



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

R. R. Kalantary<sup>1</sup>, S. Jorfi<sup>2</sup>, A. Esrafil<sup>3</sup>, A. Ameri<sup>4</sup>, R. Baradar Niazi<sup>5</sup>, A. Ameli<sup>6</sup>

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 آلومینیوم کلراید تجاری و آلوم در حذف فلوراید از آب

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

تاریخ پذیرش: ۸۸/۹/۱۷

تاریخ ویرایش: ۸۸/۷/۲۸

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 آلومینیم 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 آلومینیوم 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 pH، دزای منعقد کننده مصرفی و غلظت فلوراید در شرایط تعریف شده مورد بررسی قرار گرفتند.

یافته ها: نتایج آزمایشات نشان می دهد که pH بهینه حذف فلوراید برای هر دو منعقد کننده برابر ۴ بود. غلظت آلوم و پلی آلومینیم کلراید جهت حذف فلوراید به ترتیب ۲۴۰ و ۱۶۰ میلیگرم بر لیتر و بازده حذف برای هر دو منعقد کننده در pH و دزای منعقد کننده بهینه به ترتیب ۸۴/۲ و ۸۴ 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 آلومینیم تجاری در حذف فلوراید قابل رقابت با آلوم می باشد.

کلیدواژه ها: فلوراید - انعقاد - آلوم - پلی آلومینیوم 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 فلزات، 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 ژئوشیمیایی و سیستماهای 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 گسترده ای در صنایعی نظیر

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 طوریکه 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 شیها بودهین و همکاران (۲۰۰۶) انجام شد، تأثیر pH و غلظت اولیه فلوراید در حذف فلوراید به وسیله اکسید منگنز پوشیده شده با آلومینا مورد بررسی قرار گرفت. pH بهینه حذف فلوراید در این مطالعه در محدوده ۷-۴ تعیین شد و اکسید منگنز پوشیده شده با آلومینا توانست نتایج قابل قبولی به همراه داشته باشد [۱۱]. در مطالعه دیگری توسط ورکو و همکاران (۲۰۰۷) حذف فلوراید توسط بقایای زائد کارخانجات ساخت آلوم مورد بررسی قرار گرفت. بیشترین مقدار فلوراید حذف شده به میزان ۸۵ درصد در دز ۱۶ g/L در غلظت فلوراید اولیه ۱۰ g/L و محدوده pH معادل ۸-۳ 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 ۱۰۰ درصد فلوراید به هنگامی بود که نسبت مولی یونهای OH و یونهای فلوراید به یونهای AL<sup>3+</sup> نزدیک ۳ 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 آلوم 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)<sup>3</sup> 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 ۲۵۰ میلی گرم بر لیتر آلوم می توان غلظت فلوئور را از ۳/۶ به ۱/۵ mg/L کاهش داد [۱۵]. گوآنتیو زنگ و همکاران (۲۰۰۵) مطالعه ای بر روی حذف فلوراید از آب توسط راکتور کوآگولاسیون غشایی (MCR: Membrane Coagulation Reactor) انجام

به آلودگی آبهای زیر زمینی می شود. با توجه به آلودگی آب های زیر زمینی [۳-۱] 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 ۱ تا ۱/۵ mg/L موجود باشد برای کودکان زیر ۸ سال مفید است چراکه مانع پوسیدگی دندان می شود. آثار فیزیولوژیکی جذب مازاد فلوراید بر روی بدن انسان به شکل گسترده ای مورد مطالعه قرار گرفته است [۴]. حد استاندارد WHO برای فلوراید ۱/۵ mg/L - ۱ است [۵]. غلظت های بالاتر متابولیسم عناصری مانند کلسیم و پتاسیم را در بدن تحت تأثیر قرار می دهد. متداولترین 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 تشدید می گردد (استاندارد فلوراید در مناطق سردسیر ۲/۴ mg/L است) [۵، ۶]. مشکلات فلوراید در جوامع روستایی و شهرهای کوچک و به ویژه در کشورهای جهان سوم حاد تر است [۷].

