

## بررسی کارایی پلی آلومینیوم کلراید (PACI) به عنوان یک نوع منعقدکننده جدید در حذف یون فلوراید از محیطهای آبی

دکتر محمدتقی صمدی<sup>۱</sup> - دکتر محمدرضا سمرقندی<sup>۲</sup> - منصور ضرابی<sup>۳</sup> - حمیدرضا غفاری<sup>۴</sup> - رقیه نوروزی<sup>۴</sup>

۱- دانشیار گروه آموزشی مهندسی بهداشت محیط و مرکز تحقیقات علوم بهداشتی دانشگاه علوم پزشکی همدان

۲- استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط و مرکز تحقیقات علوم بهداشتی دانشگاه علوم پزشکی همدان

۳- دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط دانشگاه علوم پزشکی همدان

۴- کارشناس ارشد مهندسی بهداشت محیط دانشگاه علوم پزشکی همدان

### چکیده

**زمینه و هدف:** فلوراید یکی از یونهای محلول در آب می باشد که در مقادیر استاندارد برای جلوگیری از پوسیدگی دندان ضروری می باشد، در حالی که در مقادیر اضافی باعث بروز اثرات نامطلوب بهداشتی از جمله فلوروزیس می شود. در این مطالعه کارایی پلی آلومینیوم کلراید به عنوان ماده منعقد کننده مورد استفاده در برخی از تصفیه خانه های آب کشور در جهت حذف فلوراید اضافی مورد بررسی قرار گرفته است.

**روش بررسی:** در این مطالعه توصیفی آزمایشات در سیستم ناپیوسته و با در تماس قرار دادن دو لیتر از محلول حاوی فلوراید در pH های مختلف، زمان تماس و غلظتهای مطلوب پلی آلومینیوم کلراید انجام گردید. در این بررسی غلظت ورودی فلوراید در محدوده ۱/۴، دو و ۲/۴ میلی گرم در لیتر، غلظت پلی آلومینیوم کلراید در محدوده ۱۰-۴۰ میلی گرم در لیتر، و با زمان تماس ۵/۰، یک و دو ساعت و pH سه، هفت و نه در نظر گرفته شده است. به عنوان مثال در غلظت ثابت ۱/۴ میلی گرم از محلول فلوراید، در pH های مختلف، غلظتهای مختلف از پلی آلومینیوم کلراید اضافه گردیده و سپس در زمانهای تماس مشخص نمونه برداری گردید و غلظت باقیمانده فلوراید به روش اسپکتروفتومتری در طول موج پانصد و هفتاد نانومتر قرائت گردید.

**یافته ها:** کارایی حذف فلوراید توسط پلی آلومینیوم کلراید در  $pH=7$  افزایش قابل ملاحظه ای دارد. علاوه بر آن کارایی حذف این ماده در  $pH=5$  نسبت به  $pH=9$  در غلظتهای مختلف پلی آلومینیوم کلراید بیشتر می باشد. ضمناً مشخص گردید که با افزایش غلظت پلی آلومینیوم کلراید، کارایی فرآیند افزایش می یابد، ضمن اینکه با افزایش زمان تماس، کارایی فرآیند افزایش می یابد. نتیجه گیری: می توان از پلی آلومینیوم کلراید به عنوان یک منعقد کننده جدید و مؤثر که در برخی از تصفیه خانه های کشور و بدون تغییر در فرآیند تصفیه و اضافه کردن تجهیزات و تغییرات سازه ای مورد استفاده قرار می گیرد، در جهت حذف مقادیر اضافی فلوراید از منابع آب استفاده کرد.

**کلید واژه ها:** پلی آلومینیوم کلراید - منعقدکننده - فلوراید -  $PH$  - زمان تماس.

پذیرش مقاله: ۱۳۸۸/۵/۲۹

اصلاح نهایی: ۱۳۸۸/۳/۲۱

وصول مقاله: ۱۳۸۷/۱۲/۳

e.mail:ssaba62@gmail.com

نویسنده مسئول: منصور ضرابی، گروه آموزشی مهندسی بهداشت محیط دانشگاه علوم پزشکی همدان

