

کارایی هیدروکسید دوگانه لایهای منیزیم-آلومینیم در حذف فسفر از محلول آبی

یاسر عظیمزاده*، نصرت اله نجفی، عادل ریحانی تبار، شاهین اوستان گروه علوم و مهندسی خاک، دانشکده کشاورزی، دانشگاه تبریز، تبریز، ایران

چکــــیدہ	الە:	ات مق		اطـــــ
زمینه و هدف: فسفر بعنوان یکی از آلاینده های پساب های کشاورزی، صنعتی و شهری، نقش مهمی در غنی شدن یا بهپروردگی (Eutrophication) آب های سطحی دارد. استفاده از جاذب های کاتیونی، روش شناخته شده و مؤثری برای حذف آنیون هایی مانند فسفات از محیط های آبی است. در این میان، هیدرو کسیدهای دوگانه لایه ای ((Layered double hydroxides (LDHs) بعنوان جاذب های تبادل آنیونی با کارایی بالا شناخته شده اند. در این مطالعه، کارایی هیدرو کسید دوگانه لایه ای منیزیم – آلومینیم در حذف فسفر از محلول آبی مورد بررسی قرار گرفت. روش بررسی: هیدروکسید دوگانه لایه ای منیزیم – آلومینیم (Mg-Al-LDH-Cl) با استفاده از	વ વ વ	0/+9/+1 0/11/44 0/11/44 8/+4/41	ريافت: يرايش: ذيرش: نتشار:	تاريخ د تاريخ و تاريخ ا
روش همرسوبی تولید و برای حذف فسفر از محلول آبی بکار برده شد. آزمایش های سینتیکی و تعادلی جذب فسفر بهوسیله Mg-Al-LDH-Cl در حالت بسته، با بررسی اثر عوامل مختلف مانند زمان تماس، غلظت اولیه فسفر، pH، قدرت یونی و دوز جاذب بر کارایی حذف فسفر بوسیله LDH، انجام شد. یافته ها: نتایج آزمایش سینتیکی نشان داد که جذب فسفر بهوسیله LDH پس از Min به تعادل رسید. مدل شبه درجه دوم، بهترین برازش را بر داده های سینتیکی جذب فسفر داشت	، فسفر، ،	ب سطحی، سینتیک سید دوگانه لایهای	کلیدی : جذر گی، هیدروک	واژگان بهپرورد
و این نشان میدهد که جذب شیمیایی، کنترلکننده سرعت جذب فسفر بوسیله LDH بود. همچنین، مدل لانگمویر بهترین برازش را بر دادههای آزمایش جذب داشت و بیشترین ظرفیت جذب با استفاده از این مدل ۳۷/۵۳ mg P/g بدست آمد. نتیجهگیری: مطالعه حاضر نشان داد که درصد جذب فسفر با افزایش زمان تماس و غلظت LDH افزایش، ولی با افزایش غلظت اولیه فسفر، PH و قدرت یونی کاهش مییابد. شرایط بهینه برای جذب سطحی آنیون فسفات بوسیله Mg-Al-LDH بصورت غلظت ۲۰ mg P/g برابر با ۳، دوز جاذب ۱۰ g/L	yaser.az	یسنده مسئول: timzadeh@gmai	کترونیکی نو l.com	پست الاً

Please cite this article as: Azimzadeh Y, Najafi N, Reyhanitabar A, Oustan S. Efficiency of Mg-Al layered double hydroxide for phosphorous removal from aqueous solution. Iranian Journal of Health and Environment. 2017;10(1):125-38.

مقدمه

رشد روزافزون جمعیت جهان و گسترش صنعت، منجر به توليد بي سابقه ضايعات صنعتي، كشاورزي و شهري شده است؛ بطوری که امروزه آلودگی های ناشمی از پساب ها و فاضلاب ها و چگونگی دفع آنها از چالشهای مهم بشر به شرمار میرود. ورود فسفر از منابع مختلف نظیر پسابهای شهری، صنعتی و کشاورزی به آبهای سطحی باعث تشدید رشد ریزجانداران فتوسنتزكننده آبزي و بروز پديده غني شدن يا بهپروردگي (Eutrophication) آبهای سطحی و برهم خوردن تعادل اكوسيســتمهاي آبي شده است (۱). ۹۰ درصد فسفر توليد شده در جهان در ســاخت کودها، شــویندهها، فراوردههای غذایی و نوشیدنی و استخراج فلزات مورد استفاده قرار می گیرد (۲) و بخش زيادي از أن دوباره از طريق فاضلابها و يسابها به محیط زیست باز می گردد. با توجه به کاهش کمیت و کیفیت منابع آب، استفاده از منابع تجدیدپذیر آب یکی از جدیترین مسائل در مدیریت و استفاده از منابع آب است. استفاده مجدد از آب و حتمی فاضلاب برای مصارف غیرشرب نظیر آبیاری زمین،های کشاورزی و احیای اکوسیستمهای آبی یکی از راهکارهای عملیاتی برای کاهش میزان استفاده از آبهای شیرین است (۳). بنابراین، یافتن راه حل مناسب برای ممانعت از ورود اين عنصر به آبها و حذف آن از منابع آبي اهميت فراوان دارد. تاكنون روشهای متعددی شامل روشهای زیستی، شیمیایی و فیزیکی برای حذف آلاینده هایی مانند فسفر از فاضلاب های صنعتی و شهری استفاده شده است که بسیاری از این روش ها هزینهبر بوده و در مقیاس صنعتی صرفه اقتصادی ندارد. در بسیاری از روشهای زیستی و شیمیایی، لجن حاصل از ترسيب آلاينده بهعلت دارا بودن مواد شيميايي مختلف، مشــکلات زیســتمحیطی را در یــی دارد. علاوه بر آن، روش های زیستی معمولا فرایند پیچیده و کندی داشته و برای تصفیه آب حاوی غلظت زیاد فسفر مناسب نیستند (۴). از این میان، روش جذب سطحی بعلت امکان بازیابی عنصر جذب شده و سهولت استفاده بیشترین کاربرد را دارند (۵). در این روش، از جاذب های مختلفی مانند اکسیدها،

