

Fluoride removal from drinking water using the combination of electro and chemical coagulation processes

Gity Kashi*¹, Shahrzad Khoramnejadian², Niloofar Nasehi³

1- Department of Environmental Health, School of Health, Islamic Azad University, Tehran Medical Branch, Tehran, Iran

2- Department of Environment, School of Science and Research, Islamic Azad University, Damavand Science and Research Branch, Damavand, Iran

3- MSc Student of Department of Environment, School of Science and Research, Islamic Azad University, Damavand Science and Research Branch, Damavand, Iran

ABSTRACT

Background and Aims: Fluoride is a toxic chemical for human. The present study was aimed to investigate fluoride removal from urban drinking water by the combination of batch electrochemical reactor, using copper-copper electrodes, and poly aluminum chloride (PAC) as chemical coagulant.

Materials and Methods: Fluoride contaminated drinking water samples were prepared and thence the effect of different variables including pH (4.2-9), initial fluoride concentration (3-9 mg/L), contact time (10-40 min), PAC concentration (10-50 mg/L), distance between electrodes (1.5 cm), and current density (1.5-4.5 mW/cm²) on fluoride removal efficiency was studied.

Results: The experimental results have shown that the maximum removal efficiency of 87.0% was obtained in the electrochemical reactor for 9 mg F⁻/L at 1.5 cm distance between electrodes, current density of 4.5 mA/cm², electrolysis time of 40 min and pH 7.5. Similarly, the maximum fluoride removal (100%) was obtained when the operating conditions were set as electrode distance 1.5 cm, current density 3 mA/cm², electrolysis time 40 min and pH 7.5. Incorporating PAC in electrochemical reactor resulted in a very high fluoride removal (over 99%) from high-fluoride water (9 mg/L) when distance between electrodes, current density, contact time, and pH were 1.5 cm, 4.5 mA/cm², 10 min and 7.5, respectively. At a contact time of 10 min, pH 7.5 and 10 mg PAC/L, the enhanced coagulation achieved a complete fluoride removal (100%) when the distance between electrodes and current density were respectively 1.5 cm and 4.5 mA/cm².

Conclusion: It has been found that fluoride removal from high-fluoride contaminated water in an electrochemical batch reactor is practicable. The enhanced coagulation process with copper-copper electrodes and PAC was more effective for fluoride removal as compared with the use of batch electrochemical reactor solely.

Key words: Copper electrode, drinking water, electrochemical, Fluoride, poly aluminum chloride.

*Corresponding Author:

Department of Environmental Health, School of Health, Islamic Azad University, Tehran Medical Branch, Tehran, Iran

Tel: +982122006667

Email: g.kashi@yahoo.com

Received: 17 August 2014

Accepted: 14 March 2015

بررسی کارایی فرآیند تلفیقی انعقادشیمیایی و الکتریکی در حذف فلئوراز آب آشامیدنی

گیتی کاشی^۱، شهرزاد خرم نژادیان^{۲*}، نیلوفر ناصحی^۳

^۱ استادیار گروه بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد علوم پزشکی تهران
^۲ استادیار گروه محیط زیست، دانشکده علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد پردیس علوم و تحقیقات دماوند
^۳ دانشجوی کارشناسی ارشد منابع طبیعی، آلودگی محیط زیست، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد پردیس علوم و تحقیقات دماوند

چکیده

زمینه و هدف: فلوراید ماده سمی برای انسان محسوب می‌شود. هدف در این تحقیق کاربردی-تحلیلی بررسی تعیین درصد حذف فلوراید، از آب آشامیدنی شهری توسط رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی پلی آلومینیوم کلراید (PAC) مرکب از الکترودهای مس-مس می‌باشد.

مواد و روش‌ها: نمونه آب آشامیدنی شهری دارای فلوراید تهیه گردید. کارایی حذف در حالت‌های مختلف متغیرهای pH (۹-۴/۲)، زمان تماس (۴۰-۱۰ دقیقه)، غلظت PAC (۵۰-۱۰ mg/L)، فاصله الکتروده (۱/۵ cm)، غلظت فلوراید (۹-۳ mg/L) و چگالی جریان ($1/5-4/5 \text{ mA/cm}^2$) مورد بررسی قرار گرفت.

یافته‌ها: مقدار حذف غلظت فلوراید ۹ mg/L در فاصله ۱/۵ cm الکتروده، شرایط بهینه چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ و زمان الکترولیز ۴۰ دقیقه در pH برابر ۷/۵ در سیستم الکتروشیمیایی ۸۷٪ بدست آمد. مقدار حذف غلظت فلوراید ۳ mg/L در فاصله ۱/۵ cm الکتروده، در شرایط بهینه چگالی جریان 3 mA/cm^2 و زمان الکترولیز ۴۰ دقیقه در pH برابر ۷/۵ در سیستم الکتروشیمیایی ۱۰۰٪ بدست آمد. مقدار حذف غلظت فلوراید ۹ mg/L در سیستم تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی در فاصله ۱/۵ cm الکتروده، شرایط بهینه چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ ، زمان ۱۰ دقیقه و pH برابر ۷/۵ در غلظت PAC ۳۰ میلی گرم در لیتر، ۱۰۰٪ بدست آمد. حذف غلظت فلوراید ۳ mg/L نیز در سیستم تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC در فاصله ۱/۵ cm الکتروده، شرایط بهینه چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ ، زمان ۱۰ دقیقه و pH برابر ۷/۵ در غلظت PAC ۱۰ mg/L ۱۰۰٪ بدست آمد.

نتیجه گیری: یافته‌ها نشان دادند که فلئورزدایی آب آلوده، بوسیله رآکتور تلفیقی الکتروشیمیایی ناپیوسته و ماده شیمیایی PAC عملی است و رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC موثرتر از رآکتور ناپیوسته الکتروشیمیایی است.

کلید واژه‌ها: آب آشامیدنی، الکتروشیمیایی، الکتروده مس، پلی آلومینیوم کلراید، فلوراید

*آدرس نویسنده مسئول:

تهران، خیابان شریعتی، خیابان عطاری مقدم، گروه بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد علوم پزشکی تهران، تلفن: ۰۲۱-۲۲۰۰۶۶۶۷

Email: g.kashi@yahoo.com

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۳/۰۵/۲۶

تاریخ پذیرش مقاله: ۱۳۹۳/۱۲/۲۳

مقدمه

کیفیت ضعیف منابع آب آشامیدنی سطحی و زیرزمینی و مصرف آب آلوده به ترکیبات آلی و معدنی شیمیایی سلامت افراد را تهدید می‌کند [۱]. بنابراین غلظت فلوراید منابع آب آشامیدنی سطحی و زیرزمینی از متغیرهای تعیین کننده انتخاب منابع تأمین آب در جامعه‌های شهری و روستایی در کشورهای توسعه یافته و پیشرفته محسوب می‌شود [۲].