### مقدمه

فلوراید یکی از یونهای محلول موجود در منابع آبی می باشد که از منابع طبیعی و مصنوعی (از قبیل تخلیه پساب انواع صنایع همانند شیشه سازی)، منشأ می گیرد. فلوراید به طور طبیعی از طریق تجزیه رسوبات معدنی وارد منابع آب می شود و در مواقعی که مقدار آن در آب کم باشد باید به طور مصنوعی به آب اضافه گردد. (۱)، وجود فلوراید در آب برای جلوگیری از پوسیدگی دندان ضروری می باشد ولی چنانچه مقدار آن بیش از حد مطلوب باشد باعث

فلوراید یکی از یونهای محلول موجود در منابع آبی می باشد که از منابع طبیعی و مصنوعی (از قبیل تخلیه پساب انواع صنایع همانند شیشه سازی)، منشأ می گیرد. فلوراید به طور طبیعی از طریق تجزیه رسوبات معدنی وارد منابع آب می شود و در مواقعی که مقدار آن در آب کم باشد باید به طور مصنوعی به آب اضافه گردد. (۱)، وجود فلوراید در آب برای جلوگیری از پوسیدگی دندان ضروری می باشد ولی چنانچه مقدار آن بیش از حد مطلوب باشد باعث

درسالیهای اخیر تحقیقهایی در خصوص استفاده از پلیمرهای معدنی آلومینیوم برای تصفیه آب و فاضلاب صورت گرفته است. Klimiuk و همکاران از پلی آلومینیوم کلراید در جهت تصفیه فاضلابهای حاوی رنگهای راکتیو استفاده کرده‌اند. (۱۳)، محوی و همکاران از پلی آلومینیوم کلراید در تصفیه آب آشامیدنی آبادان استفاده کرده‌اند. (۱۴)، Ahmad و همکاران نیز آلوم و پلی آلومینیوم کلراید را برای تصفیه فاضلاب کارخانه‌های کاغذسازی مورد استفاده قرار دادند. (۱۵)، با توجه به مزایایی که در مورد پلی آلومینیوم کلراید اشاره گردید و همچنین گسترش روزافزون استفاده از آن در تصفیه خانه‌های آب کشور، در این مطالعه هدف اصلی بررسی کارایی پلی آلومینیوم کلراید به عنوان یک ماده منعقدکننده مورد استفاده در تصفیه خانه‌های آب در جهت حذف مقادیر اضافی فلوراید از محیطهای آبی می‌باشد.

#### روش بررسی

در این مطالعه بنیادی-کاربردی که در آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی همدان انجام گردید، از پلی آلومینیوم کلراید به عنوان یک نوع منعقد کننده مؤثر و جدید در جهت حذف فلوراید از محلولهای آبی استفاده گردید. در ساخت محلولهای شبیه سازی شده از آب بدون یون استفاده شد. محلول شبیه سازی شده با غلظتهای ۱/۴، ۲ و ۲/۴ میلی‌گرم در لیتر از فلوراید تهیه شده است. برای تأمین غلظت مورد نظر از سدیم فلوراید با خلوص ۱۰۰٪ استفاده گردید. برای تهیه محلول پلی‌آلومینیوم کلراید با غلظتهای ۱۰-۴۰ میلی‌گرم در لیتر نیز، پودر PACI با خلوص ۳۰٪ مورد استفاده قرار گرفت. انجام مطالعات در pHهای پنج، هفت و نه انجام یافت. جهت تنظیم pH از اسید سولفوریک و سود یک نرمال استفاده گردید. برای انجام این مطالعه از دستگاه جار استفاده شده است. دویست میلی‌لیتر از محلول شبیه‌سازی شده حاوی فلوراید، در pHهای مختلف در تماس با غلظتهای مختلف پلی آلومینیوم کلراید قرارداده شده و در زمانهای تماس ۰/۵، یک و دو ساعت نمونه‌برداری انجام گردیده و غلظت باقیمانده فلوراید به روش اسپکتروفتومتری (اسپکتروفتومتر UV-visible مدل ۱۷۰۰- شرکت Shimadso) و در طول موج پانصد و هفتاد نانومتر قرائت گردید. کلیه روشهای به کار رفته در این مطالعه بر