تاکنون روش های زیادی نظیر ترسیب شیمیایی به وسیله نمک های کلسیم و آلومینیوم، جذب به وسیله آلومینای فعال، آلوم، زغال چوب، خاکستر، استفاده از گرانول تری کلسیم فسفات، رزین های تبادل یونی، فرایندهای غشایی نظیر نانوفیلتراسیون و روش های حذف فیزیکی (اسمز معکوس و الکترو دیالیز) و الکتروکواگولاسیون [۸، ۹] برای حذف فلوراید مورد بررسی قرار گرفته است. مایلر و روبوسکی در سال ۱۹۷۴ اظهار نمودند که حذف فلوراید در اثر جذب فلوئور بر روی Al(OH)<sup>3</sup> اتفاق می افتد و هیدروکسید آلومینیوم و

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

#### تعیین pH بهینه

کلیه آزمایشات در مقیاس آزمایشگاهی و به وسیله دستگاه آزمایش جار انجام شد. با توجه به اهمیت pH در راندمان حذف فلوراید، در این قسمت ۶ بشر جارتست با آب شهر و سپس با آب دو بار تقطیر کاملاً شسته شد. با استفاده از محلول ذخیره (استوک) ۱۰۰mg/L، محلول های ۵mg/L فلوراید تهیه و pH محلول ها به ترتیب بر روی مقادیر ۲، ۴، ۶، ۸، ۱۰ و ۱۲ تنظیم گردید. به منظور تعیین دزازه ضروری منعقد کننده از آزمایشات اولیه (Pre-Test) استفاده شد و محدوده غلظتی مناسب تعیین گردید. از محلول استوک ۲۰g/L آلوم که قبلاً تهیه شده بود، به هر بشر اضافه گردید به طوری که غلظت آلوم در هر محلول به میزان ۲۰۰mg/L حاصل شود. بعد از انجام آزمایش جارتست (۳۰ ثانیه با سرعت ۲۰۰ دور در دقیقه، ۲۰-۱۵ دقیقه با سرعت ۴۰ دور در دقیقه و ۳۰ دقیقه ته نشینی) از هر یک از بشرها نمونه برداشته شد و بعد از صاف کردن با صافی ۴۵/۰ میکرون، جذب نمونه ها با دستگاه اسپکتروفتومتری خوانده شد. در آزمایش با پلی آلومینیم کلراید نیز همین مراحل تکرار شد، اما از محلول استوک ۵g/L پلی آلومینیم کلراید، به میزانی به هر بشر اضافه شد تا غلظت نهایی ۱۴۰mg/L به دست آید.

#### تعیین دزازه بهینه منعقد کننده

بعد از مشخص شدن pH بهینه، دزازه بهینه منعقد کننده آلوم با استفاده از مقادیر مشخص غلظت فلوراید تعیین گردید. بدین ترتیب بعد از تنظیم pH بهینه به ۶ بشر جار تست حاوی غلظت ۵mg/L فلوراید، غلظت های مختلف ۲۴۰، ۲۰۰، ۱۶۰، ۱۰۰، ۴۰ و ۳۰۰mg/L آلوم اضافه شد. بعد از انجام آزمایش جارتست طبق مرحله قبل جذب نمونه ها قرائت شده و بهترین دزازه منعقد کننده براساس محلولی که بالاترین راندمان حذف فلوراید را داشته است تعیین گردید.

برای تعیین دزازه بهینه منعقد کننده پلی آلومینیم

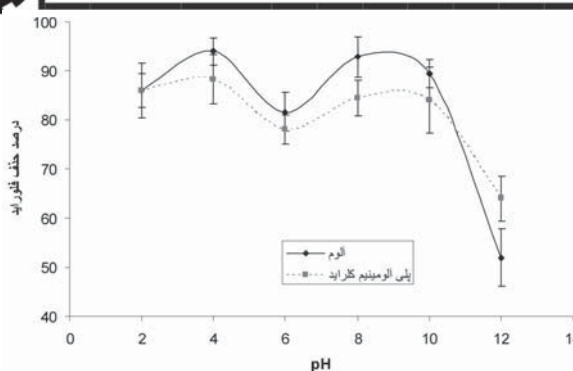
دادند. آنها در مقیاس آزمایشگاهی با تزریق دزازه مناسب مواد شیمیایی به MCR، غلظت فلوراید را از ۴mg/L در آب خام به کمتر از ۱mg/L رساندند و غلظت Al باقی مانده کمتر از ۰/۵mg/L بود. در این آزمایشات نشان دادند که برای حذف ۱گرم از فلوراید تقریباً ۵۰ گرم آلوم مصرف می شود. [۱۶]. کلاپ و استولتن برگ نشان دادند که فلوراید به وسیله کواگولاسیون با آلوم حذف می شود و pH بهینه برای این کار ۷-۵/۵ می باشد. این دو نفر در سال ۱۹۵۸ نشان دادند که استفاده از مقدار ۲۵۰mg/L آلوم میزان فلوراید را از ۳/۶mg/L به ۱/۴mg/L کاهش داده است [۱۷]. مو و همکاران (۲۰۰۳) در تحقیقی بر روی حذف فلوراید با استفاده از پلی آلومینیم کلراید نشان دادند که این ماده به عنوان منعقد کننده تا حدود ۷۵-۸۵٪ 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 آلومینیم 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 آلومینیم کلراید صنعتی و تعیین شرایط بهینه عوامل مؤثر در بهره برداری، شامل pH و دزازه ماده منعقد کننده است.