هیدروکسیدها، ســنگهای معدنی (مانند کلسیت و گئوتیت)، سولفيدها، كربناتها، فسفاتها و كربن فعال براي جذب آلایندهها استفاده میشود؛ ولی استفاده از این نوع جاذبها هزینه بر بوده و ظرفیت جذب پایینی دارند (۶). در دهههای اخیر، استفاده از ترکیباتی به نام هیدروکسیدهای دوگانه لایهای (Layered double hydroxides(LDHs)) بعنوان جاذب ارزان، دوستدار محیط زیست و با کارایی بالا برای جذب آلاینده های آنیونی بیشـتر مورد توجه قرار گرفته است. LDHs ورقههای اکتاهدرال متناوب شبهبروسایت با بار مثبت هستند که در فضاهای بین لایهای، دارای آنیون یا اکسی آنیون بههمراه مولكولهاي آب هسـتند. سـاختمان LDHs مشـابه ساختمان کانے ہیدروتالکیت (Hydrotalcite) بودہ و دارای فرمول عمومی است که در آن، M^{2+} و M^{3+} به ترتیب کاتیونهای فلزی دو و ســه ظرفیتــی، ^{ــ}A آنیون n ظرفیتی و x برابر نسبت مولى (+1 M^{3+/} (M²⁺+M³⁺) است (٧). از جمله ویژگیهای LDHs، سطح ویژه بالا و ظرفیت تبادل آنیونی (۳ meq/g) است (۸) که این ویژگیها به LDH این امکان را میدهد که انواع آلاینده های آنیونی و مولکول های قطبی را از محلول های آبی جـذب نماید. پژوهش هـای متعددی در رابطه با جذب اکسی آنیون های مختلف مانند فسفات، نيترات، سولفات، سلنات، سلنيت، أرسنات، أرسنيت، برومات، موليبدات، وانادات، كرومات بهوسيله LDHs انجام شده است (۸-۱۱). از جمله مزایای استفاده از LDHs بعنوان جاذب فسفر میتوان به ارزانی و آسانی تولید، امکان بازیابی فسفر جذب شده (۱۲)، تنوع LDHs از نظر نوع فلز و آنیون بین لايهاي، ظرفيت و سرعت جذب زياد و امكان كلسينه كردن (Calcination) HDH (Calcination) برای افزایت و سرعت جذب اشاره کرد (۸). Seida و همکار (۲۰۰۲) نشان دادند که LDH می تواند آب آشامیدنی با غلظت پایین فسفر را نیز تصفیه کند (۱۳). ویژگیهای ساختاری LDHs از قبیل نوع آنیون بینلایهای، نوع و نسبت کاتیون دوظرفیتی به سه ظرفیتی و روش توليد، اثر قابل توجهي بر جذب أنيونها دارد. بنابراين، نیاز است که LDHs با ویژگی های ساختاری مختلف برای

الامر ۱۳۹۶ درمهم شماره اوّل/ بهار ۱۳۹۶ فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایر ان ijhe.tums.ac.ir

حذف آلاینده های آنیونی مانند فسفر از محلول های آبی مورد بررسی قرار گیرند. با این حال، تاکنون از هیدروکسید دوگانه لایه ای Mg-Al-LDHs با آنیون بین لایه ای ¹⁻Cl برای حذف فسفر از محلول آبی استفاده نشده است. هدف از انجام این مطالعه بررسی سینتیک (Kinetics) و ایزوترم (Isotherm) جذب فسفر از محلول آبی بوسیله هیدروکسید دوگانه لایه ای جذب فسفر، از محلول آبی و بررسی اثر غلظت اولیه فسفر، زمان تماس، Hq، قدرت یونی و نسبت حجم محلول به جرم جاذب بر کارایی حذف فسفر بوسیله این جاذب بود.

مواد و روشها

مواد شمیمیایی: مواد شمیمیایی مورد استفاده در این مطالعه شامل کلرید منیزیم (MgCl₂.6H₂O)، کلرید آلومینیم (NaOH)، هيدروكسيد سديم (AlCl₃.6H₂O) اسيد كلريدريك (HCl) و پتاسيم دى هيدروژن فسفات (KH₂PO₄) از شرکت مرک (Merck) آلمان تهیه شدند. تهیمه هیدروکسید دوگانمه لایمای: در این مطالعه، هیدروکسید دوگانه لایهای Mg-Al-LDHs با نسبت مولی ۳:۱ Mg:Al تهیه شـد. برای این منظور از روش همرسـوبی (Co-precipitation) در فوق اشرباع پایین استفاده شد (۱۰). بطور خلاصــه، محلـول حاوى غلظـت M ۱۰/۷۵ نمک کلریاد منیزیم (MgCl₂.6H₂O) و غلظت ۸/۲۵ مک كلريد ألومينيم (AlCl₃.6H₂O) به همراه محلول حاوى غلظت ۱ M هیدروکسید سدیم و ۱ M کلرید سدیم به مقداری آب دیونیزه، در حال همزدن بتدریج افزوده شد و pH آن با افزودن محلول هیدروکسید سدیم ۲ M در ۱۰ تنظیم شد. سپس تعلیق (Suspension) بدست آمده بهمدت ۳ روز در دمای ۸۰ ⁰C پیرسازی (Aging) شد و در نهایت رسوبات تشکیل شده برای خروج نمکهای اضافی چندین بار با آب مقطر شستشو و سپس در دمای 0 ۷۰ در آون خشک شد.

الگوی پراش اشعه ایکس (X-ray crystallography): الگوی پراش اشعه ایکس جاذب با استفاده از دستگاه XRD ساخت شرکت فیلیپس (PHILIPS) هلند، مدل PW1730،

در محـدوده زوایـای تفـرق (θ۲) ۵ تا ۷۰ درجـه (CuKα) radiation تهیه شد.

انجام آزمایش های جذب (Sorption): آزمایش های جذب فسفر بوسیله LDH در حالت بسته (Batch)، در دمای ⁰C ۲۵ انجام شد و تاثیر برخی از مهم ترین پارامترهای مؤثر بر فرایند جذب شامل غلظت اولیه فسفر از منبع (در بازه pH ، ۲۰۰۰ mg P/L (مان تماس (در بازه ۱۲۰min -۰)، pH (در بازه ۹–۳) که با استفاده از محلول های NaOH ۱ M و HCl تنظیم شد، دوز جاذب (در بازه ۱۰ g/L –۱۰)) و قدرت یونی (در بازه ۱۰ سال اس مطالعه شد. پتاسیم (KCl) بر حذف فسفر مطالعه شد.

بررسی سینتیک جذب فسفر: برای انجام آزمایش های بررسی سینتیک جذب فسفر به وسیله LDH ، g ۱/۱ از جاذب به همراه سینتیک جذب فسفر به وسیله ۸۰ mg ۲/L از جاذب به همراه پلی اتیلنی منتقل شد و بر روی شیکر (۱۷۰ rpm) در دمای اتاق تکان داده شد. نمونه ها در فاصله های زمانی مختلف از ۵ تاق تکان داده شد. نمونه ها در فاصله های زمانی مختلف از ۵ تا ۳ min دان منیکر خارج و با دور mpm ۷۰۰۰ به مدت م min ۵ سانتریفیوژ شدند و غلظت تعادلی فسفر در محلول های رویی به وسیله دستگاه اسپکتر وفتومتر مدل SU6100 ساخت شرکت Philler Scientific آمریکا، به روش اسید آسکوربیک شرکت LDH از تفاوت غلظت اولیه و غلظت تعادلی یون ها در محلول باقیمانده با استفاده از معادله ۱ و درصد جذب یون های فسفات با استفاده از معادله ۲ محاسبه شد (۱۵):

$$q_e = \frac{(C.-C_e)V}{m} \tag{1}$$

Sorption (%) =
$$\frac{C_{\cdot} - C_{e}}{C_{\cdot}} \times \cdots$$
 (Y)

