

## بررسی حذف فلوراید از آب آشامیدنی به روش الکتروکواگولاسیون: راکتور ناپیوسته

شهرزاد علیان نژاد<sup>۱</sup>، گیتی کاشی<sup>۲\*</sup>، سید مصطفی خضری<sup>۱</sup>، علی ماشینچیان مرادی<sup>۳</sup>

۱. دانشکده محیط زیست و انرژی، واحد علوم و تحقیقات دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران  
 ۲. دانشکده بهداشت، واحد تهران پزشکی، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران  
 ۳. دانشکده علوم و فنون دریایی، واحد علوم و تحقیقات دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران

## چکیده:

**سابقه و هدف:** کاربرد روش الکتروکواگولاسیون برای حذف آلاینده های شیمیایی در سال های اخیر روبه گسترش است. هدف در این تحقیق امکان و تعیین درصد حذف فلوراید، عامل فلئوروزیس دندانی و استخوانی، از آب آشامیدنی وسیله راکتور ناپیوسته الکتروکواگولاسیون مرکب از الکترودهای آلومینیومی است.

**روش بررسی:** نمونه آب آشامیدنی دارای فلوراید در راکتور ناپیوسته پلاستیکی با آرایش الکترودها به صورت تک قطبی تهیه گردید. کارایی حذف در حالت مختلف متغیرهای pH (۴، ۷ و ۱۰)، زمان واکنش (۵، ۱۰، ۱۵، ۳۰ و ۴۵ دقیقه)، فاصله الکترودها (۲ سانتی متر)، غلظت فلوراید (۲، ۴، ۶ و ۱۲) و چگالی جریان ( $1/5$ ، ۳ و  $4/5$  mA/cm<sup>2</sup>) بررسی شد.

**یافته ها:** مقدار حذف ۲ mg/L فلوراید در فاصله ۲ سانتی متر، چگالی جریان  $4/5$  mA/cm<sup>2</sup> و زمان واکنش ۳۰ دقیقه در pH های ۴، ۷ و ۱۰ به ترتیب ۹۶/۵٪، ۱۰۰٪ و ۹۰/۵٪ در راکتور الکتروکواگولاسیون بدست آمد. مقدار حذف ۱۲ mg/L فلوراید در فاصله ۲ سانتی متر، چگالی جریان  $4/5$  mA/cm<sup>2</sup> و زمان واکنش ۳۰ دقیقه در pH های ۴، ۷ و ۱۰ به ترتیب ۶۰/۷٪، ۶۴٪ و ۵۶٪ در راکتور الکتروکواگولاسیون بدست آمد.

**نتیجه گیری:** یافته ها نشان دادند که میزان حذف فلوراید با افزایش چگالی جریان و مدت زمان واکنش افزایش می یابد. با افزایش غلظت فلوراید، زمان مورد نیاز برای دستیابی به کارایی حذف مناسب نیز افزایش می یابد. نتایج نشان دادند که الکتروکواگولاسیون فرایندی موثر برای فلئور زدایی از آب آشامیدنی محسوب می شود.

**کلمات کلیدی:** آب آشامیدنی، الکتروکواگولاسیون، راکتور ناپیوسته، فلئور زدایی

## مقدمه

بیش از حد رهنمود سازمان بهداشت جهانی ( $1/5$  mg/L) به ایجاد عوارض مختلفی از جمله فلئوروزیس دندانی و اسکلتی منجر می گردد (۲ و ۳). ایران جزء کشورهای است که غلظت فلوراید در بعضی نقاط آن بیش از حد مجاز می باشد، بنابراین لزوم استفاده از روشی مناسب برای حذف فلوراید به منظور حفظ سلامت عمومی احساس می گردد (۴). رایج ترین روش فلئور زدایی، ترکیب شیمیایی با استفاده از نمک آلوم و آهک (نالگودا) است که به تشکیل آنیون سولفات و

کیفیت آب آشامیدنی تأثیر به سزایی در سلامت عمومی جامعه داشته و بنابراین ترکیب شیمیایی آب های سطحی و زیرزمینی نظیر فلوراید از پارامترهای تعیین کننده در انتخاب منبع تأمین آب در جامعه محسوب می شود (۱). آب آشامیدنی مهم ترین راه دریافت فلوراید، به عنوان الکترون گاتیوتترین عنصر، می باشد. فلوراید در غلظت کم برای حفظ سلامت دندان و استخوان ها ضروری است، اما در غلظت های

\* نویسنده مسئول مکاتبات: g.kashi@yahoo.com

مقطر دو بار تقطیر تهیه شد. با انجام رقیق سازی (با نسبت ۱ به ۵۰، ۲۵، ۱۶ و ۸) غلظت فلوراید ۲، ۴، ۶ و ۱۲ میلی گرم در لیتر آب حاصل شد. نمونه های آب مورد استفاده از شبکه توزیع آب آشامیدنی تهران تهیه شد. جدول ۱ مقادیر متوسط غلظت ویژگی های فیزیکی و شیمیایی آب شهری را نشان می دهد (۱۰).

