DOI: 10.22100/jkh.v4i15.2495

مجله دانش و تندرستی در علوم پایه پزشکی، دوره ۱۵، شماره ۴، زمستان ۱۳۹۹

دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شاهرود

مقاله پژوهشی

سنتز و به‌کارگیری نانوکامپوزیت منیزیوم فریت– کیتوسان برای حذف فلوراید از محلول آبی با استفاده از بهینه‌سازی سطح– پاسخ

مسعود قنبریان[۱]، طیبه طباطبایی[*۱]، مرجان قنبریان[*۲]

۱– دانشگاه آزاد اسلامی واحد بوشهر– گروه مهندسی محیط زیست– بوشهر– ایران.

۲– دانشگاه علوم پزشکی شاهرود– دانشکده بهداشت– شاهرود– ایران.

تاریخ دریافت: ۱۳۹۹/۱۱/۰۶، **تاریخ پذیرش:** ۱۳۹۹/۱۱/۲۶

چکیده

مقدمه: *وجود فلوراید مازاد در آب شرب باعث ایجاد انواع مختلفی از بیماری‌ها می‌گردد بنابراین حذف فلوراید از آب آشامیدنی برای حفظ سلامتی انسان ضروری است. از این‌رو این تحقیق به بررسی حذف فلوراید از آب به‌وسیله نانوکامپوزیت منیزیوم فریت - کیتوسان می‌پردازد.*

مواد و روش‌ها: *در این تحقیق نمک‌های نیترات منیزیوم و آهن برای سنتز منیزیوم فریت به روش خود احتراقی به‌کار گرفته شدند. سپس نانوکامپوزیت فریت – کیتوسان با استفاده از اپی کلروهیدرین سنتز گردید. شناسایی ساختار جاذب به‌وسیله تکنیک‌های میکروسکوپی الکترونی روبشی و عبوری، مغناطیس‌سنجی ارتعاشی، پراش اشعه ایکس و تجزیه و تحلیل عنصری انجام گرفت. شاخص‌های مؤثر در فرآیند جذب شامل pH، زمان تماس، مقدار جاذب و غلظت فلوراید با روش‌شناسی سطح پاسخ و طراحی باکس- بنکن انجام پذیرفت. مطالعه ایزوترم در محدوده غلظتی ۱۰ تا ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر انجام شد.*

نتایج: *مقدار بهینه شاخص‌های مؤثر یعنی pH، زمان تماس، مقدار جاذب و غلظت فلوراید به‌ترتیب ۲/۸، ۴/۵ دقیقه، ۱۹ میلی‌گرم و ۲۸/۸۷ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد. در شرایط بهینه، حداکثر درصد حذف فلوراید ۹۸/۱ درصد بوده است. نتایج مطالعه ایزوترم بیانگر آن است که فرآیند جذب از مدل لنگمویر با ظرفیت ۱۸۱/۱ میلی‌گرم فلوراید بر گرم جاذب پیروی می‌کند.*

نتیجه‌گیری: *نتایج این تحقیق نشان می‌دهد که نانوهیبرید سنتز شده از پتانسیل خوبی به‌عنوان جاذب مغناطیسی ارزان به‌منظور انجام اصلاحات زیست محیطی و حذف آلاینده‌ها برخوردار است به‌طوری‌که می‌تواند برای حذف مؤثر فلوراید از محلول آبی به‌کار گرفته شود.*

واژه‌های کلیدی: فلوراید، جذب سطحی، روش سطح - پاسخ، نانوکامپوزیت.

***نویسنده مسئول:**

بوشهر، گروه مهندسی محیط زیست، دانشگاه آزاد اسلامی واحد بوشهر، **تلفن:** ۰۰۹۸۹۱۷۷۷۳۳۶۲۳۷+، **نمابر:** ۰۰۹۸۷۱۳۵۴۳۵۶۴۳+، **Email:** tabatabaie@iaubushehr.ac.ir

شاهرود، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شاهرود، **تلفن:** ۰۰۹۸۹۱۷۱۳۳۱۳۷۷+، **نمابر:** ۰۰۹۸۲۳۳۲۳۹۵۰۰۸+، **Email:** ghanbarian@shmu.ac.ir

ارجاع: قنبریان مسعود، طباطبایی طیبه، قنبریان مرجان. سنتز و به‌کارگیری نانوکامپوزیت منیزیوم فریت– کیتوسان برای حذف فلوراید از محلول آبی با استفاده از بهینه‌سازی سطح– پاسخ. مجله دانش و تندرستی در علوم پایه پزشکی ۱۳۹۹؛۱۵(۴):۳۶–۲۸.

مقدمه

فلوراید در بین عناصر جدول تناوبی دارای بیشترین الکترونگاتیوی است بنابراین دارای واکنش‌پذیری بالایی بوده و به‌صورت آنیون فلوراید و یا فلوراید آلی در طبیعت وجود دارد (۱). این عنصر به‌طور گسترده در آب‌های طبیعی و رسوبات معدنی یافت می‌شود. براساس قوانین سازمان بهداشت جهانی حد مجاز فلوراید در آب شرب ۱/۵ میلی‌گرم در لیتر است (۲). مقدار مازاد فلوراید می‌تواند باعث بروز بیماری‌هایی همچون راشیتیسم، اختلالات عصبی، سرطان و بیماری‌های دندان گردد. این ترکیب به‌عنوان یک ترکیب سمی تجزیه‌ناپذیر در نظر گرفته می‌شود که می‌تواند به راحتی از طریق آب وارد زنجیره غذایی شود (۳) بنابراین حذف فلوراید از آب برای حفظ سلامتی انسان ضروری می‌باشد.