آنیون فلوراید، الکترون‌گاترترین عنصر جدول تناوبی است [۳]. آب آشامیدنی و چای از جمله مهم ترین منابع طبیعی دریافت فلوراید محسوب می‌شوند [۴]. صنعت آلومینیوم سازی، شیشه سازی و کود فسفاته از جمله منابع انسان ساخت ورود فلوراید محسوب می‌شوند [۵]. سازمان بهداشت جهانی مقدار فلوراید در آب آشامیدنی را $0.7-1.0 \text{ mg/L}$ اعلام نمود [۶]. بیماری‌های دندانی، استخوانی، کاهش ضریب هوشی کودک، تغییر در ساختمان DNA، کاهش عملکرد تیروئید، اختلال سیستم عصبی- ماهیچه‌ای و بروز سرطان مثانه و ریه از جمله نشانگان افزایش فلوراید آب آشامیدنی محسوب می‌شوند [۷]. غلظت زیاد فلوراید در منابع آب زیرزمینی کشورهای ایران، ترکیه، سوریه، عراق، هند، الجزایر، مراکش و بخش‌های جنوبی کشور ایالات متحده آمریکا گزارش شده است [۸].

شیوع فلونوروزیس دندانی و استخوانی از شهرهای ایران نظیر بوشهر، برازجان، بندرعباس، پلدشت، دامغان، کرمان و ماکو به علت غلظت فلوراید بیش از 1.0 mg/L آب آشامیدنی گزارش شده است [۳]. دو گروه فرآیندهای شناخته شده تصفیه فلوراید از آب آشامیدنی، جذب روی آلومینای فعال و رزین تبادل یونی انتخابی هستند که هزینه بالا، ظرفیت محدود و روش‌های احیاء از جمله معایب آن‌ها محسوب می‌شوند [۹]. روش‌های جایگزین از قبیل روش‌های غشایی مورد استفاده قرار می‌گیرند که از هزینه‌های نسبتاً زیاد مصرف انرژی و مدیریت پساب تولیدی برخوردار هستند [۹]. بنابراین، استفاده از فناوری‌های کارآمدتر برای فلونورزدایی ضرورت دارد. اخیراً روش الکتروشیمیایی، به عنوان روش امیدبخش در فلونورزدایی آب مد نظر قرار گرفته است. فناوری الکتروشیمیایی، واحد فرآیندی محسوب می‌شود که حذف در اثر واکنش‌های انتقال الکترون در سطح مشترک الکتروود و آب اتفاق می‌افتد [۱۰]. عوامل موثر بر روی عملکرد فرآیند الکتروشیمیایی شامل چگالی جریان، pH و هدایت الکتریکی مورد استفاده می‌باشند. تولید لجن کم و زمان تصفیه کوتاه از جمله مزایای حذف به روش الکتروشیمیایی محسوب می‌شوند [۱۱].

عمل اکسیداسیون و احیا در فرآیند الکتروشیمیایی به ترتیب بر روی الکترودهای آند و کاتد همراه با تولید گاز هیدروژن در کاتد و تولید کاتیون فلزی در آند انجام می‌شود [۱۲]. بسیاری از محققان در مورد عملکرد الکتروشیمیایی در حذف آلاینده‌ها از آب آشامیدنی تحقیق نموده‌اند. برای مثال سینها و همکاران در سال ۲۰۱۲ روی حذف فلوراید از آب زیرزمینی توسط الکتروکواگولاسیون تحقیق نموده و متوجه شد که روش الکتروکواگولاسیون در مقایسه با فناوری‌های آلومینای فعال و نالگودا آلومینیوم باقی مانده کم تری در آب آزاد می‌کند [۱۳]. تاستابان و همکاران در سال ۲۰۱۳ روی حذف فلوراید از آب سنتتیک با الکتروود آلومینیومی تحقیق نموده و متوجه شدند که راندمان حذف فلوراید به مقدار چگالی جریان بستگی دارد [۱۴]. هدف در این تحقیق بررسی حذف فلوراید از آب آشامیدنی شهری به روش تلفیق الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی پلی آلومینیوم کلراید (PAC) می‌باشد. همچنین اثرات pH، زمان الکترولیز، غلظت PAC، غلظت فلوراید و چگالی جریان مورد بررسی قرار گرفتند.

مواد و روش‌ها

تهیه نمونه آب دارای فلوراید

محلول سنتتیک فلوراید 100 mg/L از طریق انحلال ۲۲۱ میلی گرم فلوراید سدیم (مرک) در ۱۰۰۰ میلی لیتر آب مقطر دو بار تقطیر تهیه شد. با انجام رقیق سازی (با نسبت ۱ به ۱۶،۳۳ و ۱۱) غلظت فلوراید ۳، ۶ و ۹ میلی گرم در لیتر آب حاصل شد. نمونه‌های آب مورد استفاده از شبکه توزیع آب آشامیدنی تهران تهیه شد. جدول ۱ مقادیر متوسط غلظت ویژگی‌های فیزیکوشیمیایی آب شهری را نشان می‌دهد.

جدول ۱- مقادیر متوسط غلظت ویژگی‌های فیزیکوشیمیایی آب شهری

مقدار	واحد	متغیر
۸۰۵	mg/L	اکسیژن محلول
۲۷۹	mV	پتانسیل اکسیداسیون و احیاء (ORP)
۷/۱۹	-	pH
۲۰	°C	حرارت
۹۳/۸	mg/L	سولفات
۱۲۲	mg/L as CaCO ₃	قلیائیت کل
۱۶۲	mg/L as CaCO ₃	کلسیم
۹/۵	mg/L	نترات

آماده سازی الکترودها

محلول دترجنت و آب برای تمیز کردن سطح الکترودها قبل از کاربرد مورد استفاده قرار گرفت. الکترودها پس از شستشو با آب مقطر توزین، خشک و در رآکتور قرار می‌گرفتند [۱۵].

$$\text{Removal}(\%) = \left(1 - \frac{C_t}{C_{t0}}\right) \times 100 \quad (1)$$

که: C_t و C_{t0} به ترتیب غلظت فلوراید پس از الکترولیز در زمان t و غلظت فلوراید اولیه در زمان صفر است.

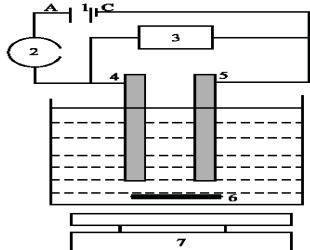
هزینه فرآیند الکترولیز به وسیله الکتروود مصرفی و انرژی الکتریکی مصرفی تعیین می‌شود. هزینه بهره برداری سیستم الکترولیز برحسب kWh/kg فلوراید حذف شده به وسیله رابطه (۲) محاسبه شد:

$$\text{Operational cost} = C_{\text{energy}} + C_{\text{electrod}} \quad (2)$$

که: C_{energy} و C_{electrod} به ترتیب هزینه انرژی الکتریکی مصرفی (kWh/kg) و الکتروود مصرفی آند مس (Rial/kg) برای فلوراید حذف شده است.

$$EE \left(\frac{\text{kWh}}{\text{kg}} \text{ fluoride removed}\right) = \left(\frac{VIt \times 1000}{60 \times (C_{t0} - C_t)}\right) \quad (2)$$

که: V ولتاژ الکتریکی (برحسب ولت)، I شدت جریان (برحسب آمپر)، t زمان (برحسب دقیقه) است.



