جاذب‌های هستند که ترکیب شیمیایی و آلاینده‌های خطرناک به آب رها ننمایند. آلومینای فعال اگرچه یک جاذب خوب فلوراید می‌باشد ولی همواره نگرانی در خصوص افزایش آلومینیوم به آب و خطرات ناشی از افزایش غلظت این فلز وجود دارد. نتایج حاصل از بررسی‌های مختلف و آمار تولید سنگ مرمر در کشور نشان می‌دهد سالانه حجم زیادی از ضایعات سنگ مرمر در کشور ایجاد می‌شود. جاذب مورد مطالعه در این تحقیق پودر سنگ مرمر بوده که به عنوان یک ماده زائد، در طول شکل دادن، برش و پردازش سنگ مرمر به دست می‌آید، به طوری که حدود ۲۵ درصد از سنگ مرمر پردازش شده تبدیل به گرد و غبار و پودر می‌شود. از جمله مزایای این جاذب می‌توان به در دسترس بودن و ارزان بودن اشاره کرد. بررسی ساختار شیمیایی این سنگ نشان داده است که ۶۰ درصد ترکیب آن کربنات کلسیم و ۱۰ درصد آن کربنات منیزیم بوده و بقیه ترکیب آن کوارتز، فلدسپار و مقادیر کمی از ترکیبات بی‌خطر (خاک رس و ...) می‌باشد(۱۲،۱۳). با توجه به ساختار شیمیایی این سنگ و در دسترس و ارزان بودن آن، می‌توان گفت استفاده از این مواد در مقایسه با سایر موادی که در جذب فلوراید به کار برده شده مقرون به صرفه و اقتصادی خواهد بود.

روش تاگوچی به شکل گسترده‌ای برای بهینه‌سازی متغیرهای فرایندی از طریق مدل‌سازی حداقل آزمایشات مورد استفاده قرار می‌گیرد. این روش به شناسایی اثر عوامل مجزا کمک کرده و از رابطه بین متغیرها و شرایط بهره‌برداری استفاده می‌نماید. در روش تاگوچی

که فلوروزیس حداقل در ۲۵ کشور جهان اندمیک شده است(۳). آمار در دسترس نشان می‌دهد که بیش از ۳۰ میلیون نفر در چین به طور جدی تحت تاثیر فلوروزیس قرار گرفته و ۱۰۰ میلیون دیگر در معرض آن هستند. علاوه بر فلوروزیس، عوارض جانبی دیگر شامل از دست دادن تحرک، تغییرات در ساختار DNA، کاهش ضریب هوشی کودکان و تداخل در عملکرد کلیه می‌باشد(۴). بر اساس استانداردهای سازمان بهداشت جهانی غلظت مجاز فلوراید در آب آشامیدنی ۱/۵ میلی‌گرم بر لیتر است. مشکلات آلودگی آب به فلوراید در جوامع روستایی و شهرهای کوچک در کشورهای جهان سوم حادث است(۵).

تاکنون روش‌های زیادی برای حذف فلوراید از آب آشامیدنی مورد بررسی قرار گرفته است که هر کدام دارای معایب و مزایایی می‌باشد. از جمله این روش‌ها می‌توان به تبادل یون، الکتروکواگولاسیون، اسمز معکوس، نانوفیلتراسیون، جذب بیولوژیکی، الکترودیالیز و ترسیب اشاره نمود. در میان روش‌های سنتی حذف فلوراید، تبادل یون یکی از روش‌های قابل اعتماد محسوب می‌شود اما راندمان این روش با وجود یون‌هایی مانند سولفات، کربنات، فسفات و... کاهش می‌یابد. علاوه بر این به دلیل گران بودن رزین‌ها این روش اقتصادی نمی‌باشد. در روش نانوفیلتراسیون با وجود کارایی بالا و موثر، تعداد زیادی از یون‌ها که برای بدن مفید هستند توسط این روش حذف می‌گردند. در روش ترسیب و کواگولاسیون به علت استفاده رایج آلوم برای حذف فلوراید، مقدار کمی از فلوراید توسط ته‌نشینی حذف و بخش اعظم آن در محلول به شکل فلوراید آلومینیم باقی می‌ماند(۶). اما یکی از بهترین و متداول‌ترین روش‌ها، روش جذب است. جذب به عنوان یک روش اقتصادی مهم و متداول برای حذف مقادیر مازاد فلوراید از محیط‌های آبی به ویژه در کشورهای در حال توسعه مورد توجه قرار گرفته است. موفقیت این روش به کاربرد جاذب‌های کارآمد، اقتصادی، عملیاتی