تاکنون روش‌های متعددی برای حذف فلوراید توسعه‌یافته‌اند که مهمترین آنها عبارتند از الکترودیالیز، جذب، تعویض یون و فیلتراسیون. از بین روش‌های متداول در حذف فلوراید، جذب سطحی بسیار مورد توجه قرارگرفته است (۴). این روش دارای مزایایی همانند آسانی عملکرد، طراحی ساده و دوستدار محیط زیست بودن است و صرفه اقتصادی نیز دارد. بر این اساس جاذب‌های متعددی مثل هیدروکسی آپاتیت، چارچوب‌های آلی فلزی و اکسیدهای فلزی برای حذف فلوراید به‌کارگرفته شده‌اند (۵ و ۶) علی‌رغم کارایی مناسب این ترکیبات در حذف فلوراید، این ترکیبات سینتیک جذب پایین دارند. اندازه کوچک فلوراید و الکترونگاتیوی بالای آن این عنصر را در دسته بازهای سخت قرار می‌دهد بنابراین تمایل بالایی برای واکنش با کاتیون‌های فلزی مثل آهن، کلسیم، منیزیم و ... از خود نشان می‌دهد (۷ و ۸). بنابراین از این دسته از ترکیبات می‌توان برای حذف فلوراید استفاده نمود. امروزه سنتز نانوکامپوزیت پلیمر– اکسیدهای معدنی بسیار مورد توجه می‌باشند زیرا خواص مکانیکی و فیزیکی پلیمر در حضور ترکیب معدنی بهبود می‌یابد. از بین ترکیبات پلیمری؛ کیتوسان به‌عنوان یک ترکیب پلیمری با منشأ طبیعی کاربردهای فراوانی یافته است. این ترکیب دارای گروه‌های هیدروکسی و آمین بوده و می‌تواند برای حذف ترکیبات آنیونی در pHهای اسیدی به‌کار گرفته شود. استفاده مستقیم از کیتوسان به‌دلیل انحلال در محیط اسیدی با محدودیت همراه است (۹). ساخت کامپوزیت کیتوسان و اکسید فلزی یکی از راه‌های رفع این نقص می‌باشد. بر این اساس در این تحقیق نانوکامپوزیت پلیمری کیتوسان – منیزیوم فریت سنتز گردید و برای حذف فلوراید از محلول آبی به‌کار گرفته شد. شاخص‌های مؤثر در حذف فلوراید با روش سطح– پاسخ و طراحی باکس– بنکن بهینه‌سازی شدند و مطالعه ایزوترم نیز انجام شد.

مواد و روش‌ها

در این تحقیق کیتوسان، اپی کلروهیدرین، نیترات آهن، نیترات منیزیوم، سدیم هیدروکسید و اتیلن گلیکول از شرکت مرک تهیه شد. تنظیم pH با محلول ۰/۱ مولار آمونیاک و هیدروکلریک اسید انجام شد. تصاویر میکروسکوپی الکترونی به کمک دستگاه HITACHI S 4160 ثبت گردید. طیف‌های پراش اشعه ایکس (X-Ray Diffraction (XRD)) با دستگاه پراش سنج فیلیپ مدل X´ Pert MPD، خط تابشی Kα مس و در طول موج ۰/۱۵۴ نانومتر ثبت گردید. ثبت طیف پراش انرژی اشعه ایکس (Energy Dispersive X-Ray Analysis (EDX)) با دستگاه آکسفورد ED-2000 انجام گرفت. از یک دستگاه pH متر دیجیتال ساخت شرکت متروهم– سوئیس مدل ۶۹۲ جهت اندازه‌گیری pH استفاده گردید. از دستگاه جذب مرئی – فرابنفش لامبدا – ۲۵ برای بررسی طیف کمپلکس فلوراید استفاده شد. دستگاه Zeiss-EM10C و Lake Shore Model 7400برای ثبت میکروسکوپی الکترونی عبوری (Scanning Electron Microscopy (SEM))، روبشی (Transmission electron microscopy (TEM)) و خاصیت مغناطیسی (vibrating-sample magnetometer (VSM)) استفاده شد.

برای سنتز نانوذرات منیزیوم فریت ۸ گرم نیترات آهن و ۲.۶ گرم نیترات منیزیوم به ظرف حاوی ۲۰ میلی‌لیتر اتیلن گلایکول اضافه شد و در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد به‌مدت ۶۰ دقیقه هم زده شد. سپس در دمای ۱۵۰ درجه سانتی‌گراد تحت فرآیند خوداحتراقی قرار گرفت و سپس در دمای ۴۰۰ درجه به‌مدت یک ساعت کلسینه شد. در ادامه ۰/۵ گرم نانوذرات منیزیوم فریت به ۵۰ میلی‌لیتر محلول یک درصد کیتوسان اضافه شد و به‌مدت ۳۰ دقیقه هم زده شد. pH محلول با افزودن سود به ۱۲ رسانده شد. بعد از افزودن ۳ میلی‌لیتر اپی کلروهیدرین مخلوط واکنش به‌مدت ۲۴ ساعت در دمای ۶۰ درجه تحت رفلاکس حرارت داده شد. سپس نانوکامپوزیت به‌وسیله سانتریفیوژ با چرخش ۴۰۰۰ دور بر دقیقه جمع‌آوری و در دمای ۷۰ درجه خشک گردید.

به‌منظور بهینه سازی شاخص‌های مؤثر بر جذب فلوراید، روش سطح پاسخ با ۲۹ طراحی در یک مجموعه اجرا گردید. حجم محلول‌ها ۲۵ میلی‌لیتر و غلظت فلوراید ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر بود و درصد حذف به‌عنوان پاسخ در نظر گرفته شد. بعد از افزودن ۱۵ میلی‌گرم جاذب و هم زدن به مدت ۱۱ دقیقه، جاذب به کمک آهنربا جمع‌آوری و غلظت فلوراید اندازه‌گیری شد. درصد حذف نیز از معادله زیر محاسبه گردید(۱۰):

$$\%R = (C0 - Ce) \times 100/C0 \quad (۱)$$

در این معادله C0 بیانگر غلظت اولیه و Ce (میلی‌گرم برلیتر) بیانگر غلظت یون‌های باقیمانده در محلول است.