شکل ۱- طرح شماتیک رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده

شیمیایی PAC

- ۱- منبع تغذیه ۲- آمپرسنج (۱-۵ آمپر) ۳- ولت سنج (۶۰-۱ ولت) ۴- الکتروود مس قطب منفی ۵- الکتروود مس قطب مثبت ۶- تزریق PAC ۷- میله مغناطیسی ۸- همزن مغناطیسی

یافته‌ها

اثر غلظت فلوراید بر کارایی حذف فلوراید در رآکتور

ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC

کارایی فرآیند حذف با افزایش غلظت فلوراید از ۳ به ۹ میلی گرم در لیتر در رآکتور ناپیوسته الکتروشیمیایی، شیمیایی و تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC کاهش می‌یابد (نمودار ۱). افزایش غلظت فلوراید از ۳ به ۶ میلی گرم در لیتر در pH بهینه ۷/۵، چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ و فاصله الکتروود $1/5 \text{ cm}$ به افزایش زمان الکترولیز از کم تر از ۲۰ دقیقه به کم تر از ۴۰ دقیقه به ۱۰۰٪ حذف منجر می‌شود (جدول ۲). راندمان حذف غلظت 9 mg/L فلوراید در چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ ، فاصله الکتروود $1/5 \text{ cm}$ و زمان الکترولیز 1 min در pH بهینه ۷/۵ در رآکتور الکتروشیمیایی بدست آمد.

آماده سازی رآکتور ناپیوسته

رآکتور ناپیوسته آرایش یک قطبی با مشخصات زیر جهت انجام آزمایشات مورد استفاده قرار گرفت. ظرف پلاستیکی 250 cm^3 ، دو الکتروود مس با مساحت 40 cm^2 (مساحت موثر 32 cm^2)، فاصله الکتروودها از کف 1 cm و فاصله الکتروودها $1/5 \text{ cm}$ سانتی متر می‌باشد. منبع برق جریان مستقیم (ایران جهش) دارای توان الکتریکی حداکثر ۶۰ وات و همزن مغناطیسی با شدت 100 rpm (مدل Aika) برای یکنواخت نمودن نمونه آب مورد استفاده قرار گرفت (شکل ۱). کلیه آزمایش‌ها در دمای آزمایشگاه (20°C) انجام شد. حجم آب 200 cm^3 در نظر گرفته می‌شد [۱۵].

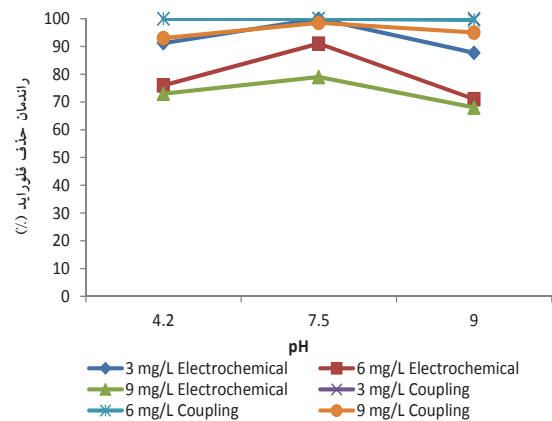
روش‌های آزمایشگاهی

آزمایشات ۳ بار تکرار و مقدار متوسط آن‌ها گزارش گردید. برای ارزیابی کردن تاثیر جریان مستقیم بر فرآیند حذف و براساس روش طراحی آزمایشات، نمونه‌ها در pH (۲/۴، ۷/۵، ۹) و زمان واکنش (۳۰، ۶۰ و ۹۰ دقیقه)، غلظت فلوراید (۳، ۶، و ۹ میلی گرم در لیتر)، غلظت PAC (۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰ و ۵۰ میلی گرم در لیتر) و در چگالی جریان‌های مختلف (۱/۵، ۳، و ۴/۵ میلی آمپر بر سانتی متر مربع) تحت الکترولیز قرار گرفتند. تعداد نمونه‌های مورد بررسی با توجه به روش فاکتوریل 207 مورد بدست آمد. لازم به ذکر است که غلظت فلوراید حدود $2/4 \text{ mg/L}$ در منابع آب آشامیدنی شهر زاهدان گزارش شده است. آزمایشات بعمل آمده پس از کاربرد چگالی جریان و مدت واکنش شامل pH، حرارت و فلوراید می‌شوند. اندازه گیری غلظت فلوراید باقی مانده پس از صاف کردن توسط صافی غشایی (انگلستان - Watman) با اندازه $0/45$ میکرون به وسیله دستگاه اسپکتروفتومتر (مدل آمریکا - HACH-DR/0010) در طول موج 580 nm با روش SPADNS (دارای گستره شناسایی $0-2 \text{ mg/L F}^-$) طبق دستورالعمل‌های موجود در کتاب روش‌های استاندارد جهت انجام آزمایش‌های آب و فاضلاب انجام گرفت [۱۶]. این روش براساس واکنش فلوراید با شناساگر زیرکونیوم است که فلوراید با بخشی از شناساگر ترکیب و محلول بی‌رنگی ایجاد می‌کند. مقدار بی‌رنگ شدن، تابعی از غلظت فلوراید است. اندازه گیری pH و حرارت توسط دستگاه pH متر (Hack, America) انجام گرفت. برای تنظیم pH از دستگاه pH متر و محلول اسید سولفوریک و سود ۱ نرمال استفاده شد.

روش‌های محاسباتی

راندمان حذف فلوراید در این تحقیق تحلیلی - کاربردی به وسیله رابطه (۱) محاسبه شد:

حذف ۱۰۰٪ فلوراید در رآکتور انعقادشیمیایی با غلظت ۹ mg/L PAC بعد از ۹۰ min تماس انجام شده است. افزایش غلظت فلوراید از ۳ به ۹ میلی گرم در لیتر در pH بهینه ۷/۵، زمان تماس ۹۰ min به افزایش غلظت PAC از ۲۰ به ۴۰ میلی گرم در لیتر به ۱۰۰٪ حذف منجر می‌شود (جدول ۳). راندمان حذف غلظت ۹ mg/L فلوراید در غلظت ۴۰ mg/L PAC و زمان تماس ۹۰ min در pH بهینه ۷/۵ در رآکتور انعقادشیمیایی بدست آمد. افزایش غلظت فلوراید از ۳ به ۹ میلی گرم در لیتر در pH بهینه ۷/۵، چگالی جریان ۴/۵ mA/cm²، غلظت PAC ۲۰ mg/L و فاصله الکترود ۱/۵ cm به افزایش زمان تماس از ۱۰ تا ۲۰ دقیقه به ۱۰۰٪ حذف منجر می‌شود (جدول ۴). راندمان حذف غلظت ۹ mg/L فلوراید در فاصله ۱/۵ cm الکترود، غلظت ۱۰ mg/L PAC، چگالی جریان ۴/۵ mA/cm² و pH بهینه ۷/۵ در زمان تماس ۴۰ دقیقه در رآکتور تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC بدست آمد.