فلوروزیس دندانی و اسکلتی (استخوانی) می‌شود. (۲)، سازمان بهداشت جهانی حد مجاز فلوراید در آب را ۰/۷۵-۱/۵ میلی‌گرم در لیتر اعلام کرده است. (۳)، با وجود آنکه مقدار فلوراید در حد استاندارد برای جلوگیری از پوسیدگی دندان ضرورت دارد، در برخی از مناطق مقدار فلوراید به قدری زیاد است که باید قبل از مصرف آب، مقدار اضافی آن حذف شود. (۴)، برای مثال در جنوب کالیفرنیا مقدار فلوراید در آبهای زیرزمینی بیش از پنج میلی‌گرم در لیتر اندازه‌گیری گردیده و در شمال آفریقا مقدار فلوراید در آبهای زیرزمینی به بیش از بیست میلی‌گرم در لیتر می‌رسد. (۵)، در ایران نیز در مناطقی از بندرعباس و جلفا، غلظت بالای فلوراید وجود دارد. بنابراین حذف مقادیر اضافی فلوراید برای جلوگیری از ضایعات دندانی و اثرات دراز مدت آن ضرورت دارد.

امروزه از روشهای مختلف از جمله فرآیند جذب سطحی (۶)، رسوبدهی شیمیایی (۷)، تبادل یون و الکترودیالیز (۸) اسمز معکوس (۹) و نانوفیلتراسیون (۱۰) برای حذف مقادیر اضافی فلوراید از منابع آبی استفاده می‌گردد. علاوه بر آن، در تصفیه آب و فاضلاب انواع مختلفی از مواد منعقد کننده مانند آلوم، سولفات فریک، سولفات فرو، کلرید فریک، پلیمرهای آلی آنیونی، کاتیونی و غیر یونی جهت حذف آلاینده‌های آلی و معدنی مورد استفاده قرار می‌گیرد. در سالهای اخیر با استفاده از نمکهای محلول آهن و آلومینیوم دسته جدیدی از منعقد کننده‌ها تحت عنوان منعقد کننده‌های پلیمری معدنی، تهیه و در بسیاری از کشورهای دنیا به کار گرفته می‌شود. پلی‌آلومینیوم کلراید (PACI)، یکی از منعقد کننده‌های پلیمری معدنی می‌باشد که با توجه به ویژگیهای خاص آن مصرف قابل توجهی یافته است. (۱۱)، عملکرد نمکهای فلزی غیر آلی بر اساس ناپایداریسازی کلوئیدها می‌باشد که به واسطه خنثی سازی لایه مضاعف الکتریکی اطراف ذره کلئیدی رخ می‌دهد. حال آنکه پلیمرها عملیات ناپایداریسازی را از طریق جذب در سطح ذره کلئیدی و ایجاد پلهای اتصالی ذره-پلیمر- ذره، انجام می‌دهند. (۱۲)، بنابراین از نمکهای پلیمری فلزی نظیر پلی آلومینیوم کلراید، با توجه به کارایی‌های فوق الذکر می‌توان هر دو عملکرد ناپایداریسازی را به صورت توأم انتظار داشت که موجب بهبود عملکرد و سرعت بخشی به عملیات ناپایداریسازی ذره‌ای و در نتیجه رشد سریع ذرات و جداسازی مؤثر کلوئیدها را به دنبال خواهد داشت.

اساس روشهای استاندارد ذکر شده در مآخذ (۱۶) می باشد.