در این تحقیق شاخص‌های مؤثر بر جذب با استفاده از روش پاسخ سطح بهینه شد. این روش شامل مجموعه‌ای از شاخص‌های تجربی است که برای بهینه‌سازی متغیرها به‌منظور دست‌یابی به حداکثر پاسخ استفاده می‌شود. برای بهینه‌سازی شاخص‌ها از طراحی باکس بنکن و نرم‌افزار Design Expert-7 استفاده شد(۱۰ و۱۱). شاخص‌های مورد بررسی شامل pH (A)، زمان (B)، مقدار جاذب (C) و غلظت فلوراید (D) می‌باشد و درصد حذف به‌عنوان پاسخ در نظر گرفته شد. بر اساس روش پاسخ سطح، معادله چند جمله‌ای برای پیش‌بینی مقدار پاسخ به‌عنوان تابعی از متغیرها به‌کار گرفته شد (۱۱ و۱۲).

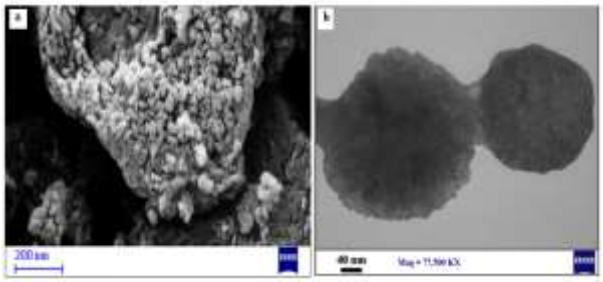
$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^{k} \beta_i X_i + \sum_{i=1}^{k} \beta_{ii} X^2_i + \sum_{i=1}^{k-1} \sum_{j=2}^{k} \beta_{ij} X_i X_{ij} + \sum_{i=1}^{k-1} \sum_{j=2}^{k} \beta_{ij} X^2_i X_j \quad (۲)$$

در این معادله Y بیانگر پاسخ پیش‌بینی شده، X_i و X_j بیانگر متغیرها و β نیز بیانگر ثابت ضریب خطی است. آزمایش شامل ۲۹ طراحی، یک مجموعه و پنج نقطه مرکزی است. اعتبار معادله با تجزیه و تحلیل واریانس بررسی شد و پاسخ سطح سه بعدی برای تعیین نقاط بهینه و بررسی اثر متغیرها بر یکدیگر استفاده شد.

نتایج

طیف پراش اشعه ایکس مربوطبه نانوکامپوزیت در شکل ۱a نشان داده شده است. نتایج مربوطبه تجزیه و تحلیل عنصری در شکل ۱b آورده شده است. شکل ۱c چرخه مغناطیسی نانوکامپوزیت را نشان می‌دهد.

شکل ۲ (a) تصویر میکروسکوپی الکترونی FESEM را به نمایش گذاشته است که ساختار خوشه‌ای متشکل از ذرات کروی تجمع‌یافته نانوکامپوزیت را نشان می‌دهد. شکل ۲ (b) تصویر TEM را نشان می‌دهد که ساختار تجمع‌یافته متشکل از نانو ذرات پوشیده شده از کیتوسان است.