نمودار ۱ - درصد حذف فلوراید در رآکتور تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC از آب آشامیدنی ۳، ۶ و ۹ میلی گرم در لیتر در زمان تماس ۲۰ min، چگالی جریان ۴/۵ mA/cm²، غلظت PAC ۱۰ mg/L و در pHهای مختلف

جدول ۲ - نتایج اثر الکترولیز در حذف فلوراید از آب آشامیدنی ۳، ۶ و ۹ میلی گرم در لیتر در فاصله ۱/۵ cm الکترودها در pH، زمان الکترولیز و چگالی جریان‌های مختلف

غلظت فلوراید (mg/L)	چگالی جریان (mA/cm ²)	درصد راندمان حذف فلوراید در pH معادل ۹/۲			درصد راندمان حذف فلوراید در pH معادل ۷/۵			درصد راندمان حذف فلوراید در pH معادل ۹		
		زمان تماس (min)			زمان تماس (min)			زمان تماس (min)		
		۴۰	۲۰	۱۰	۴۰	۲۰	۱۰	۴۰	۲۰	۱۰
۹	۱/۵	۳۹/۰	۵۱/۰	۶۲/۸	۴۴/۲	۵۷/۳	۶۸/۶	۳۴/۱	۴۶/۹	۵۷/۵
	۳	۵۴/۵	۶۵/۱	۷۰/۰	۶۱/۵	۷۱/۱	۷۶/۷	۴۹/۹	۶۰/۰	۶۵/۰
	۴/۵	۶۸/۵	۷۳/۰	۸۱/۰	۷۵/۵	۷۹/۰	۸۷/۰	۶۳/۵	۶۸/۰	۷۶/۰
۶	۱/۵	۴۱/۵	۵۴/۰	۶۵/۸	۵۱/۰	۶۳/۵	۷۵/۳	۳۶/۵	۴۹/۰	۶۰/۸
	۳	۵۷/۳	۶۸/۳	۷۳	۶۷/۳	۷۸/۳	۸۷/۰	۵۲/۳	۶۳/۳	۶۸/۰
	۴/۵	۷۱/۸	۷۶/۰	۸۵/۵	۸۲/۲	۹۱/۰	۱۰۰/۰	۶۶/۸	۷۱/۰	۸۰/۵
۳	۱/۵	۶۰/۵	۷۳/۰	۷۹/۰	۶۸/۰	۸۰/۵	۸۶/۵	۵۷/۵	۷۰	۷۶
	۳	۷۵/۵	۸۲/۰	۸۸/۰	۸۳/۵	۹۰/۰	۱۰۰/۰	۷۲	۷۸/۵	۸۴/۵
	۴/۵	۸۵/۰	۹۱/۲	۱۰۰/۰	۹۳/۵	۱۰۰/۰	-	۸۱/۵	۸۷/۷	۹۳/۵

جدول ۳ - نتایج اثر انعقادشیمیایی با PAC در حذف فلوراید از آب آشامیدنی ۳، ۶ و ۹ میلی گرم در لیتر در pH، زمان تماس و غلظت‌های مختلف PAC

غلظت فلوراید (mg/L)	غلظت PAC (mg/L)	درصد راندمان حذف فلوراید در pH معادل ۹/۲			درصد راندمان حذف فلوراید در pH معادل ۷/۵			درصد راندمان حذف فلوراید در pH معادل ۹		
		زمان تماس (min)			زمان تماس (min)			زمان تماس (min)		
		۳۰	۶۰	۹۰	۳۰	۶۰	۹۰	۳۰	۶۰	۹۰
۹	۱۰	۲۷/۰	۳۸/۰	۴۹/۰	۵۰/۰	۶۰/۰	۷۱/۰	۳۹/۰	۴۹/۰	۵۹/۸
	۲۰	۳۹/۴	۵۰/۰	۶۲/۰	۶۱/۵	۷۲/۰	۸۴/۰	۵۰/۵	۶۱/۰	۷۳/۰
	۳۰	۵۲/۰	۶۵/۰	۷۵/۰	۷۴/۰	۸۷/۰	۹۷/۰	۶۳/۰	۷۶/۰	۸۶/۰
	۴۰	۶۷/۰	۷۷/۳	۸۹/۰	۹۰/۰	۹۹/۳	۱۰۰/۰	۷۸/۰	۸۸/۳	۹۹/۰
۶	۱۰	۳۸/۰	۴۸/۰	۶۰/۰	۶۱/۰	۷۰/۰	۸۲/۰	۴۹/۰	۵۹/۰	۷۱/۰
	۲۰	۵۰/۵	۶۳/۰	۷۴/۰	۷۲/۵	۸۵/۰	۹۶/۰	۶۱/۵	۷۴/۲	۸۵/۳
	۳۰	۶۵/۰	۷۷/۳	۸۸/۳	۸۷/۰	۹۹/۳	۱۰۰/۰	۷۶/۰	۸۸/۵	۹۹/۵
	۴۰	۷۸/۰	۸۹/۵	۱۰۰/۰	۹۹/۹	۱۰۰/۰	-	۸۹/۰	۹۹/۶	۱۰۰/۰
۳	۱۰	۴۹/۰	۶۰/۳	۷۳/۳	۷۱/۰	۸۲/۳	۹۵/۳	۶۰/۰	۷۱/۳	۸۴/۳
	۲۰	۶۲/۰	۷۵/۶	۸۷/۰	۸۴/۰	۹۷/۶	۱۰۰/۰	۷۳/۰	۸۸/۶	۹۸/۰
	۳۰	۷۶/۳	۸۸/۰	۱۰۰/۰	۹۸/۳	۱۰۰/۰	-	۸۹/۳	۹۹/۰	۱۰۰/۰

اثر pH بر کارایی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته

تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC

کارایی فرآیند حذف فلوراید در رآکتورهای الکتروشیمیایی، انعقادشیمیایی و تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC در pH معادل ۷/۵ در غلظت ۳ تا ۹ میلی گرم در لیتر فلوراید افزایش می یابد (نمودار ۲). pH معادل ۷/۵ به چگالی جریانی کمتری در مقایسه با دو pH دیگر نیاز دارد.