که در این معادلات و به ترتیب غلظتهای اولیه و تعادلی فسفر در محلول بر حسب میلیگرم در لیتر، V حجم محلول فسفر بر حسب لیتر و m جرم جاذب بر حسب گرم است. برای بررسی سینتیک فرایند جذب از مدلهای سینتیکی شبه درجه اول، شبه درجه دوم و پخشیدگی درونذرهای (Intra particle diffusion) استفاده شد. شکل غیرخطی مدلهای

ملام في ومحط صلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایر آن ijhe.tums.ac.ir

که در این معادله، \mathbf{q}_{m} و \mathbf{q}_{m} به ترتیب مقدار فسفر جذب شده و حداکثر فسفر جذب شده بهوسیله جاذب بر حسب میلی گرم بر گرم و \mathbf{K}_{L} ثابت جذب لانگمویر بر حسب لیتر بر میلی گرم است (۱۱). میزان مطلوب بودن ایزوترم لانگمویر برای یک فرایند جذب را می توان به کمک یک ثابت بدون واحد به نام فاکتور تفکیک (Separation factor) یا پارامتر تعادلی(\mathbf{R}_{L}) تعیین نمود (۱۷). برای تعیین ثابت تفکیک ایزوترم لانگمویر از معادله ۸ استفاده شد.

$$R_L = \frac{1}{1 + K_L C_L} (A)$$

مدل فروندلیچ یک معادله با پایه تجربی است و شکل غیرخطی آن بصورت زیر است (معادله ۹) (۱۵):

 $q_e = K_F C_e^N$ (9)

که در این معادله ثابت فروندلیچ بر حسب میلیگرم بر گرم بوده و شاخصی از ظرفیت جذب است. N (بدون واحد) نیز نشاندهنده درجه ناهمگنی سطح جذبکننده است.

برای تعیین دقت و صحت مدلهای سینتیکی و ایزوترم برازش یافتـه از دو معیـار آماری ضریب تبییـن (r²) و خطـای معیار بـرآورد ((Standard Error of Estimate (SEE) معیار برآورد از معادله استفاده شد. بـرای محاسبه خطـای معیـار برآورد از معادله معیار برآورد از معادله معدار بیش بینی شده و تعداد ر ترتیب برابر با مقدار مشاهده شده، مقدار پیش بینی شده و تعداد کل نمونه اسـت (۱۸). برای اجتناب از خطا در برازش مدلها به داده های سینتیکی و تعادلی، بجای استفاده از شکل خطی، از شکل غیرخطی معادلهها استفاده شد و برازش دادهها به مدلها

با استفاده از نرم افزار GraphPad Prism 6 انجام شد. بررسی اثر عوامل مؤثر بر جذب فسفر: اثر pH، قدرت یونی و دوز جاذب بعنوان عوامل مؤثر بر جذب فسفر بوسیله LDH بررسی شد. تیمارهای آزمایش شامل pH (۴ سطح)، قدرت یونی (۴ سطح) و دوز جاذب (۴ سطح) در سه تکرار بود. تجزیه واریانس دادهها در قالب طرح کاملا تصادفی و مقایسه شبه درجه اول، شبه درجه دوم و پخشیدگی درون درهای به ترتیب بصورت معادلات ۳، ۴ و ۵ است (۱۵, ۱۶). برای تعیین سرعت اولیه جذب از معادله ۶ استفاده شد (۱۷).

$$\begin{aligned} q_t &= q_e (v - e^{-k_1 t}) \quad (\tilde{r}) \\ q_t &= \frac{k_r q_e^r t}{v + k_r q_e t} \quad (\tilde{r}) \\ q_t &= K_i t^{\cdot, \Delta} + I \quad (\Delta) \\ H &= k_r q_e^r \quad (\mathcal{P}) \end{aligned}$$

کے در این معادلات، او I ،t ،H، k₂،k₁ ،q₂ ،q₄ به ترتیب مقدار فسفر جذب شده در زمان t بر حسب میلی گرم بر گرم، مقدار فسفر جذب شده در زمان تعادل بر حسب میلی گرم بر گرم، ثابت سرعت مدل شبه درجه اول برحسب یک بر دقیقه، ثابت سرعت مدل شبه درجه دوم بر حسب میلی گرم بر دقیقه، سرعت اولیه جذب بر حسب میلی گرم بر گرم در دقیقه، زمان بر حسب دقیقه، عرض از مبدأ و ثابت سرعت پخشیدگی درون ذرهای بر حسب میلی گرم بر گرم در دقیقه است. در صورتی که عرض از مبدأ صفر باشد، پخشیدگی درونذرهای تعیین کننده اصلی سرعت جذب است (۱۱). بررسى ايزوترم جذب فسفر: براى انجام آزمايش هاى ايزوترم جذب فسفر، g ۰/۱ از جاذب به همراه ۲۰ mL محلول فسفر با غلظتهای مختلف (۲۰۰ mg P/L) به لولههای سانتریفیوژ پلیاتیلنی منتقل شده و لولهها بعد از تکان دادن به مدت min، سانتریفیوژ شده و غلظت فسفر در محلول رویی با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر با روش اسید آسکوربیک تعیین شد. برای تعیین مقدار و درصد یونهای فسفات جذب شده به ترتيب از معادلات ۱ و ۲ استفاده شد. برای توصيف داده های جذب فسفر به وسيله LDH از مدل های ايزوترم لانگموير و فروندليچ استفاده شد. شكل غيرخطي مدل جذب لانگمویر بصورت زیر نشان داده می شود (معادله ۷):

$$q_e = \frac{q_m K_L C_e}{1 + K_L C_e} \qquad (V)$$

کر ایس ۱۳۹۶ درمهم شماره اوّل بیار ۱۳۹۶ فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایر ان ijhe.tums.ac.ir



LDH نمودار ۱- اثر زمان تماس بر درصد جذب فسفر بهوسیله (غلظت فسفر PH = ۷ ٬۸۰ mg/L و دوز جاذب ۵ g/L)



نمودار ۲- اثر غلظت اولیه فسفر بر میزان و درصد جذب فسفر بوسیله LDH (زمان ۱۲۰ min، ۷ = H و دوز جاذب ۵g/L)

است. مدل های سینتیک و ایزوترم برازش یافته به داده های حاصل از آزمایش های جذب در نمودار های ۳ و ۴ ارائه شده است. نتایج نشان داد که جذب فسفر به وسیله LDH بعد از min با ۲۰ min به تعادل رسید. نتایج حاصل از برازش داده های زمان تعادل بر مدل های سینتیکی نشان داد که معادله شبه درجه دوم دارای ضریب همبستگی بالاتر (۹۹۷-=۲) و خطای معیار برآورد کمتری (۳/-=SEE) نسبت به سایر معادله های مطالعه شده بود. حداکثر ظرفیت جذب پیش بینی شده به وسیله مدل شبه درجه دوم (۱۴/۴۳ mg/g) به مقدار واقعی که از آزمایش حاصل شده بود (مادای شبه درجه اول برابر بود. مقدار _م میانگینها با استفاده از آزمون دانکن در سطح احتمال ۵ درصد با استفاده از نرمافزار SPSS انجام شد.