جدول ۱. مقادیر متوسط غلظت ویژگی های فیزیکی و شیمیایی آب شهری

متغیر	واحد	مقدار
اکسیژن محلول	mg/L	۸/۰۵
پتانسیل اکسیداسیون و احیاء	mV	۲۷۹
pH	-	۷/۱۹
حرارت	°C	۲۰
سولفات	mg/L	۹۳/۸
قلیائیات کل	mg/L as CaCO <sub>3</sub>	۱۲۲
کلسیم	mg/L as CaCO <sub>3</sub>	۱۶۲
نیترات	mg/L	۹/۵

## ۲-۲. آماده سازی الکترودهای آلومینیوم

محلول دترجنت و آب برای تمیز کردن سطح الکترودها قبل از کاربرد بهره برداری شد. الکترودها پس از شستشو با آب مقطر توزین، خشک و در رآکتور قرار می گرفتند (۱۰). لازم به ذکر است که پیش آزمون‌ها نشان دادند که الکترودهای آلومینیوم از کارایی بیشتری نسبت به الکترودهای آهن برخوردار است.

## ۲-۳. آماده سازی رآکتور ناپیوسته

رآکتور ناپیوسته با آرایش تک قطبی با مشخصات زیر برای انجام آزمایش‌ها بهره برداری گردید. ظرف پلاستیکی ۲۵۰ میلی لیتر، دو الکترودهای آلومینیومی دارای مساحت ۴۰ سانتیمتر مربع (مساحت موثر ۳۲ سانتی متر مربع)، فاصله الکترودها از کف ۱ سانتی متر و فاصله الکترودها (۲ سانتی متر) می باشد (شکل ۱). منبع برق جریان مستقیم (ایران جهش) دارای توان الکتریکی حداکثر ۶۰ وات و همزن مغناطیسی با شدت ۱۰۰ rpm (مدل Aika) برای یکنواخت نمودن نمونه آب بهره برداری گردید. همه آزمایش‌ها در دمای آزمایشگاه (۲۰ درجه سانتی گراد) انجام شد. حجم آب ۲۰۰ میلی لیتر در نظر گرفته می شد (۱۰).

کاتیون آلومینیوم می انجمد. روش های جایگزین مانند جذب به وسیله آلومینای فعال بهره برداری می شود که وابستگی فرآیند حذف به عوامل مختلف مانند pH و همه جامدات محلول از جمله معایب آن محسوب می شود (۵). بنابراین، استفاده از فن آوری های کارآمدتر برای فلوتور زدایی آب ضرورت دارد. به تازگی روش الکتروکواگولاسیون، به عنوان روشی امیدبخش در فلوتور زدایی آب بهره برداری شده است (۶). فن آوری الکتروکواگولاسیون، فرآیند الکتروشیمیایی محسوب می شود که حذف آلاینده های غیر آلی، پاتوژن ها، حذف ذرات و مواد معلق از محلول در اثر جریان الکتریسیته در آب اتفاق می افتد (۷). عوامل موثر بر روی عملکرد فرآیند الکتروکواگولاسیون شامل چگالی جریان، pH و هدایت الکتریکی می باشند. مزایای حذف فلوراید به روش الکتروکواگولاسیون عبارتند از: زمان تصفیه کوتاه، کاهش استفاده از مواد شیمیایی افزودنی، تولید لجن کمتر و سرعت بالای رسوب لخته های بسته شده است (۷). عمل بسته شدن در فرآیند الکتروکواگولاسیون به ترتیب بر روی الکترودهای آند و کاتد همراه با تولید حباب ریز گاز هیدروژن در کاتد، و تولید کاتیون فلزی در آند انجام می شود. کاتیون فلزی به تشکیل لخته های هیدروکسید فلزی و کمپلکس آنیون فلوراید-لخته هیدروکسید فلزی می انجامد. بسیاری از محققان در مورد عملکرد الکتروکواگولاسیون در حذف آلاینده ها از آب آشامیدنی تحقیق نموده اند. برای مثال در ویچی و همکاران بر روی حذف فلوراید از پساب صنعت پرداخت توسط الکتروکواگولاسیون با استفاده از الکترودهای آهن تحقیق نموده و متوجه شدند که راندمان حذف فلوراید به غلظت الکتروولت بستگی دارد (۸). سینها و همکاران روی فلوتور زدایی از آب زیرزمینی توسط الکتروکواگولاسیون تحقیق نموده و متوجه شدند که روش الکتروکواگولاسیون در مقایسه با فن آوری های آلومینای فعال و نالگودا آلومینیوم باقی مانده کمتری در آب آزاد می کند (۹). هدف در این تحقیق بررسی حذف فلوراید از آب آشامیدنی به روش الکتروکواگولاسیون می باشد. همچنین اثرات pH، زمان واکنش، غلظت فلوراید، آلومینیوم باقی مانده و چگالی جریان بررسی شدند.

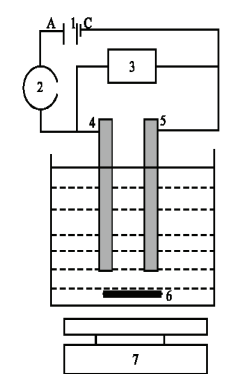
## مواد و روش ها

### ۲-۱. تهیه نمونه آب دارای فلوراید

محلول سنتتیک فلوراید ۱۰۰ میلی گرم در لیتر از طریق انحلال ۲۲۱ میلی گرم فلوراید سدیم (مرک) در ۱۰۰۰ میلی لیتر آب