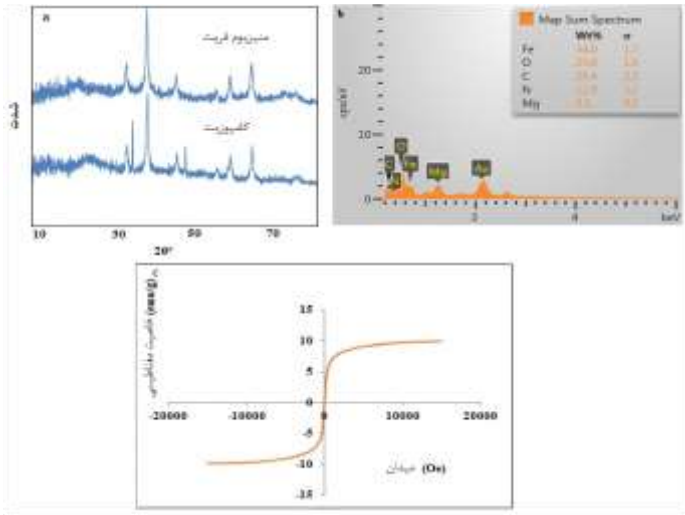


شکل ۲- تصویر FESEM(a) و TEM(b) مربوطبه نانوکامپوزیت

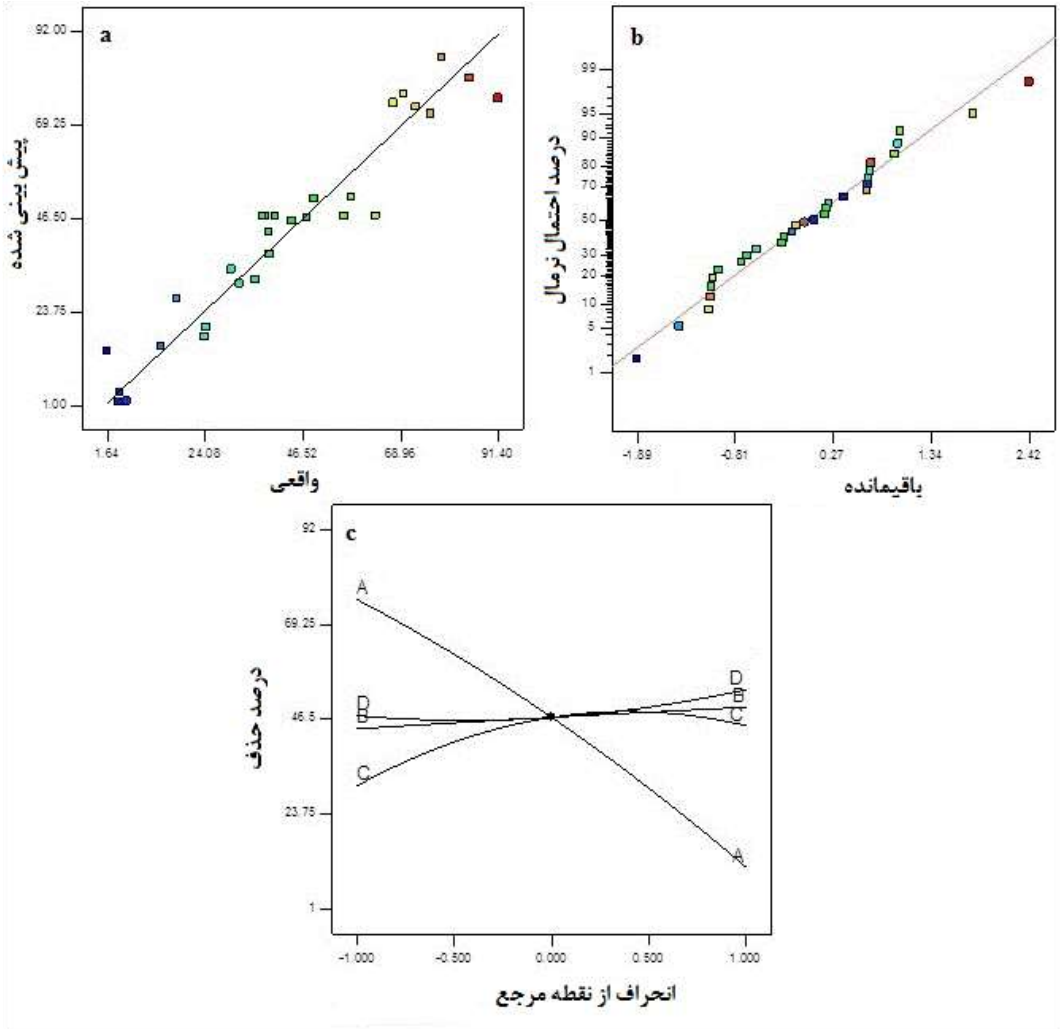
پس از انجام بهینه‌سازی شاخص‌های مدل بر اساس روش سطح-پاسخ، رابطه تجربی بین درصد تغییرات و مقدار متغیرها بر اساس معادله زیر به‌دست آمد:

$$\text{Removal} = +47.00 - 32.08A + 2.57B + 7.18C + 3.14D + 4.17\,AB - 7.24AC - 3.73\,AD - 0.93BC - 24.70BD - 0.42CD - 3.87A2 - 0.16B2 - 9.23C2 + 3.51D2 \quad (۳)$$

براساس نتایج آنالیز واریانس در جدول ۱ اهمیت ضرایب از مقادیر P و F تعیین گردید. بر اساس مقادیر P شاخص‌های مستقل A و C بر جذب فلوراید مؤثر هستند. شکل 3a نشان می‌دهد که توافق خوبی بین مقادیر درصد حذف پیش‌بینی شده و تجربی وجود دارد. به‌طوری‌که انحراف استاندارد بین نتایج تجربی و تئوری برابر ۱۰/۹ است. مقدار R2 با مقدار معدل R2 همخوانی خوبی دارد. مقدار عددی دقت (نسبت سیگنال به نویز) برابر ۱۱/۵۵ بیانگر اهمیت مدل استفاده شده برای جذب فلوراید است.



شکل ۱- پراش اشعه ایکس (a)، داده‌های EDX (b) و نمودار خاصیت مغناطیسی (c) مربوطبه نانوکامپوزیت

