



Comparison the efficiency of alum and commercial poly aluminum chloride for fluoride removal from water

R. R. Kalantary¹, S. Jorfi², A. Esrafili³, A. Ameri⁴, R. Baradar Niazi⁵, A. Ameli⁶

Received: 2009/6/29

Revised: 2009/10/20

Accepted: 2009/12/8

Abstract

Background and aims: Fluoride is released to environment naturally and via Industrial effluents. According to concentration of fluoride in potable water and its total uptake rate, can be beneficial or harmful. Due to simplicity of operation, easy access to the coagulants of alum and poly aluminum chloride and low cost, coagulation was selected for fluoride removal from water. The purpose of this study was to comparison the efficiency of alum and commercial poly aluminum chloride for fluoride removal from water.

Methods: Lab scale experiments were carried out via Jar apparatus. Variations of this study, including pH, coagulant dosage and fluoride concentration were experimented in defined conditions.

Results: Results indicate that optimum pH for both of coagulants was equal to 4. Concentrations of alum and poly Aluminum chloride for fluoride removal were 240 and 160 mg/L respectively and removal efficiency in optimum pH and dosage of coagulant were 84.2 and 84 % respectively.

Conclusion: According to data obtained from this study, it can be stated that coagulation is a suitable method for removal of fluoride from water and poly Aluminum chloride is compatible with alum.

Keywords: fluoride, coagulation, alum, poly aluminum chloride

-
1. **(Corresponding author)** Assistant Professor, Environment Department, School of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran, Email: roshanak_rezaeikalantari@yahoo.com
 2. Ph.D student of Environmental Health. Department of Environmental Health, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran.
 3. Ph.D student of Analysis Chemistry.
 4. Assistant Prof., Environment Department, School of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
 - 5&6. Environmental health expert, Environment Department, School of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran.

مقایسه کارایی منعقد کننده های پلی آلمینیوم کلراید تجاری و آلوم در حذف فلوراید از آب

روشنک رضایی کلانتری^۱، سهند جرفی^۲، علی اسرافیلی^۳، احمد عامری^۴، رقیه برادر نیازی^۵، آریان عاملی^۶

تاریخ پذیرش: ۸۸/۹/۲۸ تاریخ دریافت: ۸۸/۵/۷

چکیده

زمینه و هدف: فلوراید به طور طبیعی و همچنین از طریق پساب صنایع مختلف به محیط زیست منتشر می شوند. فلوراید موجود در آب آشامیدنی با توجه به غلظت آن و میزان کل جذب شده می تواند مفید یا مضر باشد. به دلیل سهولت اجرا، دسترسی آسان به منعقد کننده های آلوم و پلی آلمینیوم و ارزانی آنها، روش انعقاد به عنوان روش منتخب برای حذف فلوراید از آب مدنظر قرار گرفت. هدف از این مطالعه مقایسه کارایی منعقد کننده های پلی آلمینیوم کلراید تجاری و آلوم در حذف فلوراید از آب می باشد.

مواد و روش ها: آزمایشات در مقیاس آزمایشگاهی و به وسیله دستگاه جار انجام شد. متغیرهای این پژوهش شامل H_p، دماز منعقد کننده مصرفی و غلظت فلوراید در شرایط تعريف شده مورد بررسی قرار گرفتند.

یافته ها: نتایج آزمایشات نشان می دهد که H_p بهینه حذف فلوراید برای هر دو منعقد کننده برابر ۴ بود. غلظت آلوم و پلی آلمینیوم کلراید جهت حذف فلوراید به ترتیب ۲۴۰ و ۱۶۰ میلیگرم بر لیتر و بازده حذف برای هر دو منعقد کننده در H_p و دماز منعقد کننده بهینه به ترتیب ۸۴/۲ و ۸۴/۴ درصد بود.

نتیجه گیری: با توجه به نتایج حاصل از این مطالعه می توان اظهار کرد که روش انعقاد روش مناسبی برای حذف فلوراید از آب می باشد و پلی آلمینیوم تجاری در حذف فلوراید قابل رقابت با آلوم می باشد.

کلیدواژه ها: فلوراید - انعقاد - آلوم - پلی آلمینیوم کلراید

مقدمه

ساخت نیمه رساناها، نیروگاه های زغال سنگی برق، تولید شیشه و سرامیک، پالایش اورانیوم، صنایع الکترو شیمیایی، تولید گرافیت های دارای خلوص بسیار بالا، پرداخت فلات، ساخت لاستیک و کود سازی، الکترولیز آلومینا و غیره مورد استفاده قرار می گیرد و از طریق پساب این صنایع به محیط زیست منتشر می شوند. تخلیه این فاضلابها به آبهای سطحی منجر

فلوراید یک عنصر طبیعی در میان مواد معدنی، رسوبات رئوشاپتیمیایی و سیستمهای طبیعی آب است که از طریق آب آشامیدنی یا تغذیه از گیاهان وارد زنجیره غذایی بدن می شود [۱]. فلوراید و ترکیبات آن در دسترس بوده و به شکل گستردگی در صنایعی نظری