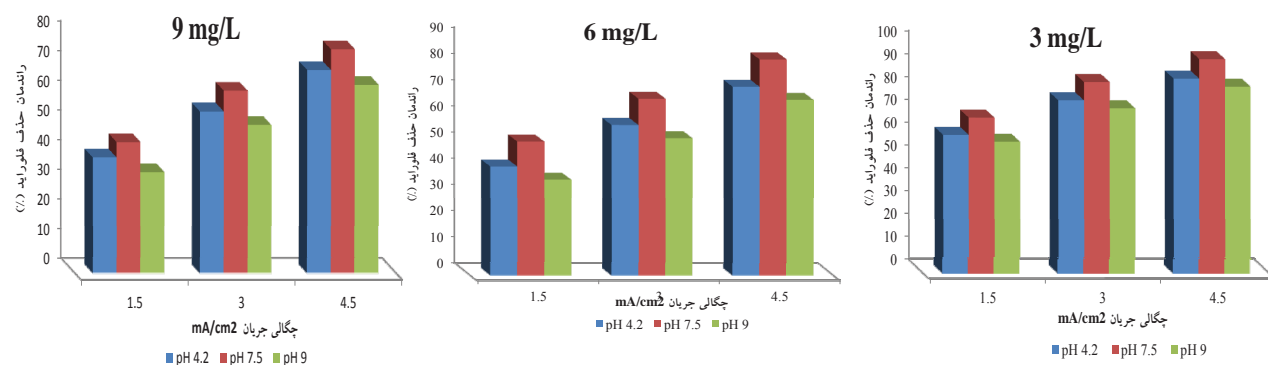
اثر چگالی جریان الکتریکی بر کارایی حذف فلوراید در

رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC

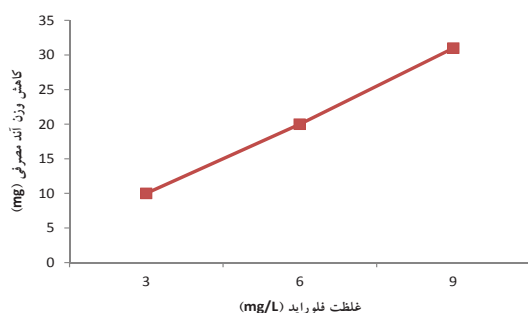
کارایی فرآیند حذف فلوراید با افزایش چگالی جریان، غلظت PAC و زمان تماس در ۳ تا ۹ میلی گرم در لیتر افزایش می یابد (نمودار ۲ و ۳). بهترین چگالی جریان در رآکتور الکتروشیمیایی برای دست یابی به حذف کامل فلوراید در pH ۷/۵، ۳ و ۴/۵ میلی آمپر بر سانتی متر مربع به ترتیب برای غلظت ۳ و ۶ میلی گرم در لیتر فلوراید است. بهترین غلظت PAC در رآکتور انعقادشیمیایی برای دست یابی به حداکثر حذف فلوراید در pH ۴/۲، ۷/۵ و ۹ به ترتیب ۳۰، ۴۰ و ۵۰ میلی گرم در لیتر برای غلظت فلوراید ۳، ۶ و ۹ میلی گرم در لیتر است.

جدول ۴- نتایج اثر تلفیق الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC در حذف فلوراید از آب آشامیدنی، با چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ ، غلظتهای (۳، ۶ و ۹) میلی گرم در لیتر، فاصله $1/5 \text{ cm}$ الکتروود و pH بهینه ۷/۵ در زمان تماس و غلظت های مختلف PAC

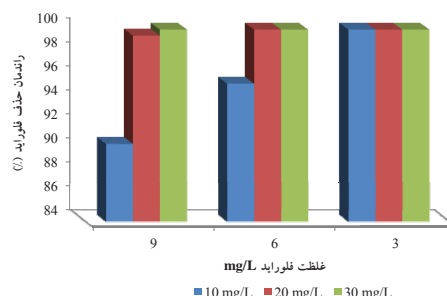
غلظت فلوراید (mg/L)	غلظت PAC (mg/L)	درصد راندمان حذف فلوراید در pH بهینه ۷/۵		
		زمان تماس (min)		
		۱۰	۲۰	۴۰
۱۰	۱۰	۹۰/۵	۹۸/۵	۱۰۰/۰
	۲۰	۹۹/۵	۱۰۰/۰	-
	۳۰	۱۰۰/۰	-	-
۶	۱۰	۹۵/۵	۱۰۰/۰	-
	۲۰	۱۰۰/۰	-	-
	۳۰	-	-	-
۳	۱۰	۱۰۰/۰	-	-
	۲۰	-	-	-
	۳۰	-	-	-



نمودار ۲- درصد حذف فلوراید در رآکتور الکتروشیمیایی از آب آشامیدنی ۳، ۶ و ۹ میلی گرم در لیتر در زمان تماس ۱۰ دقیقه، فاصله الکتروود $1/5 \text{ cm}$ در pH و چگالی جریان های مختلف



نمودار ۴ - کاهش وزن آند مصرفی در رآکتور تلفیقی الکتروشیمیایی و PAC از آب آشامیدنی در زمان تماس ۱۰ دقیقه، pH ۷/۵، چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ ، غلظت PAC ۱۰ mg/L در غلظت های مختلف فلوراید



نمودار ۳- درصد حذف فلوراید در رآکتور تلفیقی الکتروشیمیایی و PAC از آب آشامیدنی ۳، ۶ و ۹ میلی گرم در لیتر در زمان تماس ۱۰ دقیقه، pH ۷/۵، چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ در غلظت های مختلف PAC

به افزایش تولید هیدروژن منجر شده است. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط عزیزاده و همکاران در سال ۲۰۱۳ و یلماز و همکاران در سال ۲۰۰۸ مطابق دارد [۱۷ و ۱۸]. عزیزاده نشان داد که افزایش غلظت رنگ راکتیو پرتقالی ۱۶ از ۵۰ به ۲۵۰ میلی گرم در لیتر در مدت الکترولیز ۵ min و چگالی جریان 20 mA/cm^2 به کاهش حدود ۱۰٪ راندمان حذف منجر می شود. غلظت فلوراید باقی مانده در غلظت های فلوراید از ۳ به ۹ میلی گرم در لیتر در مدت ۴۰ min pH معادل ۷/۵ و چگالی جریان $4/5 \text{ mA/cm}^2$ به ترتیب ۰/۰، ۰/۷۶ و ۱/۱۷ می باشند. همچنین می توان استدلال نمود که فلوراید باقی مانده از گستره رهنمود سازمان بهداشت جهانی ($1/5 \text{ mg/L}$) تجاوز نکرده است.