#### روش بررسی

##### مواد و معرف ها

منعقد کننده آلوم با خلوص آزمایشگاهی (Grade Analytical) از شرکت مرک و پلی آلومینیم کلراید در مقیاس صنعتی از شرکت طرح و توسعه صادرات تهیه گردید. درجه خلوص پلی آلومینیم کلراید صنعتی ۳۰ درصد بود. از فلورید سدیم (NaF) برای تهیه محلول استوک فلوراید ۱mg/L استفاده گردید. در این مطالعه معرف اسپندزازه به نسبت یک به پنج رقیق و سپس مورد استفاده قرار گرفت. محلول رفرنس مورد نیاز با اضافه کردن یک میلی لیتر معرف اسپندزازه و ۱mL معرف اسپندزازه پیرکونیل به ۱۰mL میلی لیتر از آب دو بار 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 معادل ۴ و به میزان ۹۴ درصد و کمترین درصد حذف در pH معادل ۱۲ و به میزان ۵۲ درصد بوده است. بیشترین و کمترین راندمان حذف فلوراید توسط پلی آلومینیوم کلراید به ترتیب در pH های معادل ۴ و ۱۲ و به میزان ۸۸/۲ و ۶۴ درصد بوده است. pH بهینه حاصل از این مرحله برای هر دو منعقد کننده برابر ۴ بوده است.

#### دزای بهینه ماده منعقد کننده در استفاده از آلوم و پلی آلومینیوم کلراید

در مرحله دوم و بنابر نتایج مرحله اول دزای بهینه ماده منعقد کننده مصرفی در pH معادل ۴ تعیین شد. غلظت اولیه فلوراید در همه نمونه ها ۵ mg/L بود. بیشترین بازده حذف معادل ۸۴/۲ درصد مربوط به غلظت آلوم ۲۴۰ mg/L بود. دزای بهینه پلی آلومینیوم کلراید برابر ۱۶۰ mg/L با بازده حذف ۸۴ درصد بود. نتایج مرحله تعیین دزای بهینه آلوم و پلی آلومینیوم کلراید در شکل ۲ نشان داده شده است.

#### تأثیر غلظت منعقد کننده بر عملکرد انعقاد

در آخرین مرحله مطالعات اثر دزای 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. همچنین به هنگام استفاده از پلی آلومینیوم کلراید به عنوان منعقد کننده، بیشترین بازده حذف ۹۰/۶ 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 ولی غلظت پلی آلومینیوم کلراید اضافه شده به هر یک از بشرها ۱۶۰، ۱۴۰، ۱۰۰، ۵۰، ۲۵ و ۲۰ mg/L بود.

#### تأثیر غلظت منعقد کننده بر عملکرد انعقاد

به منظور بررسی تأثیر ماده منعقد کننده در غلظت های مختلف فلوراید، ۲۵۰ mL محلول با غلظت های مختلف فلوراید (۱، ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۰ mg/L) در ۶ بشر جارتست ریخته شد و پس از تنظیم pH بهینه و دزای 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.