يافتهها

بررسی ساختار LDH مورد مطالعه بوسیله پراشنگار پرتو ایکس (XRD) (شکل ۱) نشاندهنده پیکهای تیز و متقارن بـرای صفحات ۰۰۳ و ۰۰۶ و پیکهـای پهن و نامتقارن برای صفحات ۱۵ و ۱۸۰ بود.



اثر زمان تماس و غلظت اولیه فسفر بر کارایی حذف فسفر: اثر زمان تماس و غلظت اولیه فسفر بر کارایی حذف فسفر بهترتیب در نمودارهای ۱ و ۲ نشان داده شده است. با افزایش زمان تماس، درصد جذب فسفر بهتدریج افزایش یافته و بعد از گذشت ۲ ۲ از شروع فرایند جذب، ۹۰/۶ درصد از فسفر به LDH جذب شد. بیش از ۷۴ درصد فسفر محلول در ۵ دقیقه اول جذب شد. با افزایش غلظت اولیه فسفر از ۲۰ به Lmy میزان جذب فسفر بر حسب میلی گرم بر گرم افزایش، ولی درصد جذب فسفر از محلول کاهش یافت. در غلظت اولیه ۲۰ mg P/L حدود ۹۹/۶ درصد فسفر به وسیله LDH از محلول حذف شد.

سینتیک و ایزوترم جذب فسفر: پارامترهای سینتیکی بدست آمده از برازش مدلهای سینتیکی شبه درجه اول، شبه درجه دوم و پخشیدگی درونذرهای بر دادههای جذب فسفر بهوسیله LDH بههمراه ضرایب تبیین آنها در جدول ۱ خلاصه شده

دوره دهم/ شماره اول/ بیار ۱۳۹۶ فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایر آن ijhe.tums.ac.ir

¹ ۳۷/۰min⁻¹ و مقدار k_{ν} بدست آمده برای معادله شبه درجه در معادل معادل k_{ν} بدست آمد. سرعت اولیه دوم برابر ¹ min⁻¹ min⁻¹ بدست آمد. سرعت اولی جذب پیشبینی شده بوسیله مدل شبه درجه دوم برابر با mg جذب پیش ا ۱/۸۷ g⁻¹ min⁻¹ بود.

جدول ۲ پارامترهای مربوط به مدلهای جذب استفاده شده در این پژوهش را نشان میدهد. نتایج حاصل از بررسی ایزوترم جذب در زمان تماس h ۲ نشان داد که مدل لانگمویر

(۲۹۸۲) ($r^{2}=-r/4$) نسبت به مدل فروندلیچ ($r^{2}=-r/4$) برازش L/ بهتری بر دادهها داشت. ثابت معادله لانگمویر (K_{L}) برابر /R بهتری بر دادهها داشت. ثابت معادله لانگمویر (r^{2} محاسبه شد. حداکثر ظرفیت جذب بوسیله مدل لانگمویر لانگمویر لانگمویر (r^{2} محاسبه شد. حداکثر طرفیت جذب بوسیله مدل بازگمویر بازگروی (r^{2} محاسبه شد. حداکثر طرفیت جذب بوسیله مدل مدل معادله فروندلیچ (r^{2}) به ترتیب برابر (r^{2} محاسبه مدا معادله لانگمویر (r^{2}) و ثابت معادله فروندلیچ (r^{2}) به ترتیب برابر (r^{2}) محاسبه مدل معادله مدل انگروی (r^{2}) محاسبه شد. حداکثر مدل لانگمویر انگروی (r^{2}) مدل لانگمویر بازگروی (r^{2}) مدل لانگمویر از مدل لانگمویر از مدل لانگمویر از مدل انگروی (r^{2}) مدل مدل انگروی (r^{2}) مدل از مدل ا



نمودار ۳– مدلهای سینتیکی برازش یافته بر دادههای جذب فسفر بوسیله LDH

10.



دادههای جذب فسفر بوسیله LDH

شبه درجه اول							
$q_e^{exp} (mg g^{-1})$	$q_e^{\text{calc}} (\text{mg g}^{-1})$		$k_1 (\min^{-1})$	SE	r^r		
14/0	17/10		• /٣V	•/94	•/٩٨		
شبه درجه دوم							
q_e^{exp} (mg g ⁻¹)	H (mg g^{-1} min ⁻¹)	$q_e^{\text{calc}} (\text{mg g}^{-1})$	$k_{\tau} (g mg^{-1} min^{-1})$	SE	r۲		
14/0	١١/٨٧	14/42	•/• ۵Y	۰ /٣	•/९९		
پخشیدگی درونذرهای							
	Ι		$k_i (mg g^{-1} min^{-1/r})$	SE	r۲		
	٧/•٨		•/٩٨	$\gamma/\gamma\lambda$	•/۴٧		

جدول ۱- پارامترهای سینتیک جذب فسفر به وسیله LDH (غلظت g/L LDH و غلظت فسفر ۸۰ mg/L) و و غلظت فسفر

مام ، ومحط دوره دهم/ شماره اوّل/ بهار فصلنامه علمى پژوهشى انجَنّ علمى بهداشت محيط اير ان ijhe.tums.ac.ir

		فروندليچ				ر	لانگموير	
SE	r۲	Ν	KF (mg g⁻)	^d SE	$^{\mathbf{c}}\mathbf{r}^{\mathbf{r}}$	KL (L mg ⁻)	$^{b}q_{max}^{calc} (mg g^{-})$	aq_{max}^{exp} (mg g ⁻)
٣/١٣	۰/٩۶	•/747	17/•7	۲/• ٩	۰/۹۸	•/۴	۳۷/۸۳	۳۸/۴۳
	تاندارد	ین و خطای اس	وسط مدل، ضريب تعي	حاسبه شده ت	ٺر جذب م	ِ آزمایش، مقدار حداک	ار حداکثر جذب فسفات در	d ،c ،b ،a به ترتیب، مقد
ظرفيت جذب ۲۰ :] •	b 	a a ∎	- 110 - 100 - 90		Α Λ/Δ	H4نهایی ـــــــــــــــــــــــــــــــــــ	اندما روند ۱۰۰ م روند ۱۰۰ م می نژد

جدول ۲- پارامترهای ایزوترم جذب فسفر به وسیله LDH (دوز LDH g/L و زمان تماس ۲ h)



نمودار ۶– اثر دوز جاذب بر میزان و درصد جذب فسفر بهوسیله LDH (غلظت فسفر PH = ۷ ۸۰ mg/L و دوز جاذب ۵g/L ۵)

بیشترین کارایی جذب سطحی فسفر بوسیله LDH در ۳=pH در ۳ برابر با ۹۹/۸ درصد بود و با افزایش pH محلول به ۹، کارایی جذب سطحی فسفر به ۸۷ درصد کاهش یافت. با افزایش غلظت LDH از ۲/۵ به ۱/g ۱۰، درصد جذب فسفر افزایش و میزان جذب فسفر بر حسب میلی گرم بر گرم کاهش یافت. بیشترین کارایی حذف فسفر به وسیله LDH در غلظت J/g ۱۰ جاذب برابر با ۹۹/۲ درصد بدست آمد. درصد جذب فسفر (در غلظت ۲۰mg/L درصد به ۱۶/۷ درصد کاهش یافت.