با استفاده از آنالیز آماری داده‌های تجربی (آنالیز واریانس)، سطوح بهینه معنادار مشخص می‌شود (۱۴). هدف این مطالعه پیش‌بینی شرایط بهینه عملکرد پودر سنگ مرمر به عنوان جاذب در حذف فلوراید از محلول‌های آبی با استفاده از روش تاگوجی است.

مواد و روش‌ها

در این مطالعه که یک مطالعه تجربی در مقیاس آزمایشگاهی است، پودر ماربل (سنگ مرمر) به عنوان جاذب جهت حذف فلوراید مورد استفاده قرار گرفت. مواد شیمیایی از شرکت‌های Aldrich و Merck تهیه و مورد استفاده قرار گرفت.

پودر ماربل (سنگ مرمر) از مواد زائد کارگاه‌های سنگبری همدان تهیه و چندین بار با آب مقطر شسته شد. پس از آسیاب کردن توسط الک‌های استاندارد ASTM در محدوده مش ۴۰ دانه‌بندی گردید. سپس با آب مقطر چندین بار آبکشی شد و به مدت ۱۴ ساعت در آن با دمای ۱۰۵ درجه سانتی‌گراد قرار داده شد تا رطوبت جاذب حذف شود. در نهایت جاذب آماده استفاده در مطالعه جذب شد. اسکن میکروسکوپی الکترون (SEM) نمونه جاذب به کمک دستگاه JEOL JSM 6701F ژاپن مشخص گردید (دانشگاه بوعلی).

به منظور انجام آزمایشات، ابتدا فلوراید با غلظت ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر با حل کردن ۰/۲۲۱ گرم از سدیم فلوراید در آب مقطر به عنوان محلول مادر تهیه شد. سپس محلول فلوراید در غلظت‌های مختلف تهیه گردید. اندازه‌گیری فلوراید بر اساس روش ذکر شده در کتاب Standard Methods (۱۵) و با دستگاه DR5000 صورت گرفت. پارامترهای مورد بررسی در این پژوهش بر اساس مطالعات صورت گرفته و کارهای مشابه شامل مقدار اولیه فلوراید (۳، ۵، ۱۰، ۱۵ میلی‌گرم در لیتر)، زمان واکنش (۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰ دقیقه)، pH (۲، ۳، ۷، ۹) و دوز جاذب (۱/۰، ۳/۰، ۵/۰، ۷/۰ گرم در لیتر) می‌باشد.

پس از اتمام هر آزمایش مقدار فلوراید جذب شده، q_e (میلی‌گرم بر گرم) با استفاده از معادله شماره (۱) تعیین گردید (۱۶):

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{m} \quad (1)$$

در این معادله، C_0 و C_e غلظت اولیه و تعادلی فلوراید در فاز مایع (mg/L) می‌باشد. V ، حجم محلول (L) و M ، مقدار جاذب مورد استفاده (g) می‌باشد. درصد حذف فلوراید نیز با استفاده از معادله شماره (۲) محاسبه گردید (۱۶):

$$R = \frac{C_0 - C_t}{C_0} * 100 \quad (2)$$

در این رابطه R راندمان حذف (درصد) و C_t غلظت باقی مانده فلوراید در زمان t می‌باشد.