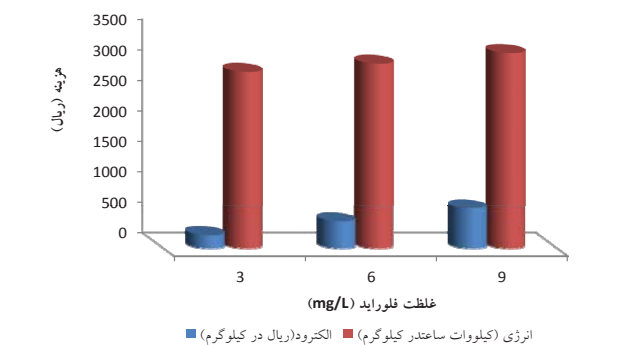
اثر pH بر کارایی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC

در خصوص بررسی کارایی حذف فلوراید در سه pH ۴/۲، ۷/۵ و ۹ می توان بیان نمود که مقدار حذف فلوراید با افزایش pH به علت اکسیداسیون آنیون هیدروکسید در آند کاهش می یابد. به عبارت دیگر افزایش pH به تشکیل لخته های هیدروکسید مس دارای ظرفیت جذب کم تر منجر می شود. بهترین pH برای تولید حداکثر کمپلکس های مس، pH معادل ۷/۵ است. به عبارت دیگر pH معادل ۷/۵، بهینه نیز محسوب می شود. مولکول فلوراید به جای لیگاند عمل می کند، با بخشی از هیدرات های مس باند می شود و مکانیسم های ترسیب و جذب اتفاق می افتد. بنابراین می توان نتیجه گیری نمود که افزایش واکنش های شیمیایی در pH معادل ۷/۵ به حداکثر تولید غلظت OH^- ناشی از افزایش انتقال اکسیداسیون آندی، تولید لخته های فلزی مس، جذب فلوراید و ترسیب فلوراید در رآکتور منجر می شود. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط کوبیا و همکاران در سال ۲۰۱۱ مطابق دارد [۱۹]. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط پریا و همکاران در سال ۲۰۱۱ مطابق دارد. این محقق نشان داد که بهترین pH در حذف پساب دباغی با الکتروکود جنس آهن، مدت واکنش ۶۰ min و چگالی جریان 20 mA/cm^2 ۳۵، گستره pH بین ۵ تا ۹ است [۲۰].

اثر چگالی جریان الکتریکی بر کارایی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC ملاحظات ناشی از تغییرات چگالی جریان و مدت زمان الکترولیز تأیید کننده این نتیجه گیری است که کارایی حذف فلوراید در سه pH ۴/۲، ۷/۵ و ۹ وقتی چگالی جریان و مدت زمان الکترولیز زیاد می شوند، افزایش می یابد.

اثر کاهش وزن الکتروکود آند مس مصرفی بر کارایی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و PAC

کاهش وزن الکتروکود آند مس مصرفی با افزایش زمان تماس و غلظت فلوراید افزایش می یابد. افزایش غلظت فلوراید از ۳ به ۹ میلی گرم در لیتر به افزایش متوسط کاهش وزن الکتروکود آند مس مصرفی از ۱۰ به ۳۱ میلی گرم منجر می شود (نمودار ۴). هزینه الکتروکود آند مس مصرفی و انرژی مصرفی بر کارایی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و PAC

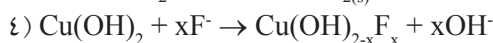
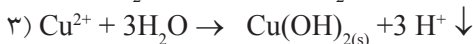
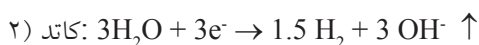
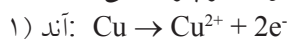


نمودار ۵ - هزینه الکتروکود آند مس مصرفی در رآکتور تلفیقی الکتروشیمیایی و PAC از آب آشامیدنی در زمان تماس ۱۰ دقیقه، pH ۷/۵، چگالی جریان 20 mA/cm^2 ، غلظت PAC 10 mg/L در غلظت های مختلف فلوراید

بحث

غلظت فلوراید بر کارایی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC برطبق نتایج حاصل از بررسی غلظت ۳، ۶ و ۹ میلی گرم در لیتر 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. به عبارت دیگر افزایش غلظت فلوراید به کاهش میزان واکنش ها منجر می شود. این یافته تحقیق تأیید کننده این نتیجه گیری است که الکترولیز

به نظر می‌رسد که مکانیسم حذف فلوراید در فرایند مزبور با استفاده از الکترودهای مس از الگوی زیر پیروی می‌کند:



اثر کاهش وزن الکتروود آند مصرفی بر کارایی حذف فلوراید در

راکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و ماده شیمیایی PAC آند مس مصرفی در مکانیسم حذف فلوراید در فرایند مزبور به شکل کاتیون مس آزاد می‌شود که به تولید Cu(OH)_2 منجر می‌شود که به صورت $\text{Cu}_n(\text{OH})_{2n}$ پلیمریزه و در ادامه لخته Cu(OH)_2 به وسیله آنیون F^- جذب می‌شود.

در خصوص تغییرات مس باقی مانده می‌توان نتیجه گیری نمود که مس باقی مانده پس از فرآیند مزبور در غلظت 6 mg/L فلوراید، مدت 40 min ، pH بهینه معادل $7/5$ و چگالی جریان $1/5$ ، 3 و $4/5$ میلی آمپر در سانتی متر مربع به ترتیب 34 ، 102 و 210 میلی گرم می‌باشند. کاهش وزن الکتروود آند مس مصرفی در شرایط مشابه فوق به ترتیب 10 ، 20 و 31 میلی گرم نیز می‌باشند. Ghosh و همکاران در سال 2008 نشان دادند که غلظت آلومینیوم باقی مانده پس از الکتروکواگولاسیون در غلظت $10-4 \text{ mg/L}$ فلوراید و چگالی جریان $625-500 \text{ A/m}^2$ به ترتیب 147 و 180 نانومتر می‌باشند [24].

برطبق نتایج حاصل از بررسی کارایی حذف فلوراید در سه pH $4/2$ ، $7/5$ و 9 و وقتی مدت تابش از 30 به 90 دقیقه و غلظت PAC از 30 به 50 میلی گرم در لیتر تغییر می‌کند سرعت حذف تغییر محسوس می‌کند. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط یاداو و همکاران در سال 2010 مطابقت دارد. این محقق نشان داد که افزایش مقدار آلومینیوم آمونیوم سولفات در خاک کوزه از 2 به 8 گرم در کیلوگرم خاک کوزه به افزایش راندمان حذف از 61% به 68% در زمان تماس 120 ساعت و غلظت اولیه 10 mg/L فلوراید منجر می‌شود [25]. می‌توان نتیجه گرفت که افزایش غلظت منعقدکننده PAC به کاهش زمان تماس و حذف بیش تر فلوراید منجر می‌شود. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط یاداو و همکاران در سال 2009 مطابقت دارد [26]. افزایش کارایی حذف فلوراید در pH معادل $7/5$ در راکتور انعقادشیمیایی را می‌توان به درستی و پایداری بیش تر لخته‌های تشکیل شده Al-F نسبت داد.