۱- (نویسنده مسئول) عضو هیئت علمی دانشکده بهداشت، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران.

roshanak_rezaeikalantari@yahoo.com

۲- دانشجوی دکتری بهداشت محیط - دانشگاه تربیت مدرس

۳- دانشجوی دکتری شیمی تجزیه دانشگاه تربیت مدرس

۴- عضو هیئت علمی دانشکده بهداشت - دانشگاه علوم پزشکی ایران

۵- دانش آموخته بهداشت محیط - دانشگاه علوم پزشکی ایران

۶- دانش آموخته بهداشت محیط - دانشگاه علوم پزشکی ایران



فلوئور جذب شده در اثر ترسیب از آب جدا می شود. آلوم یکی از اولین مواد شیمیایی مطالعه شده برای حذف فلوراید از منابع آب آشامیدنی بوده به طور یکه در حال حاضر نیز هم به صورت تنها و هم به صورت ترکیبی با سایر مواد شیمیایی به عنوان عامل حذف فلوراید مورد استفاده قرار می گیرد [۱۰]. در مطالعه ای که توسط شیهابودهین و همکاران (۲۰۰۶) انجام شد، تأثیر H^+ و غلظت اولیه فلوراید در حذف فلوراید به وسیله اکسید منگنز پوشیده شده با آلمینا مورد بررسی قرار گرفت. pH بهینه حذف فلوراید در این مطالعه در محدوده ۴-۷ تعیین شد و اکسید منگنز پوشیده شده با آلمینا توانست نتایج قابل قبولی به همراه داشته باشد [۱۱]. در مطالعه دیگری توسط ورکو و همکاران (۲۰۰۷) حذف فلوراید توسط بقایای زائد کارخانجات ساخت آلام مورد بررسی قرار گرفت. بیشترین مقدار فلوراید حذف شده به میزان ۸۵ درصد در دزاز جاذب L/g در غلظت فلوراید اولیه L/g و $10 L/g$ محدوده H^+ معادل $3-8$ به دست آمد [۱۲].

کارایی آلوم در حذف فلوراید به روش انعقاد به وسیله هو و همکاران (۲۰۰۳) مورد مطالعه قرار گرفته است. آنها نقش نسبت مولی هیدروکسید به یونهای فلوراید را به عنوان متغیر اصلی ارزیابی نمودند. نتایج حاکی از حذف 100 درصد فلوراید به هنگامی بود که نسبت مولی یون های OH^- و یون های فلوراید به یون های Al^{3+} نزدیک 3 بود. این امر قابلیت ترسیب همزمان یونهای فلوراید و هیدروکسید را آشکار می سازد [۱۳]. بنابر تحقیق انجام شده به وسیله اسماعیلی و همکاران استفاده از آلام در فلوئور زدایی آبهای که قلیائیت آن ها بالاست، مطلوب می باشد زیرا که هر چه مقدار قلیائیت آب بیشتر باشد مقدار تشکیل ماده $Al(OH)_3$ نیز بیشتر خواهد بود و آن نیز بر روی حذف فلوراید تأثیر می گذارد [۱۴]. حذف فلوراید به وسیله آلوم توسط کمپ (Kemp) و اسکات (Scott) نیز مورد بررسی قرار گرفت. در این روش با استفاده از غلظت های بالاتر از 250 میلی گرم بر لیتر آلام می توان غلظت فلوئور را از $3/6$ به $1/5 mg/L$ کاهش داد [۱۵]. گواناتیو زنگ و همکاران (۲۰۰۵) مطالعه ای بر روی حذف فلوراید از آب توسط راکتور کواگولاسیون غشایی (MCR: Membrane Coagulation Reactor) انجام

به آلدگی آبهای زیرزمینی می شود. با توجه به آلدگی آبهای زیرزمینی [۱-۳] به ویژه در مناطق صنعتی ذکر شده، ضرورت توجه به حذف این آلاینده از آب های فوق الذکر حائز اهمیت می باشد.