۴-۲. روش‌های تجزیه و تحلیل

آزمایش‌ها ۳ بار تکرار و مقدار متوسط آن‌ها گزارش گردید. برای ارزیابی تأثیر جریان مستقیم بر فرآیند حذف، نمونه‌ها در pH (۴، ۷، و ۱۰)، زمان واکنش (۵، ۱۰، ۱۵، ۳۰ و ۴۵ دقیقه)، غلظت فلوراید (۲، ۴، ۶، و ۱۲ میلی گرم در لیتر) و در چگالی جریان‌های مختلف (۱/۵، ۳، و ۴/۵ میلی آمپر بر سانتی متر مربع) تحت الکتروکواگولاسیون قرار گرفتند. به این ترتیب تعداد نمونه‌های بررسی شده ۱۸۰ نمونه بدست آمد. آزمایش‌های به عمل آمده پس از کاربرد چگالی جریان و مدت واکنش شامل pH، حرارت و فلوراید می‌شوند. اندازه‌گیری غلظت فلوراید باقی‌مانده پس از صاف کردن به وسیله صافی غشایی (واتمن - انگلستان) با اندازه ۰/۴۵ میکرون به وسیله دستگاه اسپکتروفتومتر (مدل آمریکا HACH- DR/2010) در طول موج ۵۸۰ نانومتر با روش SPADNS برابر دستورالعمل‌های موجود در کتاب روش‌های استاندارد برای انجام آزمایش‌های آب و فاضلاب انجام گرفت (۱۱). اندازه‌گیری pH و حرارت توسط دستگاه pH متر (Hack, America) انجام گرفت. برای تنظیم pH از دستگاه pH متر و محلول اسیدکلریدریک و سود ۱ نرمال استفاده شد. کارایی حذف باکتری در این تحقیق تحلیلی-



شکل ۱: طرح شماتیک از رآکتور ناپیوسته الکتروکواگولاسیون با آرایش

تک قطبی

- ۱ - منبع تغذیه ۲- آمپرسنج (۵-۱ آمپر) ۳- ولت سنج (۶۰-۱ ولت) ۴- الکتروکواگولاسیون
- ۵- الکتروکواگولاسیون ۶- میله مغناطیسی ۷- همزن مغناطیسی

جدول ۲. شرایط بهره برداری ناپیوسته آزمایش‌های الکتروکواگولاسیون

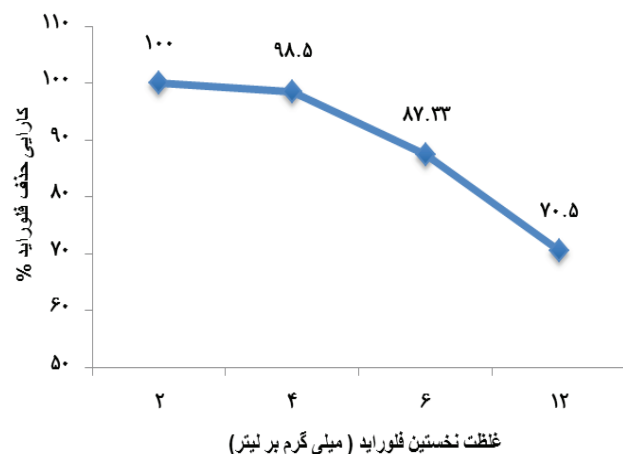
شرایط بهره برداری ناپیوسته				pH	جنس الکترودها	غلظت اولیه فلوراید (mg/L)	چگالی جریان (mA/cm <sup>2</sup> )	مدت زمان واکنش (min)	مرحله آزمایش
۱	اثر غلظت اولیه فلوراید	۷	Al-Al	۲-۱۲	۴/۵	۴۵			
۲	اثر pH آب	۴-۱۰	Al-Al	۲	۴/۵	۴۵			
۲	اثر چگالی جریان	۷	Al-Al	۲	۱/۵-۴/۵	۴۵			
۳	اثر مدت زمان واکنش	۷	Al-Al	۲	۴/۵	۵-۴۵			

یافته‌ها

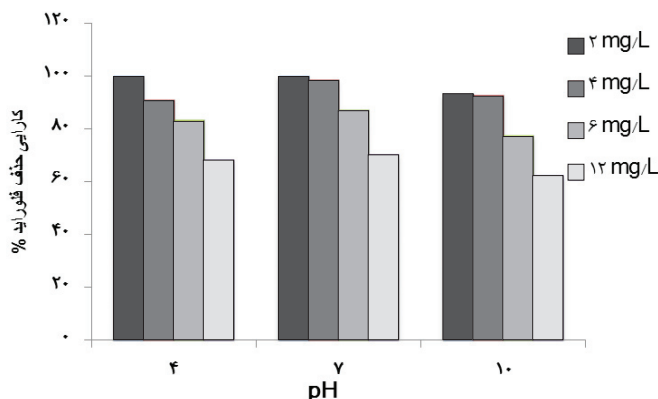
نمودارهای ۱ تا ۵ و جدول ۳ اثر متغیرهای pH، زمان واکنش، غلظت فلوراید و چگالی‌های جریان را بر روی حذف فلوراید از آب آشامیدنی به روش الکتروکواگولاسیون نشان می‌دهند.

۳-۱. اثر غلظت نخستین فلوراید

کارایی فرآیند حذف با افزایش غلظت فلوراید از ۲ mg/L به ۱۲ mg/L در رآکتور ناپیوسته الکتروکواگولاسیون به کاهش میانگین کارایی حذف فلوراید از ۱۰۰٪ به ۷۰/۵٪ در pH معادل ۷، چگالی جریان ۴/۵ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، فاصله الکترودها ۲ سانتی متر و زمان واکنش ۴۵ دقیقه - منجر می‌شود (جدول ۳ و نمودارهای ۱ و ۲).