بحث

الگوی پراش نگار پرتو ایکس (XRD): پیکهای ۰۰۳ و ۱۰۶ مربوط به پراش های صفحات قاعدهای (Basal planes) ورقههای شبهبروسایت LDH است. هرچه شدت پیکها بیشتر باشد نشان دهنده درجه بلوری بالاتر LDH است (۱۹). الگوی پراش نگار پرتو ایکس LDH مورد آزمایش با الگوی پراش نگار کانی هیدرو تالکیت مطابقت دارد (۲۰) که بیانگر



LDH افر به وسیله H اولیه بر درصد جذب فسفر به وسیله DH اولیه بر درصد جذب فسفر (مان Min) و دوز جاذب (۵۶/L)



نمودار ۷- اثر قدرت یونی بر درصد جذب فسفر بهوسیله LDH (زمان ۱۲۰ min و دوز جاذب ۵ g/L و

اثر pH، دوز جاذب و قدرت یونی بر کارایی حذف فسفر بهوسیله LDH بهترتیب در نمودارهای ۵، ۶ و ۷ نشان داده شده است.

بلام ولخط فصلنامه علمى پژوهشى انجمن علمى بهداشت محيط اير اُن ijhe.tums.ac.ir

شباهت ساختاري LDH مورد مطالعه با کانی هیدروتالکیت است. Hallajnia و همکاران (۲۰۱۲ و ۲۰۱۳) (۱۰، ۱۱) و Yang و همکاران (۲۰۱۴) (۲۱) نیز الگوی پراش نگار مشابهی را برای LDHs تولید شده از منیزیم و آلومینیم گزارش کردند. اثر زمان تماس بر جذب: شميب نسميتا تنمد اوليه نمودار در نمودار ۱ نشان میدهد که واکنش جذب فسفر، با سرعت زیاد شروع و به کندی ادامه یافته است. در ابتدا بهدلیل فراوانی مکانهای جذبی در دسترس، سرعت جذب فسفر زیاد بوده ولى با نزديك شدن به زمان تعادل، بعلت اشغال شدن مكانهاي جذب بوسيله يونهاي فسفات، سرعت جذب كاهش يافته است (۲). Hallajnia و همکاران (۲۰۱۳) گزارش کردند که بهترتیب حدود ۷۲، ۵۴ و ۵۸ درصد نیترات، فسفات و سولفات در ۵ دقیقه اول به وسیله LDH جذب شد (۱۱). جذب اولیه سريع أنيونها بهوسيله LDHs و سيس كندتر شدن سرعت جذب، بوسيله محققان مختلف گزارش شده است (۱۰، ۱۱، ۲۲). جذب آنیون بهوسیله LDHs شامل دو مرحله کلی است که عبارتند از: جذب سطحی بوسیله سطوح بیرونی LDH و تبادل أنيوني با أنيون بين لايهاي LDH (٢). سرعت اوليه زياد جذب فسفر بهوسيله LDH مربوط به فرايند جذب سطحي و جذب کندتر فسفر مربوط به فرایند تبادل آنیونی است. LDHs دارای بار مثبت زیادی هستند و بعلت برهم کنشهای قوى بين أنيون فسـفات و بارهاى مثبت سطوح LDH، فرايند تبادل آنيوني به کندي انجام مي شود (۲۲).

سینتیک جذب فسفر: معادله شبه درجه دوم نسبت به معادله شبه درجه اول و پخشیدگی درون ذرمای برازش بهتری بر داده های سینتیک جذب فسفر به وسیله LDH داشت. Han و همکاران (۲۰۱۱) نیز نتایج مشابهی را گزارش کردند (۲۳). برازش بهتر مدل شبه درجه دوم بر داده های سینتیک جذب فسفر ممکن است به این علت باشد که جذب شیمیایی از راه ایجاد پیوند کو والانسی، سازو کار کنترل کننده سرعت بوده است (۱۷). مقدار زیاد سرعت جذب اولیه (۱-Hin rig g-۱ min) در مدل شبه درجه دوم، نشان دهنده سرعت زیاد جذب فسفر بوسیله شبه درجه دوم، نشان دهنده سرعت زیاد جذب فسفر بوسیله LDH است. چون محلول حاوی جاذب و جذب شونده تا

رسیدن به زمان مورد نظر تکان داده شدند، انتقال تودهای فسفر به سطح جاذب نمی تواند محدودکننده سرعت جذب باشد. انتشار یون در لایه نازک اطراف ذره نیز به همین دلیل فقط در دقایق اولیه می تواند محدودکننده سرعت باشد (۲۴). از سوی دیگر، فرایند تبادل یونها در سطح عمدتا سریع است (۲۵). بنابراین، مرحله محدودکننده سرعت ممکن است پخشیدگی یونهای فسفر به درون ذرات HDH و جذب در مکانهای بین لایهای باشد. Badreddine و همکاران (۱۹۹۹) نشان دادند که یکی از سازوکارهای جذب فسفر بوسیله LDHs حاوی آنیونهای فسفات با

تاثير غلظت اوليه فسفر بر جذب: با افزايش غلظت فسفر در محلول، شـيب غلظت بعنوان نيروي محركه انتقال يونهاي فسفات از محلول به سطح فاز جامد افزايش يافته و باعث افزايش ميزان جذب مي شود (٢٢). با افزايش غلظت اوليه جذب شونده، نیروی محرکه ناشی از افزایش غلظت بر نیروی بازدارنده جذب غلبه كرده و باعث انتقال بیشــتر آلاینده از فاز مايع به فاز جامد و در نتيجه منجر به افزايش ميزان جذب می شود. در غلظتهای اولیه کم، مکانهای جذب قابل دسترس نسبتا زیاد بوده و فسفر براحتی جذب این مکانها می شود؛ اما در غلظت های اولیه زیاد، مکان های جذب دردسترس بعلت اشباع شدن مکانهای جذب محدود شده و فسفر بیشتری در محلول باقی میماند. در نتیجه درصد جذب فسفر کاهش می یابد (۲). علاوه بر آن، در غلظتهای کم فسفر، نسبت تعداد یونهای فسفات به تعداد مکانهای جذب کوچک بوده و در اين شرايط جذب مستقل از غلظت اوليه مي شود؛ اما با افزايش غلظت فسفر، رقابت يونهاي فسفات براي مكانهاي جذب تشديد شده و منجر به كاهش جذب مي شود (۲، ۹).