همچنین می‌توان استدلال نمود که تغییرات pH به عنوان سنجشی از تشکیل لخته‌های کمپلکس مس محسوب می‌شود. در خصوص تغییرات pH می‌توان نتیجه گیری نمود که pH نمونه‌ها پس از الکترولیز در غلظت 6 mg/L فلوراید، مدت 40 min ، pH معادل $7/5$ و چگالی جریان $1/5$ ، 3 و $4/5$ میلی آمپر در سانتی متر مربع به ترتیب $8/04$ ، $9/02$ و $9/14$ می‌باشند. این یافته تحقیق با تحقیق انجام شده توسط مرزوک و همکاران در سال 2011 مطابقت دارد [21]. افزایش چگالی جریان و مدت زمان الکترولیز به علت تولید زیادتر مقدار یون‌ها در الکتروود به افزایش کارایی حذف فلوراید منجر می‌شود. این پدیده را می‌توان به افزایش مقدار یون‌های هیدروکسید مس به عنوان جاذب که در محل تولید می‌شوند، نسبت داد. بنابراین افزایش چگالی جریان و مدت زمان الکترولیز به بهبود حذف فلوراید ناشی از افزایش تولید لخته‌ها منجر می‌شود. افزایش چگالی جریان و مدت الکترولیز به افزایش حذف فلوراید به علت افزایش دانسیته حباب، خوردگی آند مس، افزایش تولید هیدروکسید فلز مس و کاهش اندازه حباب منجر می‌شود. نتایج این مطالعات با مطالعه انجام گرفته توسط دالوند و همکاران در سال 2011 مطابقت دارد [22]. آنان نشان دادند که افزایش از 5 به 40 ولت به افزایش راندمان حذف رنگ برحسب درصد از $83/4$ به $99/9$ در زمان واکنش 40 min منجر می‌شود. می‌توان نتیجه گرفت که افزایش چگالی جریان به کاهش زمان واکنش منجر می‌شود.

ملاحظه ناشی از تغییرات زمان واکنش تأیید کننده این یافته است که تشکیل لایه پخش در اطراف الکتروود در محلول رقیق فلوراید به سرعت کمتر واکنش منجر می‌شود. لایه پخش در محلول غلیظ فلوراید روی سرعت پراکندگی و مهاجرت یون‌های فلزی به سمت سطح الکتروود تأثیری ندارد. در طی فرآیند ابتدا سرعت میکروفلوک‌ها به علت غلظت فلوراید بیشتر، تولید بیشتر هیدروکسید مس در اثر خوردگی آند و تشکیل کمپلکس هیدروکسید مس با آنیون فلوراید زیادتر است و بنابراین حذف سریعتر فلوراید در ابتدا مشاهده می‌شود. بعد از گذشت زمان این میکروفلوک‌ها بزرگ تر و در نتیجه طبق فرآیند انعقاد جارویی ته نشین می‌شوند. سرعت حذف در 10 min اول بیش از زمان‌های بعدی است. با این وجود، راندمان حذف بیشتر نیازمند زمان واکنش زیادتر است. طوری که راندمان حذف پس از 40 min به حداکثر می‌رسد. این یافته تحقیق با یافته ساست و همکاران در سال 2006 مطابقت دارد [23].

هزینه الکتروآند مس مصرفی و انرژی مصرفی بر کارایی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی و PAC براساس کارایی حذف فلوراید در رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمی و غلظت PAC ۱۰ mg/L در شرایط بهینه جریان الکتریکی (۰/۰۳ A)، پتانسیل الکتریکی (۳۰ V)، زمان تماس (۱۰ min)، نیاز آبی (۴۰ لیتر در روز برای خانواده چهار نفری برای شرب و پخت و پز)، می‌توان نتیجه‌گیری نمود که کمترین هزینه بهره‌برداری در غلظت کمتر فلوراید (۳ mg/L) با ۱۰۰٪ راندمان حذف و بیشترین هزینه بهره‌برداری در غلظت بیشتر فلوراید (۹ mg/L) با ۹۰/۵٪ راندمان حذف می‌باشند. بنابراین می‌توان کاهش هزینه را به افزایش راندمان حذف نسبت داد. نتایج این مطالعات با مطالعه انجام گرفته توسط دالوند و همکاران در سال ۲۰۱۱ مطابقت دارد [۲۲].

نتیجه‌گیری و پیشنهادات

نتایج نشان دادند که فلونورزدایی آب آلوده با استفاده از رآکتور تلفیقی الکتروشیمیایی ناپیوسته و ماده شیمیایی PAC عملی است و رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی ناپیوسته و ماده شیمیایی PAC موثرتر از رآکتور ناپیوسته الکتروشیمیایی است. به طور قابل توجهی افزایش غلظت PAC به افزایش راندمان حذف فلوراید منجر می‌شود. برای مطالعات آینده پیشنهاد می‌شود اثر تشدیدکنندگی ترکیب رآکتور ناپیوسته تلفیقی الکتروشیمیایی ناپیوسته و ماده شیمیایی PAC با انواع الکترودهای دیگر در حضور دیگر عوامل شیمیایی نیز بررسی گردد.

می‌توان نتیجه گرفت که افزایش pH به تجزیه شدن کمپلکس‌های Al-F به علت رقابت OH⁻ و کاهش راندمان حذف فلوراید منجر می‌شود. فرآیند انعقادشیمیایی شامل مراحل کمپلکس Al-F، هیدرولیز آلومینیوم و ترسیب می‌باشد. این نتایج تحقیق با نتایج کو و همکاران در سال ۲۰۱۲ برای بررسی حذف فلوراید با روش انعقاد توسط نمک‌های آلومینیوم مطابقت دارد [۲۷]. آنان pH معادل ۷ را pH بهینه برای حذف فلوراید اعلام نمودند. افزایش pH تا pH بهینه ۷/۵ به افزایش راندمان حذف فلوراید در رآکتور انعقاد شیمیایی منجر می‌شود. بنابراین می‌توان نتیجه‌گیری نمود که مکانیسم انعقاد جارویی مکانیسم غالب در حذف فلوراید محسوب می‌شود. برطبق نتایج حاصل از بررسی کارایی حذف فلوراید در pH ۷/۵ و چگالی جریانی ۴/۵ mA/cm²، وقتی مدت تابش از ۱۰ به ۴۰ دقیقه و غلظت PAC از ۱۰ به ۳۰ میلی‌گرم در لیتر زیاد می‌شود، افزایش نشان می‌دهد. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط تزکان و همکاران در سال ۲۰۰۶ مطابقت دارد. این محقق نشان داد که به وسیله افزودن PAC، پراکسید هیدروژن به رآکتور الکتروکواگولاسیون می‌توان به کاهش اکسیژن مورد نیاز شیمیایی (COD) تا ۶۸-۶۲٪ دست یافت و نیز کارایی حذف COD پس‌اب روغن کشتی زیتون به وسیله فرآیند تلفیقی مزبور بیش از فرآیند الکتروکواگولاسیون می‌باشد [۲۸]. می‌توان نتیجه گرفت اثر تلفیقی الکتروشیمیایی و PAC به کاهش زمان تماس و افزایش راندمان حذف فلوراید منجر می‌شود. افزایش مدت تماس به علت تولید لخته‌های پایدار زیادتر به افزایش کارایی الکتروشیمیایی منجر می‌شود. فلوراید در حضور PAC پس از الکترولیز تشکیل لخته داده و ته‌نشین می‌شود.