در مطالعه حاضر به منظور بهینه‌سازی فرایند جذب فلوراید توسط جاذب پودر ماربل ۴ پارامتر تاثیرگذار در فرایند جذب فلوراید شامل pH، دما، دوز جاذب و زمان واکنش به عنوان آرایه انتخاب شدند. هر کدام از این آرایه‌ها دارای ۴ سطح می‌باشد که سطوح انتخاب هر یک از آن‌ها برای ارائه به روش تاگوجی در جدول شماره ۱ ارائه شده است. در روش تاگوجی برای تحلیل آماری و دقیق‌تر نتایج، از یک تابع پاسخ تبدیل یافته که به صورت نسبت علامت هر اثر (S) به اثرات ناشی از خطا (N) تعریف می‌گردد، استفاده می‌شود. مزیت استفاده از این پاسخ جدید در تحلیل آماری، نسبت به شکل اولیه پاسخ، مقایسه بزرگی اثرات ناشی از عوامل اصلی با اثرات ناشی از عوامل خطا و اغتشاش در اندازه‌گیری است که منجر به برداشت دقیق‌تری از تاثیر واقعی عوامل بر سیستم خواهد شد (۱۷). در این مطالعه پاسخ در نظر گرفته شده درصد حذف فلوراید بود که نسبت S/N به صورت معادله شماره ۳ محاسبه گردید (۱۸).

$$\frac{S}{N} = -10 \log \frac{(1/y_1^2 + 1/y_2^2 + \dots + 1/y_n^2)}{n} \quad (3)$$

در این مطالعه بعد از تعیین زمان تماس بهینه، دوز جاذب و pH جذب، مشخصه‌های مرتبط با ایزوترم جذب آلاینده مورد نظر بر روی جاذب تعیین گردید. داده‌های تجربی تعادل جذب با مدل‌های ایزوترم جذب فروندلیخ و لانگمیر مورد بررسی قرار گرفت. برای بررسی تطابق داده‌ها با این مدل‌های جذب از حالت‌های خطی معادلات این مدل‌ها استفاده شد.

یافته‌ها

پس از طراحی آزمایش‌ها به روش تاگوچی برای ۴ پارامتر، ۱۶ مرحله آزمایش توسط مدل "L₁₆" مطابق ترکیب ارائه شده در جدول شماره ۲ به انجام رسید که نتایج آن در جدول شماره ۳ آورده شده است.

جدول شماره ۳: نتایج اولیه از میزان حذف فلوراید و S/N هر تست

شماره آزمایش	نتایج ۱ (درصد)	نتایج ۲ (درصد)	S/N
۱	۹۰	۹۱	۳۸/۸۱۱۱
۲	۸۰	۸۲	۳۹/۰۰۸۶
۳	۸۸	۸۶	۳۹/۰۵۸۰
۴	۹۶	۹۷	۳۹/۹۰۱۵
۵	۶۳	۶۵	۳۶/۳۳۱۷
۶	۷۶	۷۴	۳۷/۷۶۸۲
۷	۸۷	۸۵	۳۸/۵۲۹۱
۸	۹۱	۹۰	۳۸/۸۱۱۱
۹	۷۳	۷۵	۳۷/۲۳۳۲
۱۰	۷۵	۷۴	۳۷/۱۲۱۰
۱۱	۸۸	۸۷	۳۹/۰۵۱۰
۱۲	۹۳	۹۲	۳۹/۵۹۱۸
۱۳	۶۵	۶۴	۳۶/۴۵۹۷
۱۴	۷۵	۷۳	۳۷/۵۹۳۵
۱۵	۸۸	۸۰	۳۸/۱۳۴۵
۱۶	۹۲	۹۲	۳۹/۱۱۶۷

پاسخ هر آزمایش با استفاده از معادله ۸ به نرخ S/N تبدیل شده است. میزان و نحوه تاثیر عوامل مختلف بر پاسخ تبدیل یافته سیستم (به صورت نسبت S/N) برای هر یک از عوامل تحلیل شده و نسبت S/N به دست آمده در جدول شماره ۳ آورده شده است. افزایش نرخ S/N نشان‌دهنده بهتر شدن شرایط است. نتایج حاصل از آنالیز نسبت و بهینه‌سازی هر پارامتر در نمودارهای شماره ۱، ۲، ۳ و ۴ به صورت مجزا ارائه شده است.