جدول ۳ نتایج مقایسه حداکثر ظرفیت جذب فسفر بوسیله جدول ۳ نتایج مقایسه حداکثر ظرفیت جذب فسفر بوسیله LDH مورد استفاده در این مطالعه با LDHs مورد استفاده در سایر بررسیها را نشان میدهد. علت کمتر بودن حداکثر ظرفیت جذب سطحی فسفر بوسیله LDH مورد استفاده در این مطالعه، استفاده از دوز بالاتر جاذب در آزمایشهای

ملام ولحظ دوره دهم/ شماره اوّل/ فصلنامه علمى پژوهشى انجَمن علمى بهداشت محيط اير ان ijhe.tums.ac.ir

منبع	ظرفیت جذب فسفر (mg/g)	рН	دوز جاذب (g/L)	نسبت کاتیون دوظرفیتی به سه ظرفیتی	نوع LDH
(77)	Y 1/Y	٣	• 8	٢	MgAl-NO _r
(۲۷)	۱۳۵	۵	• /۵	٢	CaAl-Cl
(۲۸)	۶.	۵	•/۴	٢	ZnAl-Cl کلسینه شده
(۲۹)	1•4/41	٩	١	٢	CaAl-Cl
این مطالعه	γ / χ	٧	۵	٣	MgAl-Cl

جدول ۳– مقایسه ظرفیت جذب سطحی فسفر بوسیله LDH مورد استفاده در این مطالعه با سایر منابع

جذب است و با افزایش دوز جاذب کارایی جذب افزایش ولی ظرفیت جذب کاهش مییابد (۱۳).

اثر pH بر جذب: افزایش pH محلول باعث کاهش معنی دار كارايي حذف فسفر شد كه نشان ميدهد جذب فسفر بوسيله LDH وابستگی زیادی به pH دارد. Das و همکاران (۲۰۰۶) نشان دادند که با افزایش pH محلول فسفر از ۵ به ۱۰، کارایی حذف فسفر بهوسیله MgAl-LDH از ۹۱/۷ به ۳۹/۰ درصد کاهش یافت (۳۰). نتایج مشابهی بهوسیله Yang و همکاران (۲۰۱۴) نیز گزارش شده است (۲۱). pH محلول با تاثیر بر میزان يونيزه شدن، بارهاي سطحي جاذب، گونهبندي شيميايي (مانند گونههای ، H و برای فسفر) و بار یونها در محلول می تواند سازوكارهاي جذب و ظرفيت جذب را تحت تاثير قرار دهد. معمولا جذب اكسى أنيونها از قبيل فسفات، سلنات، كرومات و آرسنات با افزایش pH کاهش می یابد (۲۲). LDHs دارای میزان قابل توجهی از بارهای وابسته به pH هستند، بطوریکه در محیط قلیایی با از دست دادن ⁺H بار منفی سطوح آن افزایش می یابد و در محیط اسیدی با دریافت ⁺H از محلول، بار مثبت سطوح بیشتر می شود. بار منفی زیاد LDH در pHهای قلیایی با تشدید دفع آنیون های فسفات از سطح جاذب، مانع جذب یونهای فسفات شده و جذب کاهش می یابد. کاهش جذب فسفر ممکن است به رقابت آنیون هیدروکسیل و یا عدم حضور کربنات در pH های پایین مربوط باشد (۳۱). Goh و همکاران (۲۰۱۰) بیان داشتند که در pHهای بالاتر تفکیک یروتونی در آنیونها تشدید شده و بار منفی یونها و نیز بار

منفی سطوح LDH افزایش می یابد. در نتیجه بر اثر افزایش دافعه بین یونهای با بار بیشـتر، جذب آنیون بهوسیله LDHs در pHهای بالا کاهش می یابد (۹). Novillo و همکاران (۲۰۱۴) نشان دادند که جذب فسفر به وسیله Mg-Al-LDH با افزایش pH از ۳ تا ۱۰ کاهش یافت. آنان بیشترین میزان جـذب فسـفر را در PH ۳ بدسـت آوردنـد و دریافتند که با کاهش PH به کمتر از ۶، ساختمان Mg-Al-LDH شروع به تخریب کرده و مقادیری از +Mg²⁺ و Al³⁺ از LDH به داخل محلول آزاد شده و این تخریب در pH کمتر از ۳ به حدی بود که LDH شــکل بلوری خود را از دسـت داده و جذب فسفر در pH کمتر از ۳ کاهش یافت (۲۲). یونهای +Mg²⁺ و Al³⁺ آزاد شده به محلول مي تواند با هيدروكسيل هاي محلول وارد واکنش شـده و هیدروکسـیدهای آلومینیم و منیزیم را تشکیل دهد که بعنـوان منعقدکننده (Coagulants) عمل کرده و در نتيجه ميزان جذب فسفر را افزايش دهد (١٣). بررسي pH نهایی محلول نشان داد که با افزایش pH اولیه محلول از ۳ تــا ۹، pH نهایــی محلول با ایجاد یک حالـت بافری بین ۷ تا ۸/۷۸ باقی ماند که به علت ظرفیت بافری بالای LDH است. LDHs دارای ظرفیت بافری بالایی هستند که ممکن است مانع از تغییرات زیاد جذب آنیون با افزایش pH شود (۸). با این حال، pH نهایی نسبت به pH اولیه در تمام نمونهها بهجز PH افزایش یافت و این افزایش جزئی در pH نهایی ممکن است در نتیجه جذب فسفر باشد که نشاندهنده جذب از طریق تبادل لیگاندی با گروه هیدروکسیل های سطح LDH و یا حل

ما م<u>َ</u> رت فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایر اُن ijhe.tums.ac.ir

شدن بخشی از LDH است (۱۳).

اثر دوز جاذب بر جذب: افزایش درصد جـذب با افزایش مقدار جاذب بهعلت افزاية مكانهاي جذب بوده و كاهش ظرفيت جذب با افزايش مقدار جاذب بيانگر غيريكنواخت بودن مکانهای جذب در سطح جاذب است. در جاذبهای غیریکنواخت مانند LDHs سطح جاذب از جایگاههای دارای انرژی پیوندی متفاوت تشکیل شده است. در یک غلظت مشخص، در مقادیر کم LDH همه جایگاههای جذب در فرایند جذب شرکت کرده و سطح جاذب سریعا از جذب شونده اشباع مي شود اما با افزايش مقدار LDH، فراهمي جایگاههایی با انرژی بالا کاهش می یابد. به عبارت دیگر، ابتدا بخش زیادی از جایگاههای با انرژی پایین تر اشغال می شود که نتیجه آن کاهش انرژی پیوندی و افزایش برگشت پذیری جذب است (۳۲). مطالعات مختلف نشان می دهند که با افزایش مقدار LDH، جـذب أنيون تا حد مشـخصي افزايش يافته و بعد از آن تقريبا ثابت مىماند يا به ميزان كمترى تغيير مىكند (٢، ۳۰، ۳۲، ۳۳). افزایش کارایی جذب فسفر به وسیله LDH با افزایش دوز جاذب بوسیله محققان مختلف گزارش شده است (71, 17)