فلوراید موجود در آب آشامیدنی با توجه به غلظت آن و میزان کل جذب شده می تواند مفید یا مضر باشد و به طور خاص وقتی که در محدوده مجاز 1 mg/L موجود باشد برای کودکان زیر 8 سال مفید است چرا که مانع پوسیدگی دندان می شود. آثار فیزیولوژیکی جذب مازاد فلوراید بر روی بدن انسان به شکل گستردگی مورد مطالعه قرار گرفته است [۴]. حد استاندارد WHO برای فلوراید $1/5 mg/L$ است [۵]. غلظت های بالاتر متابولیسم عناصری مانند کلسیم و پتاسیم را در بدن تحت تأثیر قرار می دهد. متداول ترین علائم مواجهه مزمن با فلوراید شامل فلوروزیس دندانی و فلوروزیس اسکلتی است که می تواند منجر به تغییر شکل دائم استخوان ها و مفاصل شود. سایر اثرات مواجهه با فلوراید مازاد از طریق آب آشامیدنی شامل لکه دار شدن دندانها، آسیب به غدد درون ریز، تیروئید، کبد، نرم شدن استخوان ها، استخوانی شدن تاندون ها و رباط ها و کاهش فضای داخلی بین مهره های ستون فقرات و مخصوصاً اولین مهره گردن می باشد. این عوارض در مناطق گرمسیری که مردم مقادیر زیادی آب مصرف می کنند و غلظت فلوراید در اثر تبخیر افزایش می یابد تشیدی می گردد (استاندارد فلوراید در مناطق سردسیر $2/4 mg/L$ است) [۵, ۶]. مشکلات فلوراید در جوامع روسیایی و شهرهای کوچک و به ویژه در کشورهای جهان سوم حاد تر است [۷].

تاكنون روش های زيادي نظير ترسیب شیمیایی به وسیله نمک های کلسیم و آلمینیوم، جذب به وسیله آلمینیای فعال، آلام، زغال چوب، خاکستر، استفاده از گرانول تری کلسیم فسفات، رزین های تبادل یونی، فرایندهای غشایی نظير نانوفیلتراسيون و روش های حذف فيزيکي (اسمز معکوس و الکترودياليز) و الکتروکواگلاسيون [۹, ۸] برای حذف فلوراید مورد بررسی قرار گرفته است. مايلورو بوسکی در سال ۱۹۷۴ اظهار نمودند که حذف فلوراید در اثر جذب فلوئور بر روی $Al(OH)_3$ اتفاق می افتد و هیدروکسید آلمینیوم و

استفاده شد. در هر مرحله قبل از قرار دادن نمونه هادر دستگاه اسپکتروفوتومتر، با محلول رفرنس جذب صفر را تنظیم، سپس جذب نمونه ها در طول موج ۵۷۰ نانومتر اندازه گیری می شد [۱۹].

تعیین H_p بهینه

کلیه آزمایشات در مقیاس آزمایشگاهی و به وسیله دستگاه آزمایش جار انجام شد. با توجه به اهمیت H_p در راندمان حذف فلوراید، در این قسمت ۶ بشر جارتست با آب شهر و سپس با آب دوبار تقطیر کاملاً شسته شد. با استفاده از محلول ذخیره (استوک) 100 mg/L ، محلول های 5 mg/L فلوراید تهیه و H_p محلول 100 mg/L ، ترتیب بر روی مقادیر $2, 4, 6, 8, 10, 12$ و 14 تنظیم گردید. به منظور تعیین دماز� ضروری منعقد کننده از آزمایشات اولیه (Pre-Test) استفاده شد و محدوده غلظتی مناسب تعیین گردید. از محلول استوک 20 g/L آلوم که قابل تهیه شده بود، به هر بشر اضافه گردید به طوری که غلظت آلوم در هر محلول به میزان 200 mg/L حاصل شود. بعد از انجام آزمایش جارتست (30 ثانیه) با سرعت 200 دور در دقیقه، $15-20$ دقیقه با سرعت 40 دور در دقیقه و 30 دقیقه ته نشینی) از هر یک از بشرها نمونه برداشته شد و بعد از صاف کردن با صافی $/45$. میکرون، جذب نمونه ها با دستگاه اسپکتروفوتومتری خوانده شد. در آزمایش با پلی آلومینیوم کلراید نیز همین مراحل تکرار شد، اما از محلول استوک 5 g/L پلی آلومینیوم کلراید، به میزانی به هر بشر اضافه شد تا غلظت نهایی 140 mg/L به دست آید.

تعیین دماز� بهینه منعقد کننده

بعد از مشخص شدن H_p بهینه، دماز� بهینه منعقد کننده آلوم با استفاده از مقادیر مشخص غلظت فلوراید تعیین گردید. بدین ترتیب بعد از تنظیم H_p بهینه به 6 بشر جار تست حاوی غلظت 5 mg/L فلوراید، غلظت های مختلف $200, 240, 300, 400, 1000, 1600$ و 2000 mg/L آلوم اضافه شد. بعد از انجام آزمایش جارتست طبق مرحله قبل جذب نمونه ها قرائت شده و بهترین دماز� منعقد کننده براساس محلولی که بالاترین راندمان حذف فلوراید را داشته است تعیین گردید. برای تعیین دماز� بهینه منعقد کننده پلی آلومینیوم