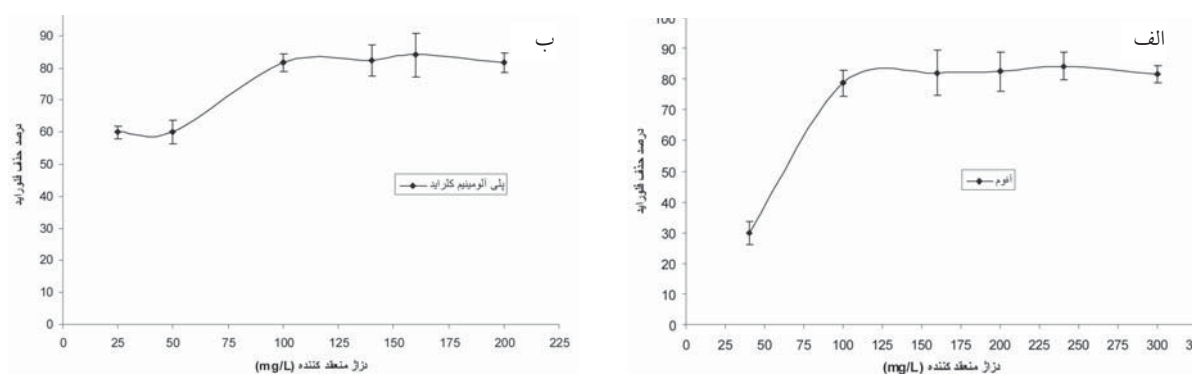
#### روش های آزمایشگاهی

pH های لازم پس از آماده سازی محلول های مورد نظر با استفاده از اسید سولفوریک و سود، توسط دستگاه pH متر تنظیم شد. برای تهیه منحنی کالیبراسیون غلظت های صفر تا ۱/۴ mg/L فلوراید با استفاده از محلول استوک ۱۰۰ mg/L فلوراید تهیه گردید. بعد از اضافه کردن معرف ها (یک mL اسید زیرکونیل و یک mL معرف اسپندز) جذب محلول های استاندارد تهیه شده در طول موج ۵۷۰ نانومتر خوانده شد. بر اساس جذب های خوانده شده و غلظت های معلوم، منحنی استاندارد رسم شد. از این منحنی برای بدست آوردن غلظت نمونه های مجهول 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 آلومینیوم کلراید در pH برابر ۴

از دلایل مصرف بیشتر پلی آلومینیوم کلراید این امر بوده است. در مطالعاتی توسط گوانتیو زنگ [۱۶] و کلاپ استونتن برگ [۱۷] حذف فلوراید توسط آلوم به روش انعقاد مورد بررسی گرفت. pH بهینه به ترتیب در محدوده ۷-۵/۵ و ۷-۶ بوده است. با توجه به نتایج حاصله می توان 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 می گردد در نتیجه از نظر اقتصادی مناسبتر خواهد بود. در مورد پلی آلومینیوم کلراید نیز حذف مناسبی در pH معادل ۸ صورت گرفته است، اما حداکثر حذف به عنوان مبنا 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 (۲۰۰۳) برای حذف فلوراید توسط پلی آلومینیوم کلراید انجام شد، محدوده خاصی برای pH توصیه نشده است [۱۸].

شکل ۲ نشان می دهد که مؤثرترین دوز 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 می یابد. اما این امر در پلی آلومینیوم کلراید مصداق نداشته و افزایش غلظت فلوراید توأم با نوساناتی در بازده حذف بوده ولی روند کلی آن نشان می دهد که به موازات افزایش غلظت فلوراید تا غلظت ۷ mg/L، بازده حذف افزایش یافته است.

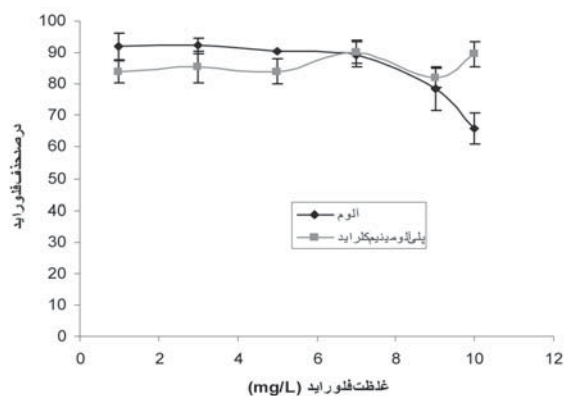
### بحث و نتیجه گیری

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 می توان در محدوده pH های معادل ۸-۶ نیز عمل نمود. با توجه به pH انجام واکنش‌های توان نتیجه گیری کرد که مکانیزم اصلی انعقاد در این فرایند مکانیزم جذب سطحی و خنثی سازی بار و تشکیل یون‌های فلزی آلومینیوم مثبت بوده است. یکی از دلایل مصرف کمتر آلوم نسبت به پلی آلومینیوم کلراید می تواند درصد بیشتر سهم مکانیزم جذب سطحی و خنثی سازی بار برای آلوم در مقایسه با پلی آلومینیوم کلراید باشد. با توجه به اینکه پلی آلومینیوم کلراید در pH های بالاتر بازده حذف بیشتری داشت، می توان نتیجه گیری کرد که مکانیزم انعقاد جارویی نیز در کاربرد پلی آلومینیک کلراید نقش داشته است. به دلیل مصرف بیشتر مقدار ماده منعقد کننده در مکانیزم انعقاد جارویی نسبت به جذب سطحی و خنثی سازی بار می توان اظهار کرد که یکی