اثر قدرت یونی بر جذب: ویژگی های الکترولیت زمینه می تواند بر جذب اثر قابل توجهی داشته باشد. قدرت یونی با تاثیر بر فعالیت گونه جذب شونده و ضخامت لایه دوگانه، فرایند جذب را تحت تاثیر قرار می دهد. تغییر در جذب بعنوان تابعی از تغییر در قدرت یونی می تواند در تشخیص نوع جذب مورد استفاده قرار گیرد (۹)؛ عمدتا جذب سطحی درون کرهای (Inner sphere) نسبت به جذب برون کرهای (Outer sphere) کمتر تحت تاثیر قدرت یونی محلول قرار می گیرد (۲۵). با افزایش قدرت یونی، کارایی جذب سطحی فسفر بوسیله LDH کاهش یافت و این نشان می دهد که در فرایند جذب سطحی فسفر بوسیله مطحی درون کرهای مشارکت دارد. Goh و همکاران (۲۰۱۰) با بررسی جذب برومات، کرومات و وانادات بوسیله HDH نشان دادند که جذب برومات و کرومات و وانادات بوسیله HDH نشان

> کر معاده اول بهار ۱۳۹۶ فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایر ان ijhe.tums.ac.ir

تحت تاثیر قدرت یونی محلول قرار گرفت، در حالی که جذب وانادات با افزایش قدرت یونی تغییر نکرد. آنان علت این نتیجه را به سازو کار متفاوت جذب ارتباط دادند؛ به طوری که جذب برون کرهای را برای برومات و کرومات و جذب درون کرهای را در مورد وانادات مطرح کردند (۹). Hosni و همکاران (۲۰۱۰) نیز کاهش مشخص جذب فسفر با افزایش قدرت یونی محلول از ۲۰۰۱، به M ۲۰/۱ کلرید پتاسیم را گزارش کردند؛ در حالی که با افزایش قدرت یونی به M ۲/۱ تغییر چندانی در جذب مشاهده نشد. آنان دو نوع جذب شامل جذب اختصاصی و الکترواستاتیک را در مورد جذب فسفر مطرح نمودند (۲). بر این اساس، حضور یون کلرید به عنوان یک آنیون رقابت کننده در محلول، جذب الکترواستاتیک را تحت تاثیر قرار می دهد (۲).

نتيجه گيري

هیدروکسید دوگانه لایهای بعلت سهولت و ارزانی تولید و کارایی جذب بالا، جاذب مناسبی برای حذف فسفر از محلولهای آبی است. دادههای حاصل از جذب فسفر به وسیله LDH با مدل لانگمویر برازش بهتری نشان داد و حداکثر ظرفیت جذب با استفاده از این مدل، RV/۸۳ mg/g بر آورد شد. فرایند جذب فسفر بوسیله LDH از سرعت بالایی برخوردار بوده و در طی ۲۰ min یادل در جذب حاصل شد. درصد جذب فسفر با افزایش زمان تماس و غلظت LDH افزایش، ولی با افزایش غلظت اولیه فسفر، pH و قدرت یونی کاهش یافت.

تشکر و قدردانی

این مقاله بخشی از رساله دکتری با عنوان "ساخت ترکیبهای هیدروکسید دوگانه لایهای بر پایه بیوچار و هیدروچار برای جذب فسفات و نیترات و امکانسنجی استفاده بهعنوان کود کندرها" است که با حمایت مالی معاونت پژوهش و فناوری دانشگاه تبریز اجرا شده است که بدینوسیله قدردانی می شود.

منابع

- 1. Cordell D, Drangert J-O, White S. The story of phosphorus: global food security and food for thought. Global Environmental Change. 2009;19(2):292-305.
- 2. Hosni K, Srasra E. Evaluation of phosphate removal from water by calcined-LDH synthesized from the dolomite. Colloid Journal. 2010;72(3):423-31.
- 3. Huang H, Zhang P, Zhang Z, Liu J, Xiao J, Gao F. Simultaneous removal of ammonia nitrogen and recovery of phosphate from swine wastewater by struvite electrochemical precipitation and recycling technology. Journal of Cleaner Production. 2016;127:302-10.
- Long F, Gong J-L, Zeng G-M, Chen L, Wang X-Y, Deng J-H, et al. Removal of phosphate from aqueous solution by magnetic Fe–Zr binary oxide. Chemical Engineering Journal. 2011;171(2):448-55.
- 5. Theiss FL, Couperthwaite SJ, Ayoko GA, Frost RL. A review of the removal of anions and oxyanions of the halogen elements from aqueous solution by layered double hydroxides. Journal of Colloid and Interface Science. 2014;417:356-68.

- Mohan D, Sarswat A, Ok YS, Pittman CU. Organic and inorganic contaminants removal from water with biochar, a renewable, low cost and sustainable adsorbent–a critical review. Bioresource Technology. 2014;160:191-202.
- Zümreoglu-Karan B, Ay A. Layered double hydroxides—multifunctional nanomaterials. Chemical Papers. 2012;66(1):1-10.
- Goh KH, Lim TT, Dong Z. Application of layered double hydroxides for removal of oxyanions: a review. Water Research. 2008;42(6):1343-68.
- Goh KH, Lim TT, Banas A, Dong Z. Sorption characteristics and mechanisms of oxyanions and oxyhalides having different molecular properties on Mg/ Al layered double hydroxide nanoparticles. Journal of Hazardous Materials. 2010;179(1):818-27.
- Halajnia A, Oustan S, Najafi N, Khataee A, Lakzian A. The adsorption characteristics of nitrate on Mg–Fe and Mg–Al layered double hydroxides in a simulated soil solution. Applied Clay Science. 2012;70:28-36.
- 11. Halajnia A, Oustan S, Najafi N, Khataee A, Lakzian

دوره دهم/ شماره اول/ بهار ۱۳۹۶ صلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایر اُن ijhe.tums.ac.ir

A. Adsorption–desorption characteristics of nitrate, phosphate and sulfate on Mg–Al layered double hydroxide. Applied Clay Science. 2013;80:305-12.