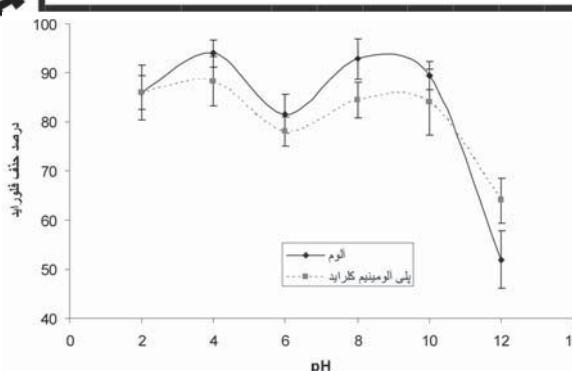
دادند. آنها در مقیاس آزمایشگاهی با تزریق دماز� مناسب مواد شیمیایی به MCR ، غلظت فلوراید را از 4 mg/L در آب خام به کمتر از 1 mg/L رساندند و غلظت Al باقی مانده کمتر از 5 mg/L بود. در این آزمایشات نشان دادند که برای حذف 1 g فلوراید تقریباً 50 g آلوم مصرف می شود. [۱۶]. کلاب و استولتن برگ نشان دادند که فلوراید به وسیله کواگولاسیون با آلوم حذف می شود و H_p بهینه برای این کار $5/5-7$ می باشد. این دونفر در سال ۱۹۵۸ نشان دادند که استفاده از مقدار 250 mg/L آلوم میزان فلوراید را ز $3/6\text{ mg/L}$ به $1/4\text{ mg/L}$ کاهش داده است [۱۷]. موهومکاران (2003) در تحقیقی بر روی حذف فلوراید با استفاده از پلی آلومینیوم کلراید نشان دادند که این ماده به عنوان منعقد کننده تا حدود $75-85\%$ می تواند فلوراید را حذف نماید. میزان حذف به غلظت ورودی فلوراید بستگی داشت [۱۸].

با نگرش به مطالعات انجام شده توسط سایر محققان و بررسی های صورت گرفته کارایی دو منعقد کننده آلوم در مقیاس آزمایشگاهی و پلی آلومینیوم کلراید در حذف فلوراید در مقیاس آزمایشگاهی در این مطالعه مورد بررسی قرار گرفت. هدف از این مطالعه مقایسه بازده حذف فلوراید به وسیله آلوم و پلی آلومینیوم کلراید صنعتی و تعیین شرایط بهینه عوامل مؤثر در بهره برداری، شامل H_p و دماز� ماده منعقد کننده است.

روش بورسی

مواد و معرفه ها

منعقد کننده آلوم با خلوص آزمایشگاهی (Grade Analytical) از شرکت مرک و پلی آلومینیوم کلراید در مقیاس صنعتی از شرکت طرح و توسعه صادرات تهیه گردید. درجه خلوص پلی آلومینیوم کلراید صنعتی 30 درصد بود. از فلوراید سدیم (NaF) برای تهیه محلول استوک فلوراید 1 mg/mL استفاده گردید. در این مطالعه معرف اسپندزار به نسبت یک به پنج ریق و سیس مورد استفاده قرار گرفت. محلول رفرنس مورد نیاز با اضافه کردن یک میلی لیتر معرف اسپندزار و 1 mL معرف اسید زایر کونیل به 10 mL میلی لیتر از آب دوبار تقطیر ساخته شد. از محلول رفرنس برای صفر کردن دستگاه



شکل ۱: تغییرات بازده حذف فلوراید در pH های متغیر و غلظت منعقد کننده و فلوراید ثابت

در pH متعادل ۴ و به میزان ۹۴ درصد و کمترین درصد حذف در pH متعادل ۱۲ و به میزان ۵۲ درصد بوده است. بیشترین و کمترین راندمان حذف فلوراید توسط پلی آلومینیوم کلراید به ترتیب در pH های متعادل ۴ و ۱۲ و به میزان ۲/۸۸ و ۶۴ درصد بوده است. pH بهینه حاصل از این مرحله برای هر دو منعقد کننده برابر ۴ بوده است.

دزاچ بهینه ماده منعقد کننده در استفاده از آلوم و پلی آلومینیوم کلرید در مرحله دوم و بنابر نتایج مرحله اول دزاچ بهینه ماده منعقد کننده مصرفی در pH متعادل ۴ تعیین شد. غلظت اولیه فلوراید در همه نمونه ها ۵ mg/L بود. بیشترین بازده حذف معادل ۲/۸۴ درصد مربوط به غلظت آلوم ۷۰ mg/L بود. دزاچ بهینه پلی آلومینیوم کلراید برابر ۱۶۰ mg/L با بازده حذف ۴/۸۱ درصد بود. نتایج مرحله تعیین دزاچ بهینه آلوم و پلی آلومینیوم کلراید در شکل ۲ نشان داده شده است.