جدول شماره ۱: آرایه‌ها و عوامل موثر در بهینه‌سازی و سطوح مختلف آن‌ها

عامل	آرایه	سطح			
		۱	۲	۳	۴
۱ زمان واکنش (min)	۵	۱۰	۲۰	۳۰	
۲ دوز جاذب (g)	۰/۱	۰/۳	۰/۵	۰/۷	
۳ دما (°C)	۲۵	۳۰	۴۰	۵۰	
۴ pH محلول	۲	۳	۷	۹	

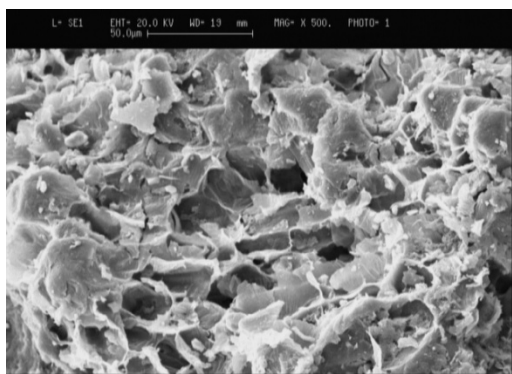
در این معادله y_n مقدار پاسخ اندازه‌گیری شده برای هر آزمایش در هر آزمون و n تعداد تکرار آزمایش‌ها (در اینجا برابر ۲) می‌باشد. لازم به ذکر است اگر n برابر با ۱ در نظر گرفته شود دیگر نمی‌توان از روش سیگنال به نویز که روش بسیار دقیق و مطمئن‌تری است استفاده نمود. به همین دلیل در این مطالعه تکرار آزمایش‌ها برابر با ۲ در نظر گرفته شد.

پس از انجام ۱۶ آزمایش پیشنهادی توسط مدل تاگوچی، در نهایت میانگین نتایج ۲ بار تکرار آزمایش‌ها توسط نرم‌افزار Minitab 16 به منظور طراحی آزمایش‌ها به روش تاگوچی بررسی و شرایط بهینه حذف مشخص گردید. حاصل طراحی آزمایش‌ها یک جدول با ۱۶ آزمایش بوده که جزئیات آزمایش‌ها در جدول شماره ۲ آورده شده است.

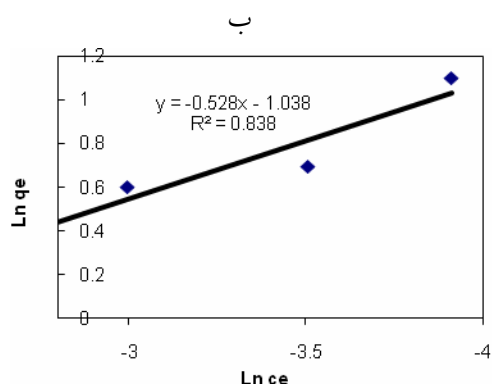
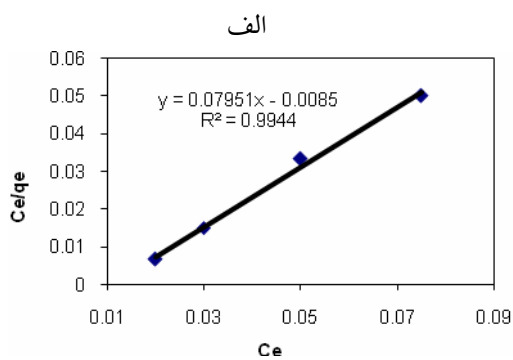
جدول شماره ۲: مراحل انجام واکنش براساس طراحی (آرایه L-16) آزمایشات با مدل آماری تاگوچی

آزمون/فاکتور	زمان واکنش (min)	دما (°C)	دوز جاذب (g/L)	pH
۱	۵	۲۵	۰/۱	۲
۲	۵	۳۰	۰/۳	۳
۳	۵	۴۰	۰/۵	۷
۴	۵	۵۰	۰/۷	۹
۵	۱۰	۴۰	۰/۳	۹
۶	۱۰	۵۰	۰/۱	۷
۷	۱۰	۲۵	۰/۷	۳
۸	۱۰	۳۰	۰/۵	۲
۹	۲۰	۵۰	۰/۵	۳
۱۰	۲۰	۴۰	۰/۷	۲
۱۱	۲۰	۳۰	۰/۱	۹
۱۲	۲۰	۲۵	۰/۳	۷
۱۳	۳۰	۳۰	۰/۷	۷
۱۴	۳۰	۲۵	۰/۵	۹
۱۵	۳۰	۵۰	۰/۳	۲
۱۶	۳۰	۴۰	۰/۱	۳