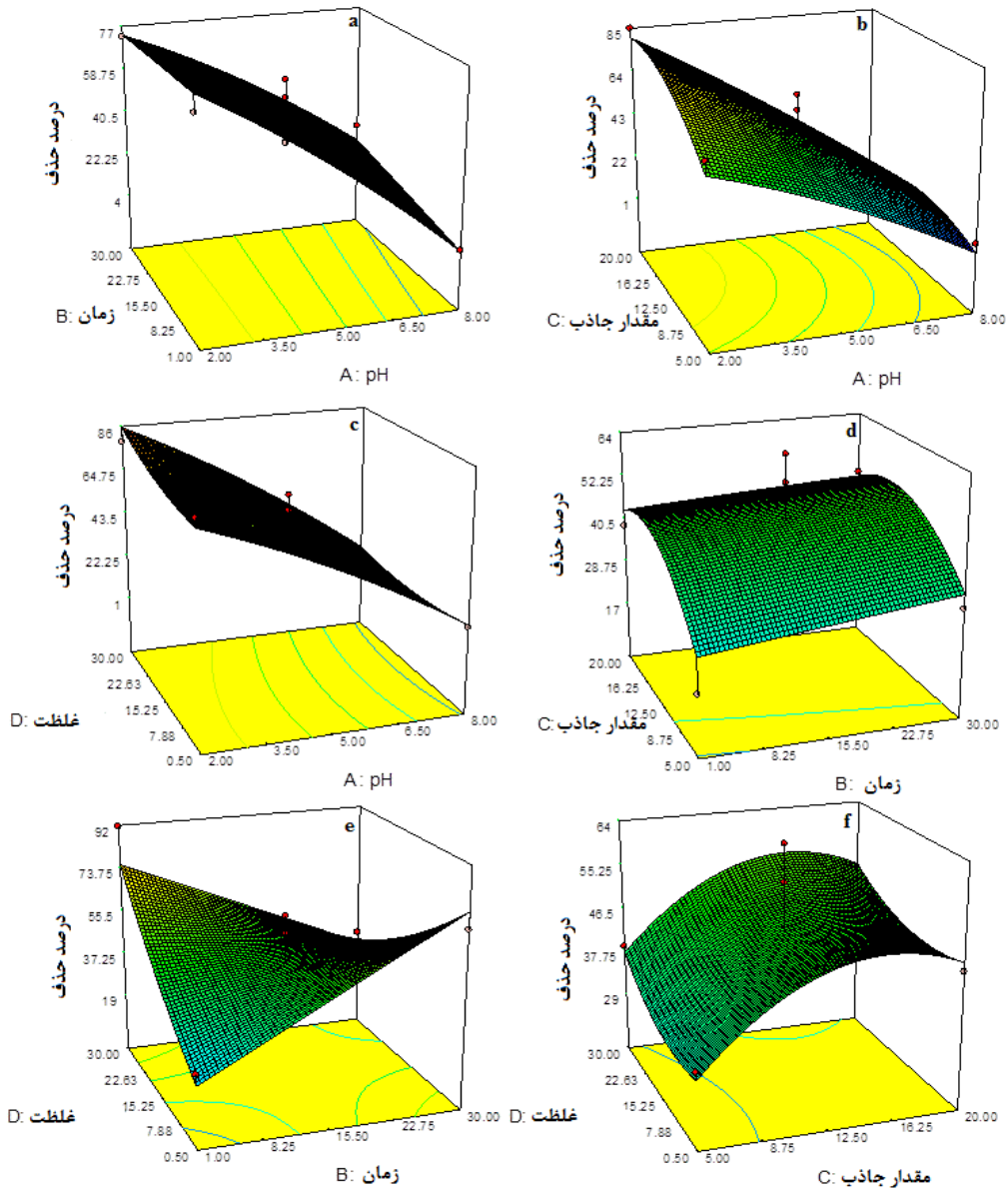


شکل ۳- نمودار نتایج پیش‌بینی شده بر حسب نتایج واقعی (a)، نمودار احتمال نرمال (b) و منحنی اختلال (c)

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F	P.V Prob>F
Model	۱۶۷۴۹/۸۱	۱۴	۱۱۹۶/۴۱	۱۱/۷۵	* ۰/۰۰۰۱>
A-pH	۱۲۳۴۶/۹۵	۱	۱۲۳۴۶/۹۵	۱۲۱/۲۳	۰/۰۰۰۱>
B-زمان	۷۹/۱۶	۱	۷۹/۱۶	۰/۷۸	۰/۳۹۲۹
C-مقدار جاذب	۶۱۸/۲۰	۱	۶۱۸/۲۰	۶/۰۷	۰/۰۲۳۷
D- غلظت	۱۱۸/۳۸	۱	۱۱۸/۳۸	۱/۱۶	۰/۲۹۹۲
AB	۶۹/۴۷	۱	۶۹/۴۷	۰/۶۸	۰/۴۲۲۷
AC	۲۰۹/۹۶	۱	۲۰۹/۹۶	۳/۰۶	۰/۱۷۳۰
AD	۵۵/۳۷	۱	۵۵/۳۷	۰/۵۵	۰/۴۷۱۷
BC	۳/۴۸	۱	۳/۴۸	۰/۰۳۴	۰/۸۵۶۰
BD	۲۴۳۹/۳۷	۱	۲۴۳۹/۳۷	۲۳/۹۵	۰/۰۰۰۲
CD	۰/۶۹	۱	۰/۶۹	۶/۷۶E-۰۰۳	۰/۹۶۸۰
A2	۹۷/۲۴	۱	۹۷/۲۴	۰/۹۵	۰/۳۴۵۱
B2	۰/۱۷	۱	۰/۱۷	۱/۶۷E-۰۰۳	۰/۹۶۸۰

C2	۵۵۲/۶۸	۱	۵۵۲/۶۸	۵/۴۳	۰/۰۳۵۳
D2	۷۹/۸۸	۱	۷۹/۸۸	۰/۷۸	۰/۳۹۰۸
Residual	۱۴۲۵/۹۲	۱۴	۱۰۱/۸۵		
Lack of Fit	۸۵۹/۲۳	۱۰	۵۸/۹۲	۰/۶۱	۰/۷۶۲۷ **
Pure Error	۵۶۶/۶۹	۴	۱۴۱/۶۷		
Cor Total	۱۸۱۷۵/۷۳	۲۸			

* Significant ** Not-Significant



شکل ٤- منحنی سه بعدی شاخص‌های مؤثر بر حذف فلوراید

اعتبار آنالیز واریانس با توزیع نرمال باقیمانده‌ها و براساس نمودار احتمال نرمال بررسی شد (۱۳). نتایج در نمودار ۳b بیانگر طبیعی بودن داده‌ها است. منحنی اختلال در شکل ۳c بیانگر اثرات هر کدام از شاخص‌ها بر درصد حذف می‌باشند.

براساس نتایج مربوطبه منحنی سه بعدی رابطه pH با سه شاخص دیگر در شکل ۴، میانگین درصد حذف در محدوده pH=۲–۸ برابر با ۲– ۸۰٪ می‌باشد و مؤید آن است که pH شاخص مؤثری است.

زمان تماس جاذب و فلوراید بین یک تا ۳۰ دقیقه در نظر گرفته شد و مقدار جاذب نیز بین پنج تا ۲۰ میلی‌گرم در نظر گرفته شد.