تأثیر غلظت منعقد کننده بر عملکرد انعقاد در آخرين مرحله مطالعات اثر دزاچ بهینه و pH بهینه بر غلظت های مختلف فلوراید مورد بررسی قرار گرفت. غلظت ۳ mg/L فلوراید با بازده حذف ۹۳/۲ درصد به هنگام کاربرد آلوم دارای بیشترین بازده حذف بوده است. همچنانیم به هنگام استفاده از پلی آلومینیوم کلراید به عنوان منعقد کننده، بیشترین بازده حذف ۶/۹۰ درصد مربوط به غلظت ۷ mg/L فلوراید بود. نتایج این بخش از مطالعات در شکل ۳ نشان داده شده است. شکل ۳ نشان می دهد که بازده حذف فلوراید به هنگام کاربرد آلوم به عنوان منعقد کننده، به موازات افزایش

کلراید مراحل همانند مرحله قبل برای آلوم تکرار شد و لی غلظت پلی آلومینیوم کلراید اضافه شده به هر یک از بشرها ۱۶۰، ۱۴۰، ۱۰۰، ۷۵، ۵۰ و ۲۵ mg/L بود.

تأثیر غلظت منعقد کننده بر عملکرد انعقاد

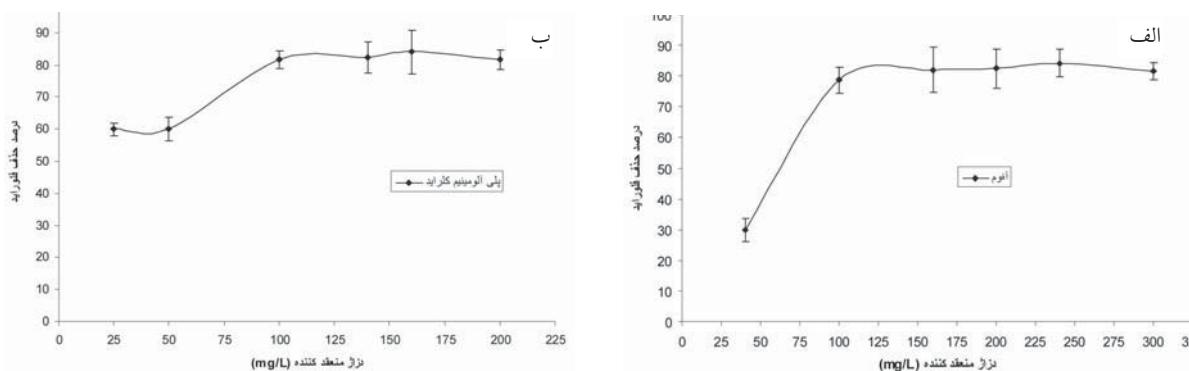
به منظور بررسی تأثیر ماده منعقد کننده در غلظت های مختلف فلوراید (۱، ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۰ mg/L) در ۶ بشر جارتست ریخته شدو پس از تنظیم pH بهینه و دزاچ بهینه منعقد کننده که از مراحل قبلی بدست آمده آزمایش جارتست انجام شد. پس از قرائت جذب نمونه هاراندمان حذف فلوراید برای هر یک از منعقد کننده ها در غلظت های مختلف تعیین گردید.

روش های آزمایشگاهی

pH های لازم پس از آماده سازی محلول های موردنظر با استفاده از اسید سولفوریک و سود، توسط دستگاه pH متر تنظیم شد. برای تهییه منحنی کالیبراسیون غلظت های صفر تا ۱/۴ mg/L فلوراید با استفاده از محلول استوک (یک L اسید ۱۰۰ mg/L فلوراید تهییه گردید. بعد از اضافه کردن معرف ها (یک mL زیرکونیل و یک mL معرف اسپیندر) جذب محلول های استاندارد تهییه شده در طول موج ۵۷۰ نانومتر خوانده شد. براساس جذب های خوانده شده و غلظت های معلوم، منحنی استاندارد رسم شد. از این منحنی بدست آوردن غلظت نمونه های مجھول با جذب های خوانده شده از دستگاه اسپکتروفتومتری CECIL مدل ۷۴۰۰ ساخت کشور انگلستان استفاده گردیده است. همه داده های آزمایشگاهی ارائه شده در طول مطالعات بر مبنای میانگین حسابی، با حداقل ۳ بار تکرار آزمایش بوده که پس از حذف داده های مخدوش و غلط ثبت می گردیده اند. در مجموع ۱۰۸ نمونه در مراحل مختلف مطالعه برداشت شد.

یافته ها

pH بهینه حذف فلوراید با استفاده از آلوم و پلی آلومینیوم کلراید نتایج این مرحله از مطالعات در شکل ۱ نشان داده شده است. بیشترین درصد حذف فلوراید توسط آلوم



شکل ۲: بازده حذف فلوراید در غلظت‌های مختلف (الف) آلوم و (ب) پلی آلمینیوم کلراید در pH برابر ۴