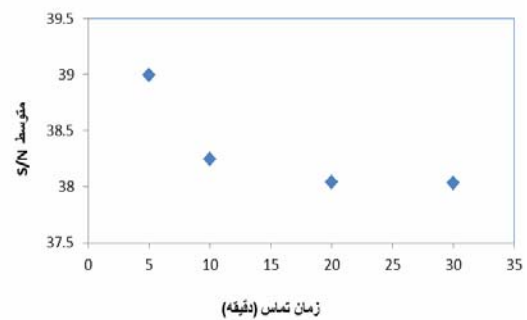
نتایج اسکن میکروسکوپی (SEM) از سطح جاذب پودر ماربل با بزرگ نمایی ۱۰۰ در تصویر شماره ۱ قابل مشاهده است. نتایج حاصل از تعیین ایزوترم جذب فلوراید در نمودار شماره ۵ نشان داده شده است. نتایج نشان می‌دهد فرایند جذب فلوراید بر روی پودر ماربل از ایزوترم لانگمیر تبعیت می‌کند. نتایج این بخش نشان داد حداکثر ظرفیت جذب پودر ماربل ۱۲/۵۸ میلی‌گرم فلوراید به ازای هر گرم پودر ماربل می‌باشد.



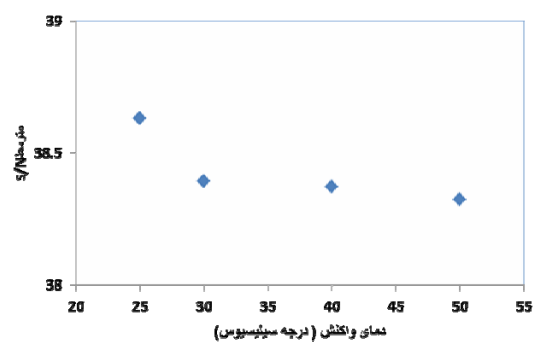
تصویر شماره ۱: تصویر SEM از جاذب پودر سنگ مرمر



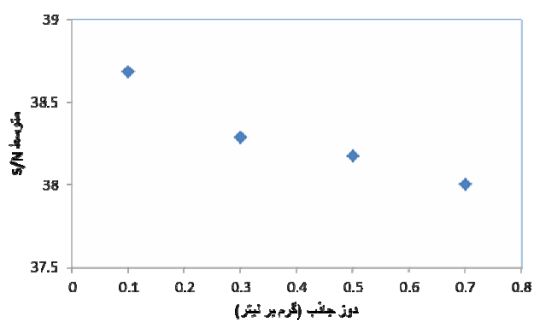
نمودار شماره ۵: ایزوترم های جذب فلوراید بر روی پودر ماربل (الف: ایزوترم لانگمیر، ب: ایزوترم فرنلینخ)



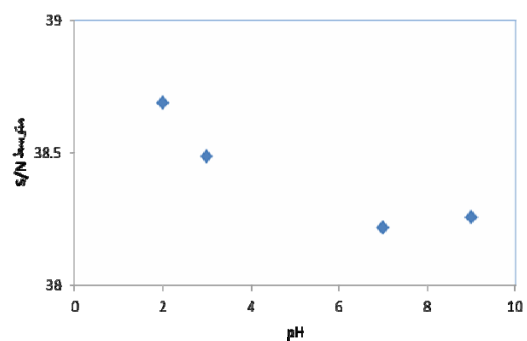
نمودار شماره ۱: نتایج حاصل از بهینه سازی تاثیر زمان تماس در حذف فلوراید