نتایج مربوطبه راندمان حذف فلوراید در محدوده غلظتی ۱۰۰ – ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر در شکل ۵ نشان داده شده است. براساس نتایج راندمان حذف در غلظت اولیه ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر برابر ۸۵٪ است و در غلظت ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر راندمان به ۸۷٪ می‌رسد.

جذب فلوراید بر اساس مدل لنگمویر و فروندلیچ بررسی گردید. مدل لنگمویر به‌وسیله معادله خطی زیر قابل بیان است(۱۵، ۱۴):

$$\frac{1}{Qe} = \frac{1}{Ce(bQm)} + \frac{1}{Qm} \quad (۴)$$

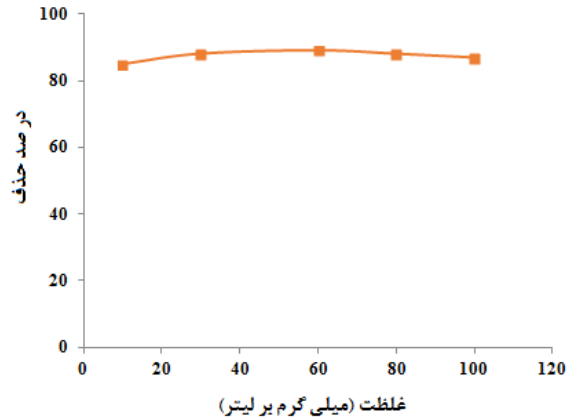
در این معادله Ce بیانگر غلظت تعادلی جذب شونده در فاز مایع و Qe (mg/g) غلظت جذب‌شونده در فاز جامد می‌باشد، b و Qm ضرایب لنگمویر هستند که به‌ترتیب بیانگر ثابت تعادل و ظرفیت تک لایه برای جذب می‌باشند (۱۸–۱۶). معادله فروندلیچ نیز به‌صورت زیر بیان می‌شود. در این معادله Kf و n بیانگر ضرایب فروندلیچ هستند.

$$\mathbf{logQe = logKf + \frac{1}{n} log Ce} \quad (۵)$$

بر اساس نتایج جدول ۲، ایزوترم لنگمویر و ایزوترم فروندلیچ هردو درجه خطی بالایی دارند بر این اساس برای انتخاب بهترین مدل جذبی از آزمون مربع میانگین ریشه (RMSE) استفاده شد (۱۹).

$$\mathbf{RMSE = \sum(\frac{Qexp-Qc}{Qexp})^2} \quad (۶)$$

در این معادله Qexp برابر ظرفیت جذب به‌دست آمده از آزمایش و Qc ظرفیت پیش‌بینی شده بر اساس آزمون بیان شده است.



شکل ۵- نمودار اندمان حذف فلوراید در غلظت‌های مختلف

جدول ۲- داده‌های مربوطبه ایزوترم لنگمویر و فروندلیچ برای جذب فلوراید

		لنگمویر				فروندلیچ			
		Qmax (mg/g)	b (L/mg)	R 2	RMSE	Kf (mg/g)(1/mg)1/n	R2	n	RMSE
MgFe2O4	- CTS	۱۸۱/۸۱	۰/۰۴۲	۸۹ ۰/	۵/۰۱	۷/۹۹	۰/۸۹	۹۱ ۰/	۶/۲۱

بحث

در طیف پراش اشعه ایکس، پراش سلول‌های مکعبی اکسید در ناحیه ۳۰/۳۶، ۳۵/۸۵، ۴۳/۶۳، ۵۳/۵۲، ۵۷/۴۸ و ۶۳/۳۲ درجه مربوطبه صفحات (۲۲۰)، (۳۱۱)، (۴۰۰)، (۴۲۲)، (۵۱۱) و (۴۴۰) می‌باشند. به‌علاوه طیف به خوبی نشان‌دهنده ساختار کیتوسان است (۱۰) و پیک‌های مربوطبه کیتوسان نیز در ناحیه ۲۳ و ۳۲ قابل مشاهده است. براساس نتایج تجزیه و تحلیل عنصری حضور عناصر سازنده کامپوزیت به خوبی در طیف مشخص می‌باشد. حضور نیتروژن، آهن، منیزیوم، کربن و اکسیژن در طیف مؤید تشکیل کامپوزیت مغناطیسی است. نتایج مغناطیسیته نانوذرات نشان می‌دهد که مغناطیس اشباع برابر emu/g 11 می‌باشد. مقدار باقیمانده برای نانوکامپوزیت برابر ۰/۳۶ می‌باشد و بیانگر سوپرپارامغناطیس بودن نانوذرات می‌باشد (۱۱)

تصویر میکروسکوپی الکترونی SEM نشان می‌دهد که کامپوزیت ساختار خوشه‌ای متشکل از ذرات کروی تجمع‌یافته را به نمایش می‌گذارد. تصویر TEM نشان می‌دهد که ساختار تجمع‌یافته متشکل از نانوذرات پوشیده شده از کیتوسان است و نانوذرات در ماتریس پلیمر پخش شده‌اند. به عبارت دیگر کیتوسان به‌عنوان پوشش باعث ایجاد ساختار هسته – پوسته می‌گردد.

براساس نتایج موجود در منحنی اختلال اثرات هر کدام از شاخص‌ها بر درصد حذف، انحنای زیاد در منحنی مربوطبه pH نشان‌دهنده تأثیر بالای این شاخص بر راندمان جذب است. به‌علاوه منحنی مقدار جاذب انحنای کمی دارد و بیانگر تأثیر کم این شاخص بر فرآیند جذب است. با توجه به مؤثر بودن pH بیش از سایر شاخص‌ها در فرایند جذب می‌توان نتیجه گرفت که جذب فلوراید از مکانیسم جاذبه الکتروستاتیک تبعیت می‌کند.