از دلایل مصرف بیشتر پلی آلمینیوم کلراید این امر بوده است. در مطالعاتی توسط گوانتیو زنگ [۱۶] و کلاب استونتن برگ [۱۷] حذف فلوراید توسط آلوم به روش انعقاد مورد بررسی گرفت. بهینه به ترتیب در محدوده ۰-۷/۵ و ۷-۶/۵ بوده است. با توجه به نتایج حاصله می‌توان pH در محدوده اسیدی را به عنوان pH مناسب حذف انتخاب نمود. اگر چنانچه pH بهینه انتخاب گردد میزان مواد منعقد کننده کمتری مصرف شده و متعاقب آن لجن کمتری نیز تولید می‌گردد در نتیجه از نظر اقتصادی مناسبتر خواهد بود. در مورد پلی آلمینیوم کلراید نیز حذف مناسبی در pH معادل ۸ صورت گرفته است، اما حداقل حذف به عنوان مینا قرار داده شد و بر این اساس ادامه آزمایشات بر اساس pH برابر ۴ انجام پذیرفت. در سایر تحقیقات انجام شده نیز pH بهینه، حذف در محدوده خنثی تا اسیدی برای آلوم رخ داده است و در تحقیقی که توسط مو و همکاران [۲۰۰/۳] برای حذف فلوراید توسط پلی آلمینیوم کلراید انجام شد، محدوده خاصی برای pH توصیه نشده است [۱۸].

شکل ۲ نشان می‌دهد که مؤثرترین دماز آلوم در حذف فلوراید مقدار ۲۴۰ mg/L و راندمان حذف در استفاده از مقدار مذکور آلوم ۸۴/۲ درصد بوده است. مقدار آلوم حاصله بیش از مقدار پیشنهادی گوانتیو زنگ و همکاران است که از فرایند انعقاد به همراه راکتور غشایی استفاده نمودند. مقدار پیشنهادی آنان ۵۰ گرم آلوم به ازای هر یک گرم حذف فلوراید بوده است. اما با توجه به اینکه در مطالعه گوانتیو زنگ و همکاران از فرایند حذف غشایی نیز استفاده شده [۱۶]

غلظت فلوراید از ۳ mg/L به بالا کاهش می‌یابد. اما این امر در پلی آلمینیوم کلراید مصدق نداشته و افزایش غلظت فلوراید توازن بانوساناتی در بازده حذف بوده ولی روند کلی آن نشان می‌دهد که به موازات افزایش غلظت فلوراید تا غلظت ۷ mg/L، بازده حذف افزایش یافته است.

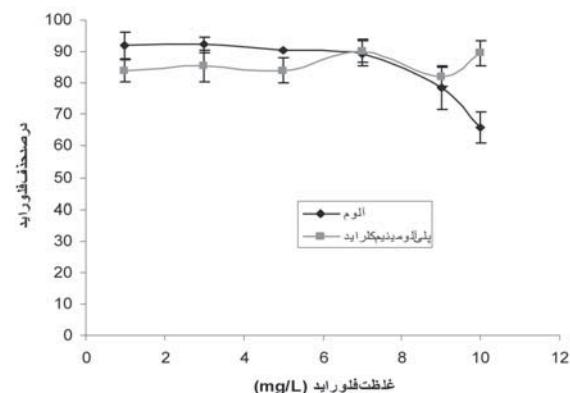
بحث و نتیجه گیری

با توجه به نتایج مرحله اول مطالعه، pH معادل ۴ به عنوان pH بهینه حذف فلوراید تعیین شد زیرا بیشترین حذف در pH مذکور مشاهده شد. با توجه به حد مجاز فلوراید در آب مناطق مختلف خصوصاً مناطق معتدل و سردسیر و با توجه به مقادیر باقیمانده فلوراید در pH های ۶ و ۸، برای حذف فلوراید می‌توان در محدوده pH های معادل ۶-۸ نیز عمل نمود. با توجه pH انجام واکنش هامی توان نتیجه گیری کرد که مکانیزم اصلی انعقاد در این فرایند مکانیزم جذب سطحی و خنثی سازی با رو تشكیل یون های فلزی آلمینیوم مثبت بوده است. یکی از دلایل مصرف کمتر آلوم نسبت به پلی آلمینیوم کلراید می‌تواند درصد بیشتر سهم مکانیزم جذب سطحی و خنثی سازی بار برای آلوم در مقایسه با پلی آلمینیوم کلراید باشد. با توجه به اینکه پلی آلمینیوم کلراید در pH های بالاتر بازده حذف بیشتری داشت، می‌توان نتیجه گیری کرد که مکانیزم انعقاد جارویی نیز در کاربرد پلی آلمینیک کلراید نقش داشته است. به دلیل مصرف بیشتر مقدار ماده منعقد کننده در مکانیزم انعقاد جارویی نسبت به جذب سطحی و خنثی سازی بار می‌توان اظهار کرد که یکی

محدوده مصرفی در تحقیق اسماعیلی است [۱۴]. فلوراید با قیمانده حاصل از فرایند انعقاد توسط پلی آلمینیوم کلراید نشان می دهد که غلظت 160 mg/L ماده منعقد کننده مذکور برای حذف فلوراید در محدوده غلظتی $5\text{ تا }10\text{ mg/L}$ مناسب است. نتایج این مرحله از آزمایشات نشان می دهد که دزاز پلی آلمینیوم کلراید مصرفی به غلظت اولیه فلوراید بستگی دارد که با نظریه مو و همکاران (۲۰۰۳) هماهنگ است، اما راندمان حذف بیش از محدوده حذف توسط مو و همکاران بوده است [۱۸]. بیشترین راندمان حذف مربوط به غلظت اولیه $7\text{ و }10\text{ mg/L}$ فلوراید بوده است.