نمودار ۱. اثر غلظت نخستین فلوراید روی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته الکتروکواگولاسیون

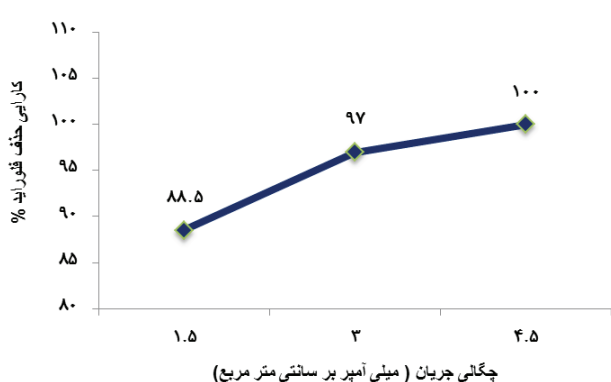


نمودار ۲. درصد حذف فلوراید در سیستم الکتروکواگولاسیون از آب آشامیدنی با غلظت فلوراید ۲، ۴، ۶ و ۱۲ میلی گرم بر لیتر در زمان واکنش ۴۵ دقیقه، چگالی جریان ۴/۵ میلی آمپر بر سانتیمتر مربع و در pH های مختلف

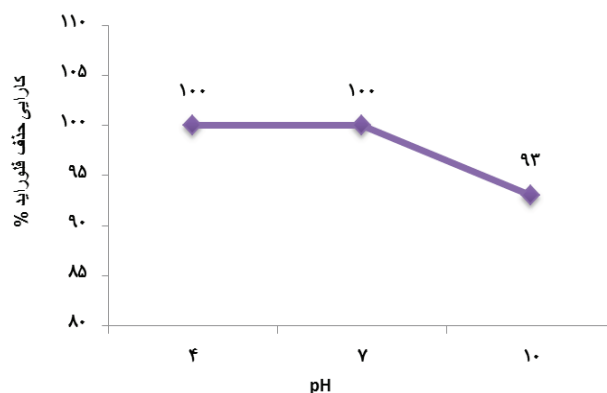
### ۲-۳. اثر pH آب

کارایی فرآیند حذف فلوراید در رآکتور الکتروکواگولاسیون با افزایش pH از ۴ به ۷ در همه غلظت‌ها افزایش و در pH معادل ۱۰ کاهش می‌یابد. pH معادل ۷ به چگالی جریان کمتری در مقایسه با دو pH دیگر نیاز دارد (نمودار ۳).

مربع و فاصله ۲ سانتی متر الکترودها به ترتیب کمتر از ۴۵ و کمتر از ۳۰ دقیقه می‌باشد. افزایش چگالی جریان از mA/cm<sup>2</sup> ۱/۵ به ۴/۵ mA/cm<sup>2</sup> به افزایش میانگین کارایی حذف فلوراید از ۸۸/۵٪ به ۱۰۰٪ در شرایط آزمایشگاهی ارائه شده در جدول ۲ می‌انجامد.



نمودار ۳. اثر چگالی جریان روی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته الکتروکواگولاسیون



نمودار ۴. اثر PH روی حذف فلوراید (۲ mg/L) در رآکتور ناپیوسته الکتروکواگولاسیون

### ۳-۳. اثر چگالی جریان

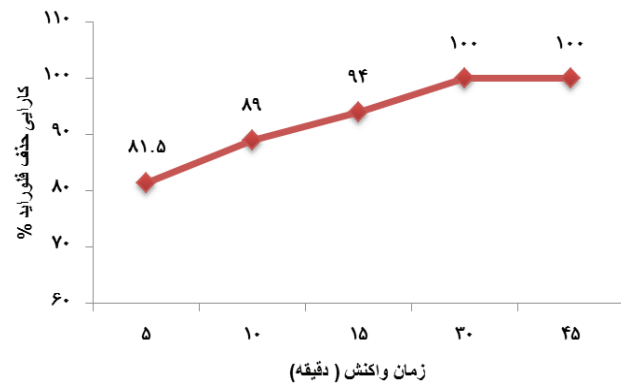
کارایی فرآیند حذف فلوراید با افزایش چگالی جریان و زمان واکنش در تمام غلظت‌ها افزایش می‌یابد (جدول ۳ و نمودار ۴). بهترین چگالی جریان در رآکتور الکتروکواگولاسیون برای دست یابی به حذف کامل فلوراید در pH ۴، ۷، ۴/۵ میلی آمپر بر سانتی متر مربع برای غلظت ۲ mg/L فلوراید است. بهترین زمان واکنش برای دست یابی به ۱۰۰٪ حذف فلوراید mg/L در pH ۴ و ۷، چگالی جریان ۴/۵ میلی آمپر بر سانتی متر

### ۳-۴. اثر مدت واکنش

آزمایش‌ها الکتروکواگولاسیون در گستره مدت واکنش ۵، ۱۰، ۱۵، ۳۰ و ۴۵ دقیقه در شرایط آزمایشگاهی ارائه شده در جدول ۲ انجام گرفتند. همان طوری که در نمودار ۵ مشاهده می‌شود افزایش مدت واکنش به افزایش راندمان حذف منجر می‌شود. افزایش مدت واکنش از ۵ min به ۴۵ min به افزایش میانگین کارایی حذف فلوراید از ۸۱/۵٪ به ۱۰۰٪ می‌انجامد.