نمودار شماره ۲: نتایج حاصل از بهینه سازی تاثیر دما در حذف فلوراید



نمودار شماره ۳: نتایج حاصل از بهینه سازی تاثیر دوز جاذب در حذف فلوراید



نمودار شماره ۴: نتایج حاصل از بهینه سازی تاثیر pH در جذب فلوراید

بحث

همان طوری که شکل شماره ۱ نشان می‌دهد، یکی از پارامترهای در نظر گرفته شده در حذف فلوراید توسط پودر ماربل، زمان تماس می‌باشد. زمان‌های تماس انتخاب شده ۵ تا ۳۰ دقیقه می‌باشد. نتایج ارائه شده در تصویر شماره ۱ نشان می‌دهد که آرایه در سطح ۱ بالاترین نسبت S/N را دارد و طبق این نتایج زمان واکنش بهینه ۵ دقیقه تعیین شده است. همچنین نتایج نسبت S/N این پارامتر طبق شکل حدود ۳۹ می‌باشد. نتایج حاصل از آنالیز واریانس متوسط S/N (که در شکل ۱ ارائه شده) نشان داد که این پارامتر انتخابی ۱۲/۴۲ درصد ($RF=12.42$) در حذف فلوراید توسط پودر ماربل تاثیر دارد و از لحاظ تاثیرگذار بودن در مکان دوم پارامترهای انتخابی قرار دارد.

تاثیر دمای واکنش در ۴ دامنه (۲۵، ۳۰، ۴۰ و ۵۰ درجه سانتی گراد) برای یافتن بهترین دمای ورودی در تصویر شماره ۲ آورده شده است. نتایج حاصل از این آنالیز نشان می‌دهد که بالاترین نسبت S/N مربوط به سطح اول دما یعنی ۲۵ درجه سانتی گراد می‌باشد که نتایج S/N این پارامتر در این سطح بیشترین میزان S/N را به خود اختصاص داد. این پارامتر انتخابی ۱/۳۸ ($RF=1/38$) در حذف فلوراید توسط پودر ماربل تاثیر دارد و از لحاظ تاثیرگذار بودن در مکان سوم پارامترهای انتخابی قرار دارد.

از دیگر پارامترهای تاثیرگذار در فرایند جذب با پودر ماربل برای حذف فلوراید میزان دوز جذب است که در این مطالعه در ۴ دامنه ۰/۱ تا ۰/۷ گرم در لیتر مورد بررسی قرار گرفت. همان‌طور که در تصویر شماره ۳ آورده شده بیشترین میزان نسبت S/N در سطح چهارم دوز جذب حاصل گردید که برابر با ۰/۷ گرم در لیتر می‌باشد. نتایج حاصل از آنالیز واریانس متوسط S/N (که در تصویر شماره ۳ ارائه شده) نشان داد که این پارامتر انتخابی ۵۸/۲۷ درصد ($RF=58.27$) در حذف فلوراید توسط پودر ماربل تاثیر دارد و از لحاظ تاثیرگذار بودن

در مکان اول پارامترهای انتخابی قرار دارد. نتایج مطالعه بهینه‌سازی پارامترها با یافته‌های دیگران می‌تواند متفاوت باشد، زیرا در هر مطالعه‌ای متغیرهای متفاوتی مورد مطالعه قرار گرفته است. به عنوان مثال، در مطالعه ای که توسط هرناندز و همکارانش در حذف فلوراید توسط پوست فندق اصلاح شده با کلسیم انجام گردید، موثرترین پارامتر با روش تاگوچی غلظت عامل فعال کننده جاذب تشخیص داده شد (۱۹).

برای تعیین میزان تاثیر pH در فرایند جذب مورد مطالعه، pH در ۴ دامنه (۲، ۳، ۷ و ۹) بر راندمان حذف فلوراید مورد بررسی قرار گرفت. طبق آنالیز این مدل آماری pH بهینه در حذف فلوراید برابر ۲ یا سطح اول آرایه‌ها تعیین شده است (تصویر شماره ۴). بیشترین میزان نسبت S/N در همین pH می‌باشد. نتایج حاصل از آنالیز واریانس نشان می‌دهد که تاثیر این پارامتر ۰/۹۲ درصد ($RF=92$) است و بیانگر این موضوع است که pH در اولویت آخر قرار دارد.

بر اسکن میکروسکوپی الکترون جاذب پودر ماربل نشان می‌دهد بر سطح جاذب ساختارهای برگ مانند و تعداد زیادی دانه‌های ریز است که امکان جذب آلانینده به بخش‌های مختلف جاذب فراهم می‌نماید. مشاهده دقیق‌تر ساختار جاذب در تصویر SEM نشان دهنده بافت سطحی و تخلخل و یا چاله‌هایی با دهانه‌های ریز بر سطح جاذب است که این عامل می‌تواند سطح تماس زیادی برای حذف آلانینده ایجاد کند (۲۰).