تشکیل پیوند هیدروژنی بین گروه‌های هیدروکسی آمین در ساختار جاذب و فلوراید نیز در فرآیند جذب نقش دارد (۱۴). بر اساس نتایج با افزایش زمان، راندمان جذب نیز افزایش می‌یابد. به‌علاوه میزان جذب در دقایق اولیه نیز بالاست که به علت بالا بودن مکان‌های فعال در

دسترس برای جذب فلوراید می‌باشد. با اشغال سطوح فعال در زمان‌های اولیه، فرآیند جذب به سرعت انتقال گونه از محلول به سطح جاذب وابسته خواهد بود. مقدار کم جاذب می‌تواند باعث عدم‌جذب مؤثر شود از طرف دیگر غلظت بالای جاذب نیز می‌تواند باعث همپوشانی بین سایت‌های فعال و کاهش راندمان گردد (۱۵).

براساس نتایج منحنی‌های سه بعدی رابطه مقدار جاذب با سه متغیر دیگر، می‌توان مشاهده نمود که با افزایش مقدار جاذب راندمان جذب به آرامی افزایش می‌یابد این اثر به‌دلیل افزایش مکان‌های فعال با افزایش مقدار جاذب می‌باشد. به‌منظور ارزیابی صحت نقاط بهینه پیش‌بینی شده توسط مدل، سه آزمایش تکراری در شرایط بهینه (pH برابر ۲/۸، زمان ۴/۵دقیقه، مقدار جاذب ۱۹ میلی‌گرم و غلظت ۲۷ میلی‌گرم بر لیترانجام گرفت. نتایج عملی راندمان حذف ۹۸٪ را نشان داد که نزدیکی مناسبی با نتایج پیش‌بینی شده توسط مدل (۹۹٪) دارد.

بر اساس نتایج مطالعه ایزوترمی، ایزوترم لنگمویر مقدار کوچک‌تری از RMSEرا نشان می‌دهد بنابراین مدل لنگمویر فرآیند جذب را بهتر توصیف می‌نماید اما بر اساس نتایج، ایزوترم فروندلیچ درجه خطی بالایی دارد (۰/۹۸) بنابراین می‌توان نتیجه گرفت که جذب فلوراید بر روی سطح جاذب از جذب تک لایه شیمیایی و به‌دنبال آن از جذب فیزیکی چند لایه تبعیت می‌کند.

در پایان می‌توان نتیجه‌گیری کرد که استفاده از جاذب‌های پلیمری با منشأ طبیعی و زیست سازگار یک راهکار مناسب برای برای فرآیند تصفیه آب و حذف آلاینده‌ها است بنابراین در این تحقیق نانوکامپوزیت مبتنی‌بر منیزیوم فریت – کیتوسان مغناطیسی برای حذف فلوراید سنتز و استفاده شد. نتایج مربوطبه بهینه‌سازی سطح پاسخ نشان می‌دهد کهpH و مقدار جاذب شاخص‌های مؤثر بر جذب هستند. جذب فلوراید نیاز به زمان کمی دارد و از مدل لنگمویر تبعیت می‌کند و ظرفیت جذب بالایی دارد.

تشکر و قدردانی

مقاله حاضر حاصل رساله دکتری ثبت شده در دانشگاه آزاد اسلامی واحد بوشهر (کد شناسایی ۱۴۶۴۸۱۸۶۱۲۴۶۷۹۱۱۶۲۳۰۶۹۹۸) و با همکاری دانشگاه علوم پزشکی شاهرود بوده و نویسندگان مقاله بدین‌وسیله مراتب سپاس و قدردانی خود را از این مراکز علمی به‌عمل می‌آورد.