بحث

بر اساس نتایج حاصل از بررسی غلظت فلوراید روی کارایی حذف، می توان نتیجه گیری نمود که کارایی حذف به دلیل افزایش غلظت فلوراید در مقابل چگالی جریان و مقدار ثابت مواد شیمیایی تولید شده نظیر تولید هیدروژن در کاتد کاهش یافته است. این یافته تحقیق تأییدکننده این نتیجه گیری است که الکتروکواگولاسیون به افزایش تولید گاز هیدروژن انجامیده است. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط گووش و همکاران مطابقت دارد. آن ها نشان دادند که افزایش غلظت فلوراید از ۴ به ۱۰ میلی گرم در لیتر در مدت ۴۵ دقیقه و چگالی جریان ۲۵۰ آمپر در مترمربع به کاهش



نمودار ۵. اثر زمان واکنش روی حذف فلوراید در راکتور ناپیوسته الکتروکواگولاسیون

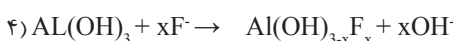
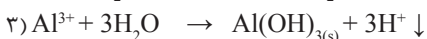
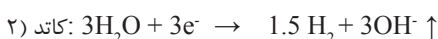
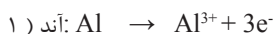
جدول ۳. نتایج الکتروکواگولاسیون در حذف فلوراید از آب آشامیدنی در pH، زمان واکنش، چگالی جریان و غلظت های مختلف

درصد کارایی حذف فلوراید در pH معادل ۱۰					درصد کارایی حذف فلوراید در pH معادل ۷					درصد کارایی حذف فلوراید در pH معادل ۴					غلظت اولیه فلوراید mg/L	چگالی جریان (mA/cm <sup>2</sup> )
زمان واکنش (min)					زمان واکنش (min)					زمان واکنش (min)						
۴۵	۳۰	۱۵	۱۰	۵	۴۵	۳۰	۱۵	۱۰	۵	۴۵	۳۰	۱۵	۱۰	۵	۱/۵	۲
۸۱/۵	۷۴	۶۳/۵	۵۹	۵۰/۵	۸۸/۵	۸۳/۵	۷۶/۵	۶۹/۵	۶۵	۸۵	۷۹/۵	۷۰/۵	۶۵	۵۸/۵	۱/۵	۲
۸۶/۵	۸۳/۵	۷۷	۶۶/۵	۶۱/۵	۹۷	۹۱	۸۶/۵	۷۹/۵	۷۳	۹۴	۸۸/۵	۸۲	۷۵/۵	۶۹	۳	
۹۳	۹۰/۵	۸۵	۷۹/۵	۶۹	۱۰۰	۱۰۰	۹۴	۸۹	۸۱/۵	۱۰۰	۹۵/۵	۹۱	۸۵	۷۸	۴/۵	
۶۵/۲۵	۶۱/۵	۵۵	۴۷/۲۵	۴۰/۷۵	۷۹	۷۳/۲۵	۶۸	۶۰/۷۵	۵۵	۷۴	۶۸	۶۳/۲۵	۵۶	۴۷/۷۵	۱/۵	۴
۷۷	۶۹/۷۵	۶۳	۵۶/۵	۴۹/۲۵	۸۷	۸۱/۵	۷۸/۲۵	۷۲/۵	۶۵/۷۵	۸۳/۷۵	۷۶	۷۱/۲۵	۶۵/۲۵	۵۹/۲۵	۳	
۹۲/۷۵	۷۹/۷۵	۷۲/۷۵	۶۹/۲۵	۶۴/۵	۹۸/۵	۹۲/۵	۸۵	۸۱/۲۵	۷۷/۲۵	۹۱	۸۷/۷۵	۷۸/۷۵	۷۵/۵	۷۱/۵	۴/۵	
۶۰	۵۱/۸۳	۴۶/۵	۴۳	۳۶/۱۶	۷۳	۶۸/۶	۵۹/۳۳	۵۱/۳۳	۴۴	۶۵/۸۳	۵۹	۵۲/۸۳	۴۶	۴۰/۳۳	۱/۵	۶
۶۸/۳۳	۶۲/۵	۵۵	۵۲/۱۶	۴۶/۵	۷۹/۱۶	۷۵/۶	۷۱	۶۳	۵۵/۸۳	۷۳	۶۸/۳۳	۶۱/۳۳	۵۷/۳۳	۵۰/۳۳	۳	
۷۷/۵	۷۰/۳۳	۶۴/۱۶	۵۸	۵۴	۸۷/۳۳	۸۱	۷۸/۱۶	۷۶	۷۰/۵	۸۳/۵	۷۵	۷۰/۱۶	۶۶/۸۳	۶۱/۶۶	۴/۵	
۴۶	۳۷/۸۳	۳۷/۷۵	۳۰/۵	۲۲	۵۱/۵	۴۶	۴۱	۳۷/۱۶	۳۰	۴۹/۲۵	۴۳	۳۸	۳۲/۷۵	۲۶/۸۳	۱/۵	۱۲
۵۳/۱۶	۴۸	۴۱	۳۸	۳۱/۵	۵۹/۲۵	۵۳	۴۷/۰.۸	۴۳	۳۸/۷۵	۵۷/۱۶	۵۱/۵	۴۴/۹۱	۴۰/۱۶	۳۴	۳	
۶۲/۵	۵۶	۵۶	۴۳/۶۶	۳۹	۷۰/۵	۶۳/۵	۵۷/۳۳	۵۱	۴۴/۷۵	۶۸/۲۵	۶۰/۷۵	۵۴/۲۵	۴۷/۷۵	۴۲/۵	۴/۵	