به طور کلی تعیین دزاز بهینه ماده منعقد کننده دارای اهمیت بهداشتی و اقتصادی می باشد. از یک سو استفاده و خریداری مواد شیمیایی هزینه بربوده و از سویی دیگر کاربرد مزاد آلوم، ضمن مصرف قلیائیت سختی دائمی آب را افزایش داده که به نوبه کیفیت شیمیایی آب را تحت تاثیر قرار می دهد. همچنین مطالعات بهداشتی رابطه مستقیم آلمینیوم با آرزاپر را در انسان تایید کرده است. برای حذف هر گرم فلوراید در محدوده غلظتی $5\text{ تا }10\text{ mg/L}$ مقدار $29\text{ تا }53\text{ گرم}$ آلوم و $19\text{ تا }38\text{ گرم}$ پلی آلمینیوم کلراید 30 درصد مورد نیاز است. راندمان حذف فلوراید توسط آلوم و پلی آلمینیوم کلراید در غلظت های مختلف فلوراید به غلظت اولیه فلوراید بستگی داشته و به ترتیب در محدوده $90\text{ تا }93\text{ و }78\text{ درصد}$ بود.

مطالعات گسترده ای با استفاده از روش های گوناگون برای حذف فلوراید از محیط آبی انجام شده است. مجنگار و همکاران در تحقیقی از روش جذب به وسیله زغال فعال برای حذف فلوراید از آب استفاده کردند. آنها موفق به کاهش فلوراید اولیه از غلظت معادل 79 درصد بوده است که تقریباً با در نظر گرفتن غلظت ورودی قابل مقایسه با یافته های این تحقیق می باشد [۲۰]. روش های جذب الکتروشیمیایی نیز دارای کارایی قابل قبولی در حذف فلوراید ار آب بوده اند. چن لو یانگ و همکاران از یک راکتور الکتروشیمیایی بالکترودهای آندی آلمینیومی برای تولید جاذب فلوراید در محیط مایع استفاده کردند.



شکل ۳: تغییرات بازده حذف فلوراید در دزاز بهینه منعقد کننده و pH بهینه در برابر غلظت های فلوراید متغیر

وفرایند مذکور در مقیاس با فرایند انعقاد به تنها یک فرایند گران است، در تحقیق حاضر مقدار فلوراید با قیمانده در فرایند انعقاد رمحدوده قابل قبولی است [۱]، دزاز حاصله از نتایج این آزمایش را می توان دزاز مناسب و قابل قبولی محسوب نمود، ضمن اینکه مقدار پیشنهادی از مقدار پیشنهادی توسط کلاب و استونتن برگ کمتر است. با توجه به شکل ۲ و ۳ مقدار حذف و مقدار آلوم مورد نیاز به غلظت اولیه فلوراید بستگی دارد. در محدوده غلظت اولیه $5\text{ تا }10\text{ mg/L}$ میزان آلوم مصرفی به ازای هر گرم فلوراید در محدوده $29\text{ تا }53\text{ گرم}$ بوده است که در محدوده پیشنهادی گواتیوزنگ و همکاران است [۱۷].

نتایج آزمایشات نشان می دهد که در استفاده از دزاز $100\text{ میلی گرم بر لیتر آلوم}$ غلظت فلوراید با قیمانده در آب در حدود $10/6\text{ mg/L}$ است که در محدوده قابل قبول برای مناطق سردسیر است [۱]. با توجه به استانداردهای EPA این مقدار آلوم می تواند برای تأمین غلظت فلوراید به میزان کمتر از حد اکثر غلظت مجاز نیز مناسب باشد. مصرف مقدار کمتر ماده منعقد کننده منجر به تولید لجن کمتری شده و مشکلات ناشی از دفع لجن کمتر خواهد شد و این امر از چند جنبه به صرفه است:

۱- هزینه مواد منعقد کننده کاهش می یابد.

۲- لجن کمتری تولید می شود.

۳- مشکلات ناشی از دفع لجن به لحاظ ذخیره سازی، حمل و نقل و هزینه های مربوط به آن کاهش می یابد.

دزاز آلوم مصرفی در این مطالعه بسیار کمتر از

Nicolasb S., Elmidaoui A. Fluoride removal from brackish water by electrodialysis. Desalination, 2001, 133(3): 215-223.

7- Tang Y., Guan X., Su T., Gao N., Wang J. Fluoride adsorption onto activated alumina: Modeling the effects of pH and some competing ions. *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, 2009, 337(1-3): 33-38.

8- Viswanathan N., Sairam S., Meenakshi S. Development of multifunctional chitosan beads for fluoride removal. *J. Hazard. Mater.*, 2009, 332(2): 280-290.