محدوده مصرفی در تحقیق اسماعیلی است [۱۴]. فلوراید باقیمانده حاصل از فرایند انعقاد توسط پلی آلومینیوم کلراید نشان می دهد که غلظت  $160 \text{ mg/L}$  ماده منعقد کننده مذکور برای حذف فلوراید در محدوده غلظتی ۵ تا  $10 \text{ mg/L}$  مناسب است. نتایج این مرحله از آزمایشات نشان می دهد که دزازه پلی آلومینیوم 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 ۷ و  $10 \text{ mg/L}$  فلوراید بوده است.

به طور کلی تعیین دزازه بهینه ماده منعقد کننده دارای اهمیت بهداشتی و اقتصادی می باشد. از یک سواستفاده و خریداری مواد شیمیایی هزینه بر بوده و از سویی دیگر کاربرد مازاد آلوم، ضمن مصرف کلیت سستی دائمی آب را افزایش داده که به نوبه کیفیت شیمیایی آب را تحت تاثیر قرار می دهد. همچنین مطالعات بهداشتی رابطه مستقیم آلومینیوم با آلزایمر را در انسان تایید کرده است. برای حذف هر گرم فلوراید در محدوده غلظتی ۵ تا  $10 \text{ mg/L}$  مقادیر ۲۹ تا ۵۳ گرم آلوم و ۱۹ تا ۳۸ گرم پلی آلومینیوم کلراید ۳۰ درصد مورد نیاز است. راندمان حذف فلوراید توسط آلوم و پلی آلومینیوم کلراید در غلظت های مختلف فلوراید به غلظت اولیه فلوراید بستگی داشته و به ترتیب در محدوده ۹۳-۷۸ و ۹۰-۸۲ درصد بود.

مطالعات گسترده ای با استفاده از روش های گوناگون برای حذف فلوراید از محیط آبی انجام شده است. مجنر 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  $12 \text{ mg/L}$  به  $2-3 \text{ mg/L}$  شدند. به عبارتی کاهش فلوراید معادل ۷۹ 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 از آب بوده اند. چن لو یانگ و همکاران از یک راکتور الکتروشیمیایی با الکترودهای آندی آلومینیومی برای تولید جاذب فلوراید در محیط مایع استفاده کردند.



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

و فرایند مذکور در مقیاس با فرایند انعقاد به تنهایی یک فرایند گران است، در تحقیق حاضر مقدار فلوراید باقیمانده در فرایند انعقاد در محدوده قابل قبولی است [۱]، دزازه حاصله از نتایج این آزمایش را می توان دزازه مناسب و قابل قبولی محسوب نمود، ضمن اینکه مقدار پیشنهادی از مقدار پیشنهادی توسط کلاپ و استونتن برگ کمتر است. با توجه به شکل ۲ و ۳ مقادیر حذف و مقدار آلوم مورد نیاز به غلظت اولیه فلوراید بستگی دارد. در محدوده غلظت اولیه ۵ تا  $10 \text{ mg/L}$  میزان آلوم مصرفی به ازای هر گرم فلوراید در محدوده ۲۹ تا ۵۳ گرم بوده است که در محدوده پیشنهادی گوانتیوزنگ و همکاران است [۱۷].

نتایج آزمایشات نشان می دهد که در استفاده از دزازه ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر آلوم غلظت فلوراید باقیمانده در آب در حدود  $1/06 \text{ mg/L}$  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 حداکثر 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.
- دزازه آلوم مصرفی در این مطالعه بسیار کمتر از

Nicolasb S., Elmidaoui A. Fluoride removal from brackish water by electro dialysis. *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. weand 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- Esmacili L (2003) Hazf Floreid az Ab-e-Ashamidani tedadi az Roostahaye Tabeeae 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., Sathiyarayanan K., Sabuman P. An improved method for defluoridation. *Indian J Envivon 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 deflouridation technology for use in flourotic 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 به ۶ mg/L و در مدت زمان ۴ دقیقه از ۱۶ به ۲ mg/L 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 منطقه ای مدنظر قرار داد.

### تشکر و قدردانی

بدین وسیله از حمایت های مالی و معنوی دانشگاه علوم پزشکی ایران برای انجام طرح تحقیقاتی دانشجویی کد ۷۶ تشکر 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 Bulltein*, 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., Bariou B., Mameri N., Taky M.,