- 12. Koilraj P, Antonyraj CA, Gupta V, Reddy C, Kannan S. Novel approach for selective phosphate removal using colloidal layered double hydroxide nanosheets and use of residue as fertilizer. Applied Clay Science. 2013;86:111-18.
- 13. Seida Y, Nakano Y. Removal of phosphate by layered double hydroxides containing iron. Water Research. 2002;36(5):1306-12.
- 14. Murphy J, Riley JP. A modified single solution method for the determination of phosphate in natural waters. Analytica Chimica Acta. 1962;27:31-36.
- 15. Zhan T, Zhang Y, Yang Q, Deng H, Xu J, Hou W. Ultrathin layered double hydroxide nanosheets prepared from a water-in-ionic liquid surfactant-free microemulsion for phosphate removal from aquatic systems. Chemical Engineering Journal. 2016;302:459-65.
- Chabani M, Amrane A, Bensmaili A. Kinetic modelling of the adsorption of nitrates by ion exchange resin. Chemical Engineering Journal. 2006;125(2):111-17.
- 17. Hafshejani LD, Hooshmand A, Naseri AA, Mohammadi AS, Abbasi F, Bhatnagar A. Removal of nitrate from aqueous solution by modified sugarcane bagasse biochar. Ecological Engineering. 2016;95:101-11.
- Rao C, Pal D, Takkar P. Mathematical models to study the kinetics of potassium release from swellshrink soils of Central India in relation to their mineralogy. Journal of Plant Nutrition and Soil Science. 1998;161(1):67-72.
- 19. Hosni K, Srasra E. Nitrate adsorption from aqueous solution by MII-Al-CO3 layered double hydroxide. Inorganic Materials. 2008;44(7):742-49.
- 20. Auerbach SM, Carrado KA, Dutta PK. Handbook of Layered Materials. Boca Raton: CRC Press; 2004.
- 21. Yang K, Yan L-G, Yang Y-M, Yu S-J, Shan R-R, Yu H-Q, et al. Adsorptive removal of phosphate by Mg– Al and Zn–Al layered double hydroxides: kinetics, isotherms and mechanisms. Separation and Purification Technology. 2014;124:36-42.
- 22. Novillo C, Guaya D, Avendaño AAP, Armijos C,

Cortina J, Cota I. Evaluation of phosphate removal capacity of Mg/Al layered double hydroxides from aqueous solutions. Fuel. 2014;138:72-79.

- 23. Han Y-U, Lee W-S, Lee C-G, Park S-J, Kim K-W, Kim S-B. Entrapment of Mg-Al layered double hydroxide in calcium alginate beads for phosphate removal from aqueous solution. Desalination and Water Treatment. 2011;36(1-3):178-86.
- 24. Lv L, He J, Wei M, Evans D, Duan X. Uptake of chloride ion from aqueous solution by calcined layered double hydroxides: equilibrium and kinetic studies. Water Research. 2006;40(4):735-43.
- 25. Sparks DL. Environmental Soil Chemistry. New York: Academic Press; 2003.
- 26. Badreddine M, Legrouri A, Barroug A, De Roy A, Besse J. Ion exchange of different phosphate ions into the zinc–aluminium–chloride layered double hydroxide. Materials Letters. 1999;38(6):391-95.
- 27. Xu Y, Dai Y, Zhou J, Xu ZP, Qian G, Lu GM. Removal efficiency of arsenate and phosphate from aqueous solution using layered double hydroxide materials: intercalation vs. precipitation. Journal of Materials Chemistry. 2010;20(22):4684-91.
- Cheng X, Huang X, Wang X, Zhao B, Chen A, Sun D. Phosphate adsorption from sewage sludge filtrate using zinc–aluminum layered double hydroxides. Journal of Hazardous Materials. 2009;169(1):958-64.
- 29. Xu Y, Lv H, Qian G, Zhang J, Zhou JZ. Dual Removal Process of Phosphate on Ca-Layered Double Hydroxide with Substitution of Fe for Al. Journal of Hazardous, Toxic, and Radioactive Waste. 2013;18(4):A4014001-08.
- 30. Das J, Patra B, Baliarsingh N, Parida K. Adsorption of phosphate by layered double hydroxides in aqueous solutions. Applied Clay Science. 2006;32(3):252-60.
- 31. Lv L, He J, Wei M, Evans D, Zhou Z. Treatment of high fluoride concentration water by MgAl-CO 3 layered double hydroxides: Kinetic and equilibrium studies. Water Research. 2007;41(7):1534-42.
- 32. Das DP, Das J, Parida K. Physicochemical characterization and adsorption behavior of calcined Zn/ Al hydrotalcite-like compound (HTLC) towards removal of fluoride from aqueous solution. Journal of

دوره دهم/ شماره اول/ بهار ۱۳۹۶ ۱۳۹۶ دهم/ شماره اول/ بهار ۱۳۹۶ فصلنامه علمى پژوهشى انجَمن علمى بهداشت محيط اير ان ijhe.tums.ac.ir

Colloid and Interface Science. 2003;261(2):213-20.

33. Yang Y, Gao N, Chu W, Zhang Y, Ma Y. Adsorption of perchlorate from aqueous solution by the calcination product of Mg/(Al–Fe) hydrotalcite-like compounds. Journal of Hazardous Materials. 2012;209:318-25.

دوره دهم/ شعاره اوّل/ یوار ۱۳۹۶ فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایر اُن ijhe.tums.ac.ir





Efficiency of Mg-Al layered double hydroxide for phosphorous removal from aqueous solution

Y Azimzadeh*, N Najafi, A Reyhanitabar, Sh Oustan Department of Soil Science, Faculty of Agriculture, Tabriz University, Tabriz, Iran

ARTICLE INFORMATION:

Received:	21 November 2016
Revised:	11 February 2017
Accepted:	15 February 2017
Published:	21 June 2017

Key words: Adsorption, Eutrophication, Kinetics, Layered double hydroxide, Phosphorous

*Corresponding Author:

yaser.azimzadeh@gmail.com

ABSTRACT

Background and Objective: Phosphorus (P), as one of the agricultural, industrial and urban wastewater pollutants, plays an important role in eutrophication of surface waters. Use of cationic sorbents for removal of anions including phosphate from aqueous environments is a well-known and effective method. Meanwhile, layered double hydroxides (LDHs) are known as effective anion exchange sorbents. In this study, the efficiency of Mg-Al layered double hydroxide (Mg-Al-LDH) for P removal from aqueous solutions was investigated.

Methods and Materials: The Mg-Al layered double hydroxide (Mg-Al-LDH) was synthesized by co-precipitation method and used for removing of P from aqueous solutions. The kinetics and equilibrium studies of phosphate adsorption by Mg-Al-LDH were performed using a batch experiment at different contact times, initial phosphate concentrations, pH values, ionic strengths and doses of sorbent.

Results: The results of the kinetics experiments showed that sorption of P with LDH reached equilibrium after 30 min. The highest correlation coefficient was obtained for the pseudo-second order model, indicated that chemical sorption controlled the rate of phosphate sorption by LDH. The results showed that the sorption experiments data were in good agreement with Langmuir model and the maximum adsorption capacity predicted by this model was 37.83 mg P/g LDH.

Conclusion: The current study revealed that P adsorption by LDH was increased by increasing contact time and concentration of LDH, but decreased by increasing initial concentration of P, pH and ionic strength. The optimum conditions for phosphate anion adsorption by Mg-Al-LDH were determined as P initial concentration of 20 mg/L, contact time of 120 min, pH of 3.0, sorbent dose of 10 g/L and ionic strength of 0.03 mol/L.

Please cite this article as: Azimzadeh Y, Najafi N, Reyhanitabar A, Oustan S. Efficiency of Mg-Al layered double hydroxide for phosphorous removal from aqueous solution. Iranian Journal of Health and Environment. 2017;10(1):125-38.