9- Qianhai Z., Chen X., Wei L., Chen G. Combined electrocoagulation and electroflotation for removal of fluoride from drinking water. *Journal of Hazardous Materials*, 2008, 159(2-3): 452-457.

10- Benefield L.D.J.F.Judkins and B.L. weinand frocess chemistry for water and waste water treatment frentice Hall and Englwood cliffs, 1982.

11- Shihabudheen M., Maliyekkal, Kumar S., Ligy P. Manganese-oxide-coated alumina: A promising sorbent for defluoridation of water. *Water Research*, 2006, 40(19): 3497 - 3506.

12- Worku N., Feleke Z., Chandravanshi B. Removal of excess fluoride from water using waste residue from alum manufacturing process. *Journal of Hazardous Materials*, 2007, 147(3): 954-963.

13- Hu C., Lo S., Kuan W. Effects of the molar ratio of hydroxide and fluoride to Al(III) on fluoride removal by coagulation and electrocoagulation. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2005, 283(1):472-476.

14- Esmaeili L (2003) Hazf Floeid az Ab-e-Ashamidani tedadi az Roostahaye Tabaeae Shahre Poldasht ba raveshe Tarsib Aloum. 6th International Congress on Environmental Health.

15- Montgomery J. Industrial wastewater treatment technology, John wiley and sons 1985

16 - Zhang G, Gao Y., Zhang Y., Gu P. Removal of fluoride from drinking water by a membrane coagulation reactor (MCR). *Desalination*, 2005, 177(1-3): 143-155.

17- Tripathy, S.S. and Raichur, A.M. Abatement of fluoride from water using manganese dioxide-coated activated alumina. *Journal of Hazardous Materials*, 2008 153: 1043-1051

18- Mu G., Vindhini., Padmapriya G., Sathyanarayanan K., Sabuman P. An improved method for defluorication. *Indian J Envion Health*, 2003, 45 (1): 65-72.

19- APHA. Standard Methods for the Examination of Water & Wastewater. 21Th edition, Washington DC, USA. 2005.

20- Mjengera H., Mkongo G. Appropriate defluoridation technology for use in fluorotic areas in Tanzania. *Physics and Chemistry of the Earth*, 2003, 28(20-27): 1097-1104.

21-Chen-Lu Y., Dluhy R. Electrochemical generation of aluminum sorbent for fluoride adsorption. *Journal of Hazardous Materials*, 2002, 94(3): 239-252.

سیستم قادر بود غلظت فلوراید را در مدت زمان ۲ دقیقه از ۱۶ mg/L و در مدت زمان ۴ دقیقه از ۱۶ mg/L به کاهش دهد که در محدوده مقادیر به دست آمده این مطالعه در شرایط بهینه می باشد [۲۱].

با توجه به نتایج حاصل از این مطالعه و نتایج مطالعات انجام شده توسط دیگران می توان اظهار نمود که روش انعقاد روش بسیار مناسبی برای حذف فلوراید از آب می باشد و هر دو منعقد کننده مورد بررسی در این مطالعه (آلوم و پلی آلومینیوم کلراید تجاری) دارای کارایی بسیار مطلوبی در حذف فلوراید از محیط مایع می باشند. بنابراین با در نظر گرفتن ملاحظات اقتصادی و شرایط فنی و تکنولوژیکی محلی می توان این روش را نیز به عنوان یکی از آلت‌رناتیوهای قابل توجه به هنگام طراحی و انتخاب روش حذف فلوراید برای دستیابی به استانداردهای ملی و منطقه‌ای مدنظر قرارداد.

تشکر و قدردانی

بدین وسیله از حمایت های مالی و معنوی دانشگاه علوم پزشکی ایران برای انجام طرح تحقیقاتی دانشجویی کد ۷۶ تشرک و قدردانی به عمل می آید.

منابع

- 1- Tripathy S., Bersillon J., Gopal K. Removal of fluoride from drinking water by adsorption onto alum-impregnated activated alumina. *Separation and Purification Technology*, 2006, 50(3): 310-317.
- 2- Yan H., Shuguang W., Xianfeng Z. Adsorption of fluoride from water by aligned carbon nanotubes. *Material Research Bulletin*, 2003, 38(3): 469-476.
- 3- Shen F., Chen X., Gao P., Chen G. Electrochemical removal of fluoride ions from industrial wastewater. *Chemical Engineering Science*, 2003, 58(3-6): 987 - 993.
- 4- Srimurali M., Pragathi A., Karthikeyan J. A study on removal of fluorides from drinking water by adsorption onto low-cost materials. *Environmental Pollution*, 1998, 99(2): 285-289.
- 5- Mekonen A., Kumar P., Kumar A. Integrated biological and physicochemical treatment process for nitrate and fluoride removal. *Water research*, 2001, 35(13): 3127-3136.
- 6- Zakia A., Barioub B., Mameri N., Taky M.,