رهنمود سازمان بهداشت جهانی (۱/۵ mg/L) می شود. در باره بررسی کارایی حذف فلوراید در سه pH ۴، ۷ و ۱۰ می توان بیان نمود که افزایش واکنش های شیمیایی در pH معادل ۷ به حداکثر تولید غلظت OH<sup>-</sup> ناشی از افزایش اکسیداسیون آندی و تولید Al(OH)<sub>3</sub> می انجامد که در ادامه لخته های Al(OH)<sub>3</sub> به وسیله F<sup>-</sup> جذب می شوند. افزایش pH به طور قابل توجهی به افزایش تولید هیدروکسید آلومینیوم، جذب فلوراید و ترسیب بیش تر فلوراید در سیستم می انجامد. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط ایسادی و همکاران مطابقت دارد. این محقق نشان داد که بهترین pH در حذف فلوراید با الکتروکواگولاسیون، مدت واکنش ۳۰ دقیقه و چگالی جریان ۱۷/۱ mA/cm<sup>2</sup>، pH معادل ۷ است (۱۴).

حذف از ۹۰% به ۸۳/۸% می انجامد (۱۲). می توان نتیجه گیری نمود که کاتیون های آلومینیوم به خنثی سازی بار ذرات فلوراید به صورت نقطه ایزو الکترونیک در فرایند الکتروکواگولاسیون می انجامد و در ادامه مکانیسم بسته شدن می تواند به تشکیل لخته های ریز نیز بیانجامد. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط گائوداری و همکاران مطابقت دارد (۱۳). در باره غلظت فلوراید می توان نتیجه گیری نمود که غلظت فلوراید باقی مانده در غلظت های فلوراید از ۲ به ۱۲ میلی گرم در لیتر در مدت ۴۵ دقیقه، pH معادل ۷ و چگالی جریان ۴/۵ mA/cm<sup>2</sup> به ترتیب ۰، ۰/۰۶، ۰/۷۶ و ۳/۵۴ می باشند. همچنین می توان استدلال نمود که فلوراید باقی مانده فقط در غلظت ۱۲ میلی گرم در لیتر بیش از گستره

افزایش یافته و اندازه آن‌ها کاهش می‌یابد و این کار حذف سریع‌تر و بیشتر آلاینده‌ها را به دنبال خواهد داشت. این یافته‌ها با مطالعه انجام گرفته توسط آدهوم، گائو، بنناجه مطابقت دارد (۱۹-۱۷). بنناجه نشان داد که افزایش چگالی جریان از  $2/86 \text{ mA/cm}^2$  به  $8/6 \text{ mA/cm}^2$  در pH معادل  $7/4$  به افزایش کارایی حذف فلوراید از  $73\%$  در مدت ۳۰ دقیقه به  $90\%$  در مدت ۱۵ دقیقه می‌انجامد (۱۹). می‌توان نتیجه گرفت که افزایش چگالی جریان به کاهش زمان واکنش می‌انجامد. ملاحظه ناشی از تغییرات زمان واکنش تأیید کننده این یافته است که در طی فرآیند انعقاد ابتدا سرعت میکروفلوک‌ها به علت غلظت فلوراید بیشتر، تولید بیش‌تر هیدروکسید آلومینیوم در اثر خوردگی آند و تشکیل کمپلکس هیدروکسید آلومینیوم با آنیون فلوراید بالاتر است؛ و بنابراین حذف سریع‌تر فلوراید در آغاز مشاهده می‌شود. بعد از گذشت زمان این میکروفلوک‌ها بزرگ‌تر و سنگین‌تر شده و در نتیجه طبق فرآیند انعقاد جارویی ته نشین می‌شوند. سرعت حذف در ۵ دقیقه اول بیش از زمان‌های بعدی است. با این وجود، کارایی حذف بیش‌تر نیازمند زمان واکنش زیادتر است. به طوری که کارایی حذف پس از ۴۵ دقیقه به حداکثر می‌رسد. این یافته با یافته کومار مطابقت دارد. او نشان داد که در حدود ۵۰ تا ۶۰ درصد حذف آرسنیک تنها در ۵ دقیقه ابتدایی از شروع فرایند الکتروکواگولاسیون به وقوع پیوسته و به تدریج کاهش می‌یابد (۱۵). به نظر می‌رسد که مکانیسم حذف فلوراید در فرایند الکتروکواگولاسیون با استفاده از الکترودهای آلومینیومی از کواگولاسیون جذب برابر الگوی زیر پیروی می‌کند که همراه با تولید رسوبات بی شکل سست سفید رنگ است:



آند آلومینیوم مصرفی در مکانیسم حذف فلوراید در فرایند الکتروکواگولاسیون به شکل کاتیون آلومینیوم آزاد می‌شود که به تولید  $\text{Al(OH)}_3$  بی شکل می‌انجامد که به صورت  $\text{Al}_n(\text{OH})_3$  پلیمریزه و در ادامه لخته  $\text{Al(OH)}_3$  به وسیله  $\text{F}^-$  جذب می‌شود. در باره تغییرات آلومینیوم باقی مانده می‌توان نتیجه‌گیری نمود که آلومینیوم باقی مانده پس از الکتروکواگولاسیون در غلظت فلوراید ۶ میلی گرم در لیتر، مدت ۴۵ دقیقه، pH معادل ۷ و