نتایج این مطالعه نشان داد که جذب فلوراید از مدل لانگمویر تبعیت می‌کند (تصویر شماره ۵ الف). بر اساس نتایج حاصله، پتانسیل جذب فلوراید به پودر ماربل ۱۲/۵۸ میلی گرم بر گرم می‌باشد. جاذب مورد مطالعه در مقایسه با جاذب‌هایی نظیر بیومس اصلاح شده عدسک آبی، خاکستر استخوان، هیدرواکسید آپاتیت و کیتوزان دارای ظرفیت جذب بیشتری می‌باشد (۷، ۶، ۵، ۲). این نتایج نشان می‌دهد پودر ماربل با توجه به ساختار کلسیمی و نیزیمی جاذب خوبی برای حذف فلوراید بوده و وجود

نتایج حاصل از آنالیز آماری تاگوچی نشان داد به کمک این روش طراحی می‌توان شرایط بهینه برای حذف فلوراید را تعیین نمود. شرایط بهینه حذف فلوراید در میزان دوز جذب 0.7 g/L ، pH برابر ۲، دما ۲۵ درجه سانتی‌گراد و زمان تماس ۵ دقیقه حاصل گردید. جذب در زمان تماس پائین و دوز پائین نشان دهنده قابلیت این جذب در حذف آلاینده مورد مطالعه است. از مدل آماری تاگوچی می‌توان به عنوان یک روش کارآمد، موثر و بدون نیاز به حجم بالای آزمایشات و مقرون به صرفه نام برد. از آنجائی که استفاده از یک جذب منوط به تعیین تاثیر کلیه فاکتورها نظیر درجه حرارت، اثر متقابل سایر آنیون‌ها و کاتیون‌ها است لازم است مطالعات تکمیلی جهت توسعه استفاده از این جذب توسط سایر محققین انجام شود.

سپاسگزاری

این پژوهش با استفاده از منابع مالی معاونت پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی همدان به انجام رسیده است، نویسندگان مقاله از همکاری آن معاونت کمال تشکر را دارند.

این ترکیبات باعث افزایش ظرفیت جذب جاذب در مقایسه با سایر جاذب‌ها می‌شود. اطلاعاتی در خصوص حذف فلوراید توسط پودر ماربل گزارش نشده است، اما در خصوص مواد حاوی کلسیم کربنات مطالعات مشابهی گزارش شده است (۵، ۶). در مطالعات ارائه شده وجود کلسیم در ترکیب جاذب را عامل موثری در جذب فلوراید گزارش نموده‌اند.

مقایسه نتایج این مطالعه با یافته‌های سایر محققین نشان می‌دهد که ظرفیت جذب پودر ماربل مطالعه شده در این تحقیق با ظرفیت جذب استفاده شده توسط Jorfi و همکارانش (۷) متفاوت است، اما الگوی جذب و شرایط حاکم بر جذب با نتایج ززولی و همکارانش (۲) مطابقت دارد. مطالعات دیگر گزارش کرده‌اند که جذب فلوراید بر روی خاکستر استخوان از ایزوترم فرندلیج تبعیت می‌کند که با نتایج این مطالعات متفاوت می‌باشد. این تفاوت در نوع مدل انطباقی می‌تواند به خصوصیات سطحی جاذب‌های مطالعه شده مربوط گردد (۶، ۲۱).

براساس یافته‌های این مطالعه می‌توان چنین نتیجه‌گیری کرد که پودر ماربل به عنوان یک ماده ارزان و در دسترس پتانسیل مناسبی برای جذب فلوراید دارد.