References

1. Moghaddam VK, Yousefi M, Khosravi A, Yaseri M, Mahvi AH, Hadei M, et al. High concentration of fluoride can be increased risk of abortion. Biol Trace Elem Res 2018;185:262-5. doi: 10.1007/s12011-018-1250-0
2. Zhang C, Li Y, Wang T, Jiang Y, Fok J. Synthesis and properties of a high-capacity iron oxide adsorbent for fluoride removal from drinking water. Applied Surface Science 2017;425:272-81. doi:10.1016/j.apsusc.2017.06.159
3. Dong S, Wang Y. Characterization and adsorption properties of a lanthanum-loaded magnetic cationic hydrogel composite for fl uoride removal. Water Research 2016;88:852-60. doi:10.1016/j.watres.2015.11.013
4. Li L, Qi Z, Kexin M, Zipeng X. Fluoride removal from liquid phase by Fe-Al-La trimetal hydroxides adsorbent prepared by iron and aluminum leaching from red mud. Journal of Molecular Liquids 2017;237:164-72. doi:10.1016/j.molliq.2017.04.097
5. Karmakar S, Dechnik J, Janiak Ch, De S. Aluminium fumarate metal-organic framework : A super adsorbent for fluoride from water. Journal of Hazardous Materials 2016;303:10-20. doi:10.1016/j.jhazmat.2015.10.030
6. Kuang L, Liu Y, Fu D, Zhao Y. FeOOH-graphene oxide nanocomposites for fluoride removal from water : Acetate mediated nano FeOOH growth and adsorption mechanism. Journal of Colloid And Interface Science 2017;490:259-69. doi:10.1016/j.jcis.2016.11.071
7. Dayananda D, Sarva VR, Prasad SV, Arunachalam J, Ghosh NN. Preparation of CaO loaded mesoporous Al 2 O 3 : Efficient adsorbent for fluoride removal from water. Chemical Engineering Journal 2014;248:430-9. doi:10.1016/j.cej.2014.03.064
8. Xu W, He Q, Zhang S, Zhang W. Adsorption of fluoride from aqueous solutions by polyacrylic acid modified with aluminium. Polym Bull 2018;75:1171-84.doi:10.1007/s00289-017-2082-3
9. Bansiwal A, Thakre D, Labhshetwar N, Meshram S, Rayalu S. Fluoride removal using lanthanum incorporated chitosan beads. Colloids Surf B : Biointerfaces 2009;74:216-24. doi:10.1016/j.colsurfb.2009.07.021
10. Beyki MH, Bayat M, Miri S, Shemirani F, Alijani H. Synthesis, characterization, and silver adsorption property of magnetic cellulose xanthate from acidic solution: Prepared by one step and biogenic approach. Ind Eng Chem Res 2014;53:14904-12. doi:10.1021/ie501989q
11. Yan H, Zhang J, You C, Song Z, Yu B, Shen Y. Influences of different synthesis conditions on properties of Fe3O4 nanoparticles. Materials Chemistry and Physics 2009;113:46-52. doi:10.1016/j.matchemphys.2008.06.036
12. Buntic A, Pavlovic M, Mihajlovski K, Randjelovic M, Rajic N, Antonovic D, et al. Removal of a cationic dye from aqueous solution by microwave activated clinoptilolite- Response surface methodology approach. Water, Air, and Soil Pollution 2014;225: 1816-29. doi:10.1007/s11270-013-1816-6
13. Khani R, Sobhani S, Beyki MH. Highly selective and efficient removal of lead with magnetic nano-adsorbent: Multivariate optimization, isotherm and thermodynamic studies. Journal of Colloid and Interface Science 2016;466:198-205. doi:10.1016/j.jcis.2015.12.027
14. Pan B, Xing B. Adsorption mechanisms of organic chemicals on carbon nanotubes. Environ Sci Technol 2008;42;9005-13. doi:10.1021/es801777n
15. Tumin ND, Chuah AL, Zawani Z, Rashid SA. Adsorption of copper from aqueous solution by elais guineensiskernel activated carbon. Journal of Engineering Science and Technology 2008;3:180-9.
16. Goel NK, Kumar V, Misra N, Varshney L. Cellulose based cationic adsorbent fabricated via radiation grafting process for treatment of dyes waste water. Carbohydrate Polymers 2015;132:444-51. doi:10.1016/j.carbpol.2015.06.054
17. Maneerung T, Liew J, Dai Y, Kawi S, Chong C, Wang CH. Activated carbon derived from carbon residue from biomass gasification and its application for dye adsorption: Kinetics, isotherms and thermodynamic studies. Bioresour Technol 2016;200:350-9. doi:10.1016/j.biortech.2015.10.047

18. Sun X, Yang L, Li Q, Liu Z, Dong T, Liu H. Polyethylenimine-functionalized poly (vinyl alcohol) magnetic microspheres as a novel adsorbent for rapid removal of Cr (VI) from aqueous solution. Chemical Engineering Journal 2015;262:101-8. doi:10.1016/j.cej.2014.09.045

19. Saha P. Assessment on the removal of methylene blue dye using tamarind fruit shell as biosorbent. Water, Air, and Soil Pollution 2010;213:287-99. doi:10.1007/s11270-010-0384-2

Journal of Knowledge & Health
in Basic Medical Sciences 2021; Vol 15, No 4

DOI: 10.22100/jkh.v4i15.2495

Original Article

Synthesis and Employment of Magnesium Ferrite – Chitosan Nanocomposite for Fluoride Removal from Aqueous Solution with the Aid of Response Surface Optimization

Masoud Ghanbarian(Ph.D. Student)[1], Tayebeh Tabatabaie (Ph.D.)[1*], Marjan Ghanbarian (Ph.D.)[2*]

1- Dept. of Environmental Engineering, Bushehr Branch, Islamic Azad University, Bushehr, Iran.
2- School of Public Health, Shahroud University of Medical Sciences, Shahroud, Iran.

Received: 25 January 2021**, Accepted:** 14 February 2021

Abstract:

Introduction: *Excess fluoride ions in drinking water cause several diseases so the defluoridation of drinking water for removing the excess fluoride is necessary for human health. Hence this work describes fluoride removal from water using MgFe2O4-chitosan nanocomposite.*

Methods: *In this work, a nitrate salt of Mg and Fe was used to synthesis MgFe2O4 through a combustion route. Then MgFe2O4 - chitosan nanocomposite was synthesized using epichlorohydrin as a linker. Characterization of the sorbent was performed with FESEM, TEM, VSM, EDX, and XRD techniques. Effective parameters on the adsorption process such as pH, contact time, adsorbent dosage, and fluoride concentration were optimized by response surface methodology (RSM) using Box - Behnken design (BBD). Isotherm study was studied at the fluoride concentration range of 10- 100 mg/L.*

Results: *The optimum value of pH, contact time, adsorbent dosage, and fluoride concentration was 2.8, 4.5 min, 19.0 mg, and 28.87 mg/L, respectively. At the optimum condition, the maximum removal efficiency was 98.1%. Results showed that the adsorption process followed the Langmuir model with a capacity of 181.1 mg/g.*

Conclusion: *The result of the present work showed that the nanohybrid has good potential as a cheap magnetic sorbent for environmental remediation purpose as can be used for effective removal of fluoride from water solution.*

Keywords: Fluoride, Adsorption, Response surface method, Nanocomposite.

Conflict of Interest: No

***Corresponding author**: T. Tabatabaie, **Email:** tabatabaie@iaubushehr.ac.ir, M. Ghanbarian, **Email:** ghanbarian@shmu.ac.ir*

Citation: Ghanbarian M, Tabatabaie T, Ghanbarian M. Synthesis and employment of magnesium ferrite–chitosan nanocomposite for fluoride removal from aqueous solution with the aid of response surface optimization. Journal of Knowledge & Health in Basic Medical Sciences 2021;15(4):28-36.