اگرچه بهترین نتایج حذف در غلظت‌های مختلف در pH معادل ۷ به دست آمد اما این اختلاف کارایی بین مقادیر مختلف pH (به ویژه در pH های ۷ و ۴) تفاوت چندانی با یکدیگر نداشتند. این نتیجه تحقیق با تحقیق انجام شده توسط کومار و همکاران مطابقت دارد. نتایج تحقیق آنان نشان دادند که pH اثر قابل ملاحظه‌ای بر کارایی حذف آرسنیک در سیستم الکتروکواگولاسیون نداشته و در گستره وسیعی از pH کارایی حذف تقریباً یکسان حاصل شده است (۱۵). همچنین می‌توان استدلال نمود که تغییرات pH به عنوان سنجشی از تشکیل لخته‌های  $\text{Al(OH)}_3$  محسوب می‌شود. در باره تغییرات pH می‌توان نتیجه‌گیری نمود که pH نمونه‌ها پس از الکتروکواگولاسیون در غلظت فلوراید ۶ میلی گرم در لیتر، مدت ۴۵ دقیقه، pH معادل ۷ و چگالی جریان  $1/5$ ،  $3$  و  $4/5$  میلی آمپر در سانتی متر مربع به ترتیب  $8/06$ ،  $9/05$  و  $9/18$  می‌باشند. می‌توان افزایش pH را به تولید گاز هیدروژن در کاتد نسبت داد. این یافته تحقیق با تحقیق انجام شده توسط چن و همکاران مطابقت دارد (۱۶). گووش و همکاران نشان دادند که pH نمونه‌ها پس از الکتروکواگولاسیون در غلظت فلوراید ۱۰ میلی گرم در لیتر، مدت ۴۵ دقیقه، pH معادل ۷ و چگالی جریان  $2/50$ ،  $3/75$  و  $5/00$  و  $6/25$  میلی آمپر در متر مربع به ترتیب  $7/5$ ،  $7/6$ ،  $7/7$  و  $7/9$  می‌باشند (۱۲). در باره تغییرات اکسیژن محلول می‌توان نتیجه‌گیری نمود که اکسیژن نمونه‌ها پس از الکتروکواگولاسیون در غلظت فلوراید ۶ میلی گرم در لیتر، مدت ۴۵ دقیقه، pH معادل ۷ و چگالی جریان  $1/5$ ،  $3$  و  $4/5$  میلی آمپر در سانتی متر مربع به ترتیب  $8/03$ ،  $8/90$  و  $8/70$  میلی گرم در لیتر می‌باشند. می‌توان کاهش اکسیژن محلول را به تولید گاز هیدروژن در کاتد نسبت داد. ملاحظات ناشی از تغییرات چگالی جریان و مدت زمان واکنش تایید کننده این نتیجه‌گیری است که کارایی حذف فلوراید در سه pH  $4$ ،  $7$  و  $10$  وقتی چگالی جریان و مدت زمان واکنش افزایش می‌یابند افزایش می‌یابد. افزایش چگالی جریان و مدت زمان به علت تولید زیادتر حباب‌ها، اندازه و رشد لخته‌های تولیدی به افزایش کارایی حذف می‌انجامد. این امر بیانگر این حقیقت است که در چگالی جریان بالا مقدار خوردگی در الکتروکواگولاسیون می‌یابد و در نتیجه مقدار آلومینیوم اکسید شده بیشتر می‌شود که نتیجه آن تولید مقدار بالاتر رسوبات و لخته‌های هیدروکسید برای حذف آلاینده است. از طرفی با افزایش چگالی جریان دانسیته حباب‌ها

فلوراید، زمان مورد نیاز برای دستیابی به کارایی حذف مناسب نیز افزایش می‌یابد. نتایج نشان دادند که الکتروکواگولاسیون فرایندی موثر برای فلئور زدایی از آب آشامیدنی محسوب می‌شود.

### تشکر و قدردانی

این مقاله حاصل بخشی از پایان نامه با عنوان بهینه یابی فرایند الکتروکواگولاسیون در حذف فلوراید از آب آشامیدنی در مقطع کارشناسی ارشد در سال ۱۳۹۲ است. نویسندگان مقاله از حمایت آزمایشگاهی گروه مهندسی بهداشت محیط دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران پزشکی، تشکر و قدردانی می‌نمایند.

چگالی جریان ۱/۵، ۳ و ۴/۵ میلی آمپر در سانتی متر مربع به ترتیب ۵۴، ۱۲۲ و ۲۳۰ میلی گرم می‌باشند. گووش نشان داد که غلظت آلومینیوم باقی‌مانده پس از الکتروکواگولاسیون در غلظت فلوراید ۱۰-۴ میلی گرم در لیتر و چگالی جریان ۶۲۵-۵۰۰ آمپر در متر مربع به ترتیب ۱۴۷ و ۱۸۰ نانومتر می‌باشند (۲۰).