References

1. Asgari G, Roshani B, Ghanizadeh G. The investigation of kinetic and isotherm of fluoride adsorption onto functionalize pumice stone. *J Hazard Mater* 2012; 30(217-218): 123-132.
2. Zazouli MA, Belarak D, Karimnezhad F, Khosravi F. Removal of Fluoride from Aqueous solution by using of adsorption onto modified Lemna Minor: adsorption isotherm and kinetics study. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2014; 23(109): 195-204.
3. Sujana MG, Mishra A, Acharya BC. Hydrous ferric oxide doped alginate beads for fluoride removal: Adsorption kinetics and equilibrium studies. *Appl Surf Sci* 2013; 270: 767-776.
4. Salifu A, Petrusovski B, Ghebremichael K, Modestus L, Buamah R, Aubry C. Aluminum (hydr) oxide coated pumice for fluoride removal from drinking water: Synthesis, equilibrium, kinetics and mechanism. *Chem Eng J* 2013; 228: 63-74.
5. Jimenez-Reyes M, Solache-Rios M. Sorption behavior of fluoride ions from aqueous solution by hydroxyapatite. *J Hazard Mater* 2010; 180(1-3): 297-302.
6. Sundaram CS, Viswanathan N, Meenakshi S. Defluoridation chemistry of synthetic

- hydroxyapatite at nano scale: Equilibrium and kinetic studies. *J Hazard Mater* 2008; 155(1-2): 206-215.
7. Jorfi S, Kalantary RR, Mohseni Bandpi A, Jaafarzadeh Haghoghifard N, Esrafil A, Alaei L. Fluoride removal from water by adsorption using bagasse, modified bagasse and chitosan. *Iran J Health Environ* 2011; 4(1): 35-48.
 8. Li YH, Wang S, Cao A, Zhao D, Zhang X, Xu C, et al. Adsorption of fluoride from water by amorphous alumina supported on carbon nanotubes. *Chem Phys Letter* 2001; 350(5-6): 412-416.
 9. Yadav AK, Kaushik CP, Haritash AK, Kansal A, Rani N. Defluoridation of groundwater using brick powder as an adsorbent. *J Hazard Mater* 2006; 128(2-3): 289-293.
 10. Das N, Pattanaik P, Das R. Defluoridation of drinking water using activated titanium rich bauxite. *J Colloid Interface Sci* 2005; 292(1): 1-10.
 11. Onyango MS, Kojima Y, Aoyi O, Bernardo EC, Matsuda H. Adsorption equilibrium modeling and solution chemistry dependence of fluoride removal from water by trivalent-cation-exchanged zeolite F-9. *J Colloid Interface Sci* 2004; 279(2): 341-350.
 12. Ghazy SE, Gad AHM. Separation of Zn (II) by sorption onto powdered marble wastes. *Indian J Chem Techn* 2008; 15(5): 433-442.
 13. Chamargore JJ, Bharad JV, Madje BR, Ubale MB. The removal of dye from aqueous solution uadsorption on low cost adsorbents. *E Journal of Chemistry* 2010; 7(3): 1003-1007.
 14. Ghazy SE, Gad AHM. Lead separation by sorption onto powdered marble waste. *Arab J Chemis.* 2014; 7(3): 227-286.
 15. American Public Health Association. *Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater.* 15th ed. Washington, DC; 1980.
 16. Zazouli MA, Yazdani J, Balarak D, Ebrahimi M, Mahdavi Y. Investigation the Removal of acid blue 113 from aqueous solution by canola. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2013; 22(Suppl 2): 71-78.
 17. Yang WH, Tarng YS. Design optimization of cutting parameters for turning operations based on the Taguchi method. *J Mater Process Tech* 1998; 84(1-3): 122-129.
 18. Abdel-Ghani NT, Hegazy AK, El-Chaghaby GA. Typha domingensis leaf powder for decontamination of aluminium, iron, zinc and lead: biosorption kinetics and equilibrium modeling. *Int J Environ Sci Tech* 2009; 6(2): 243-248.
 19. Hernández-Montoya V, Ramírez-Montoya LA, Bonilla-Petriciolet A, Montes-Morán MA. Optimizing the removal of fluoride from water using new carbons obtained by modification of nut shell with a calcium solution from egg shell. *Biochem Eng J* 2012; 62: 1-7.
 20. Mopoung S, Nogklai W. Chemical and surface properties of longan seed activated charcoal. *Inter J Phys Sci* 2008; 3(10): 234-239.
 21. Diyanati RA, Yazdani Cherati J, Belarak D. Effect of sorbitol on phenol removal rate by lemna minor. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2013; 22(Suppl 2): 58-64.