تشکر و قدردانی

این مقاله بخشی از پایان‌نامه کارشناسی ارشد آلودگی محیط زیست می‌باشد. بنابراین نویسندگان مقاله از حمایت آزمایشگاهی گروه مهندسی بهداشت محیط دانشگاه آزاد اسلامی واحد پزشکی تهران و حمایت مالی گروه محیط زیست، واحد پردیس علوم و تحقیقات دماوند، دانشگاه آزاد اسلامی تشکر و قدردانی می‌نماید.

REFERENCES

1. Ghojazadeh M, Pournaghi Azar F, Naghavi- Behzad M, Mahmoudi M, Azami-Aghdash S, Jamali Z. Fluoride concentration of drinking water and prevalence of fluorosis in Iran. *A Systematic Review* 2013; 7 (1): 1-7.
2. Mohapatra M, Anand S, Mishra BK, Giles DE, Singh P. Review of fluoride removal from drinking water. *Journal of Environmental Management* 2009; 91(1), 67-77.
3. Mesdaghinia A, Vaghefi KA, Montazeri A, Mohebbi MR, Saeedi R. Monitoring of fluoride in groundwater resources of Iran. *Journal of Bulletin Environmental Contamination & Toxicology* 2010; 84: 432-437.
4. Moghadam A, Fijani E. Distribution of fluoride in ground water of Maku area, northwest of Iran. *Environmental Geology* 2008; 56: 281-287.
5. Tang Y, Guan X, Wang J, Gao N, McPhail MR, Chusuei CC. Fluoride adsorption on to granular ferric hydroxide: Effects of ionic strength, pH, surface loading, and major co-existing anions. *Journal of Hazardous Materials* 2009; 171: 774-779.
6. World Health Organization. Fluoride in drinking water, background document for development of WHO guidelines for drinking water quality. ((2rd ed.)), Health criteria and other supporting information, World Health Organization, Geneva. (2004).
7. Tchomgui-Kamga E, Ngameni E, Darchen A. Evaluation of removal efficiency of fluoride from aqueous solution using new charcoals that contain calcium compounds. *Journal of Colloid and Interface Science* 2010; 342 (2): 494- 499.
8. Tahir MA, Rasheed H. Fluoride in the drinking water of Pakistan and the possible risk of crippling fluorosis. *Drinking Water Engineering Science* 2013; 6: 17-23.
9. Jafaripor MR, Samili Amrod M, Zeiaepor A, Davoodi R. Health, sanitary and economic evaluation of Home-like systems of water treatment (Reverse Osmosis, RO) in Qom city.” *Journal of Water and Wastewater* 2011; 78: 15-21. (In Persian).
10. Martinez-Huitle CA, Brillas E. Decontamination of wastewaters containing synthetic organic dyes by electrochemical methods: A general review. *Applied Catalysis B: Environmental* 2009; 87: 105-145.
11. Emamjomeh MM, Sivakumar M. Review of pollutants removed by electrocoagulation and electrocoagulation/flotation processes. *Journal of Environmental Management* 2009; 90 (5): 1663-1679.
12. Chen G. Electrochemical technologies in wastewater treatment. *Separation and Purification Technology* 2004; 38: 11-41.
13. Sinha R, Khazanchi I, Mathur S. Fluoride removal by a continuous flow electrocoagulation reactor from grand water of shivdaspura. *Journal of Engineering Research & applications* 2012; 2: 1336-1341
14. Taştaban M, Tünay O, Kabdaşlı I, Ölmez-Hancı T. Fluoride removal by electrocoagulation process using aluminum electrodes at acidic pH range. *ICOEST Cappadocia* 2013; 223: 769-779.
15. Moussavi G, Khosravi R, Farzadkia M. Removal of petroleum hydrocarbons from contaminated groundwater using an electrocoagulation process: Batch and continuous experiments. *Desalination* 2011; 1-9.
16. HAPA, AWWA, WEF. Standard methods for the examination of water and wastewater. 21st ed. Washington DC: APHA; (2005).

17. Alizadeh M, Mahvi AH, Jafari Mansoorian H, Ardani R. The survey of electrocoagulation process for removal dye reactive orange 16 from aqueous solutions using sacrificial iron electrodes. *Iranian Journal of Health, Safety & Environment*, 2013; 1 (1): 1-8.
18. Yilmaz AE, Boncukcuoğlu R, Kocakerim MM, Yilmaz MT, Paluluoğlu C. Boron removal from geothermal waters by electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials* 2008; 153 (1–2): 146-151.
19. Kobya M, Gebologlu U, Ulu F, Oncel S, Demirbas E. Removal of arsenic from drinking water by the electrocoagulation using Fe and Al electrodes. *Electrochemical Acta* 2011; 56(14): 5060-5070.
20. Gomathi Priya P, Ramamurthi V, Anand P. Degradation studies of tannery effluents using electro flotation technique. *Chemical Engineering & Process Technology* 2011; 2 (1): 1-4.
21. Merzouk B, Yakoubi M, Zongo I, Leclerc J-P, Paternotte G, Pontvianne S. Effect of modification of textile wastewater composition on electrocoagulation efficiency. *Desalination* 2011; 275 (1): 181-86.
22. Dalvand A, Gholami M, Joneidi A, Mohammad M. Dye removal, energy consumption and operating cost of electrocoagulation of textile wastewater as a clean process. *Clean - Soil, Air, Water* 2011; 39 (7): 665-672.
23. Sahset I, Nuhi D, Yalcın SY, Zuleyha B. The effects of current density and phosphate concentration on phosphate removal from wastewater by electrocoagulation using aluminum and iron plate electrodes. *Separation & Purification Technology* 2006; 52: 218-223.
24. Ghosh D, Medhi CR, Purkait MK. Treatment of fluoride containing drinking water by electrocoagulation using monopolar and bipolar electrode connections. *Chemosphere* 2008; 73: 1393-1400.
25. Yadav RN, Singh OP, Yadav R. Study of the aluminum ammonium sulphate as defluoridated agent in drinking water earthenware. *Archie Applied Science Research* 2010; 2 (3): 11-22.
26. Yadav RN, Yadav R. Defluoridation of the potable water by aluminum sulphate. *International Journal Chemical Science* 2009; 7 (2): 760-774.
27. Gong WX, Qua JH, Liua RP, Lana HC. Effect of aluminum fluoride complexation on fluoride removal by coagulation. *Colloids & Surfaces A: Physicochemical & Engineering Aspects* 2012; 395: 88- 93.
28. Tezcan Un U, Uger S, Koparal AS, Bakir Ogutveren U. Electrocoagulation of olive mill wastewaters. *Separation & Purification Technology* 2006; 52: 136-141.