### نتیجه‌گیری

با توجه به نتایج به دست آمده میزان حذف فلوراید با افزایش چگالی جریان و مدت زمان واکنش افزایش می‌یابد. با افزایش غلظت

## REFERENCES

- Mohapatra M, Anand S, Mishra BK, Giles DE, Sing P. Review of fluoride removal from drinking water. *Journal of Environmental Management*. 2009; 91 (1): 67-77.
- Zhu J, Zhao H, Ni J. Fluoride distribution in electrocoagulation defluoridation process. *Separation Purification Technology*. 2007; 56 (2): 184-91.
- Tahaikt M, Habani R, Haddou A, Achary I, Amor Z, Taky M. Fluoride removal from groundwater by nanofiltration. *Journal of Desalination*. 2007; 212 (1-3): 46-53.
- Pontié M, Diawara C, Lhassani A, Dach H, Rumeau M, Buisson H, et al. Water Defluoridation Processes: A Review. Application: Nanofiltration (NF) for Future Large-Scale Pilot Plants. *Advances in Fluorine Science*. 2006;2:49-80.
- Viswanathan N, Sairam S, Meenakshi S. Development of multifunctional chitosan beads for fluoride removal. *Journal of Hazardous Materials*. 2009; 232 (2): 280-90.
- 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): 452-57.
- Emamjomeh MM, Sivakumar M. Review of pollutants removed by electrocoagulation and electrocoagulation/flotation processes. *Journal of Environmental Management*. 2009; 90 (5): 1663-79.
- Drouiche N, Ghaffour N, Lounici H, Mameri N, Maallem A, Mahmoudi H. Electrochemical treatment of chemical mechanical polishing wastewater: removal of fluoride—sludge characteristics—operating cost. *Desalination*. 2008;223(1):134-42.
- Sinha R, Khazanchi I, Mathur S. Fluoride removal by a continuous flow electrocoagulation reactor from groundwater of shivdaspura. *Journal of engineering research and applications*. 2012; 2: 1336-41.
- Moussavi G, Khosravi R, Farzadkia M. Removal of petroleum hydrocarbons from contaminated groundwater using an electrocoagulation process: Batch and continuous experiments. *Desalination*. 2011;278(1):288-94.
- HAPA, AWWA, WEF. Standard methods for the examination of water and wastewater. 21, editor. Washington DC: APHA; 2005.
- Ghosh D, Medhi CR, Purkait MK. Techno-economic analysis for the electrocoagulation of fluoride-contaminated drinking water. *Toxicological and Environmental Chemistry*. 2011; 93 (3): 424-37.
- Chaudhary AJ, Goswami NC, Grimes SM. Electrolytic removal of hexavalent chromium from aqueous solutions.

- Journal of chemical technology and Biotechnology. 2003;78(8):877-83.
14. Essadki AH, Gourich B, Vial C, Delmas H, Bennajah M. Defluoridation of drinking water by electrocoagulation/ electroflotation in a stirred tank reactor with a comparative performance to an external-loop airlift reactor. Journal of hazardous materials. 2009;168(2):1325-33.
  15. Ratna Kumar P, Chaudhari S, Khilar KC, Mahajan S. Removal of arsenic from water by electrocoagulation. Chemosphere. 2004;55(9):1245-52.
  16. Chen X, Chen G, Yue PL. Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation. Separation and purification Technology. 2000;19(1):65-76.
  17. Adhoum N, Monser L. Decolourization and removal of phenolic compounds from olive mill wastewater by electrocoagulation. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification. 2004;43(10):1281-7.
  18. Gao P, Chen X, Shen F, Chen G. Removal of chromium (VI) from wastewater by combined electrocoagulation– electroflotation without a filter. Separation and purification Technology. 2005;43(2):117-23.
  19. Bennajah M, Maalmi M, Darmane Y, Touhami M. Defluoridation of drinking water by electrocoagulation/ electroflotation: kinetic study. Journal of urban and Environmental Engineering. 2010; 4 (1): 37-45.
  20. Ghosh D, Medhi C, Purkait M. Treatment of fluoride containing drinking water by electrocoagulation using monopolar and bipolar electrode connections. Chemosphere. 2008;73(9):1393-400.



## Removal of Fluoride from Drinking Water Using an Electrocoagulation Reactor, Batch Experiments

Aliannejad SH<sup>1</sup>, Kashi G<sup>2\*</sup>, Khezri SM<sup>1</sup>, Mashinchiyan A<sup>3</sup>

### Abstract

**Backgrounds and Objective:** Usage electrocoagulation methods for removal chemical contaminants are widely used in the recent years. The aim of this research is to investigate fluoride removal, agent dental and skeletal fluorosis, from drinking water by batch electrocoagulation reactor with using aluminum electrode.

**Materials and Methods :**In this study, the drinking water sample is prepared by plastic batch reactor by monopole electrode. Removal efficiency is studied in different conditions, included pH (4, 7, and 10), reaction time (5, 10, 15, 30, and 45 min), distance between electrode (2 cm), and current density (1.5, 3, and 4.5 mA/cm<sup>2</sup>).

**Results:** In electrocoagulation reactor, percentage of removal fluoride 2 mg/L, current density 4.5 mA/cm<sup>2</sup> and reaction time 30 min in pH 4, 7 and 10 are obtained 96.5%, 100% and 90.5%, respectively. In electrocoagulation reactor, percentage of removal fluoride 12 mg/L removal in distance 2 cm, current density 4.5 mA/cm<sup>2</sup>, and reaction time 30 min in pH 4, 7, and 10 are obtained 60.7%, 64%, and 56%, respectively.

**Conclusion :**The findings indicated that fluoride removal efficiency is increased with increasing current density and reaction time. The results indicate that increasing the concentration of fluoride ions, the time required to achieve good efficiency should also increase. It can be concluded that the electrocoagulation technology is an effective process for defluoridation of drinking waters.

**Keywords :**Batch experiments, Defluoridation, Drinking water, Electrocoagulation.

1. College of Environment and Energy, Science and Research branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

2. Department of Environmental Health Engineering, Medical Tehran branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

3. Department of Marine Science and Technology, Science and Research branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

\* **Corresponding Author:** g.kashi@yahoo.com