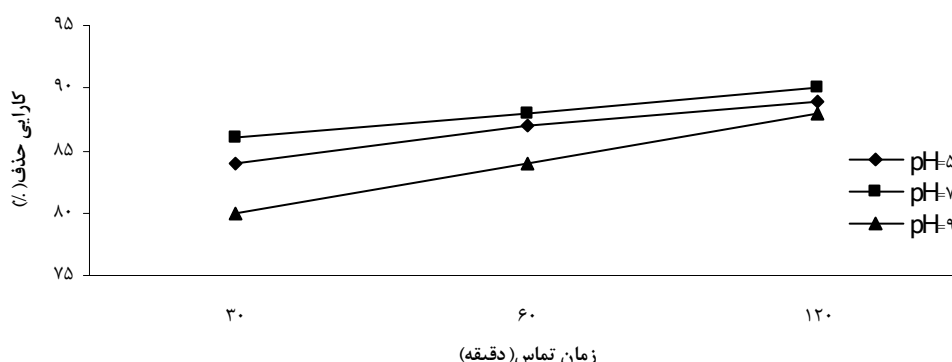
### یافته‌ها

یافته‌های حاصل از آزمایشها نشان داد که کارایی حذف فلوراید در pH خنثی به مراتب بالاتر از pH های اسیدی و قلیایی می باشد. همچنین کارایی فرآیند در pH اسیدی (pH=۵) کمی بیشتر از pH قلیائی (pH= ۹) بوده است. در نمودار ۱ تأثیر pH بر روی کارایی پلی آلومینیوم کلراید در حذف فلوراید نشان داده شده است. همان طور که در این نمودار مشخص گردیده است، کارایی حذف فلوراید در pH خنثی نسبت به pH اسیدی و قلیایی افزایش چشمگیری دارد. در این مطالعه از غلظتهای ۱۰-۴۰ میلی گرم در لیتر پلی آلومینیوم کلراید به منظور بررسی کارایی فرآیند استفاده گردید. نتایج حاصله نشان داد که در غلظتهای مختلف فلوراید ورودی، pH و زمان تماس، با افزایش غلظت پلی آلومینیوم کلراید، کارایی فرآیند افزایش می یابد، به طوری که در pH= ۷ و غلظت فلوراید ورودی ۲/۴ میلی گرم در لیتر و زمان تماس یک ساعت، با افزایش غلظت پلی آلومینیوم کلراید از ده میلی گرم در لیتر به چهل میلی گرم در لیتر، کارایی فرآیند از ۸۲٪ به بیش از ۹۲٪ رسیده است. در

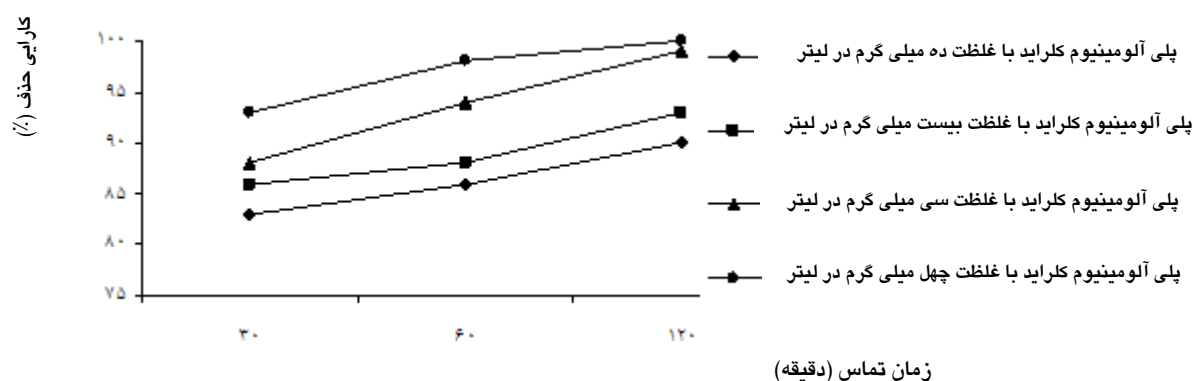
نمودار ۲ تأثیر غلظت پلی آلومینیوم کلراید بر کارایی فرآیند نشان داده شده است.

جهت بررسی تأثیر غلظت فلوراید ورودی بر کارایی فرآیند، از محلول فلوراید با غلظتهای ۱/۴، ۲ و ۲/۴ میلی گرم در لیتر استفاده گردید. نتایج به دست آمده نشان داد که در غلظتهای پایین فلوراید، کارایی فرآیند به مراتب بالاتر می باشد. به عنوان مثال در غلظت بیست میلی گرم در لیتر محلول پلی آلومینیوم کلراید و در pH= ۷، با افزایش غلظت فلوراید از ۱/۴ میلی گرم در لیتر به ۲/۴ میلی گرم در لیتر، در مدت زمان یک ساعت، کارایی فرآیند از ۹۶٪ به ۸۷/۵٪ رسیده است. در نمودار ۳ تأثیر غلظتهای مختلف فلوراید بر کارایی فرآیند نشان داده شده است.

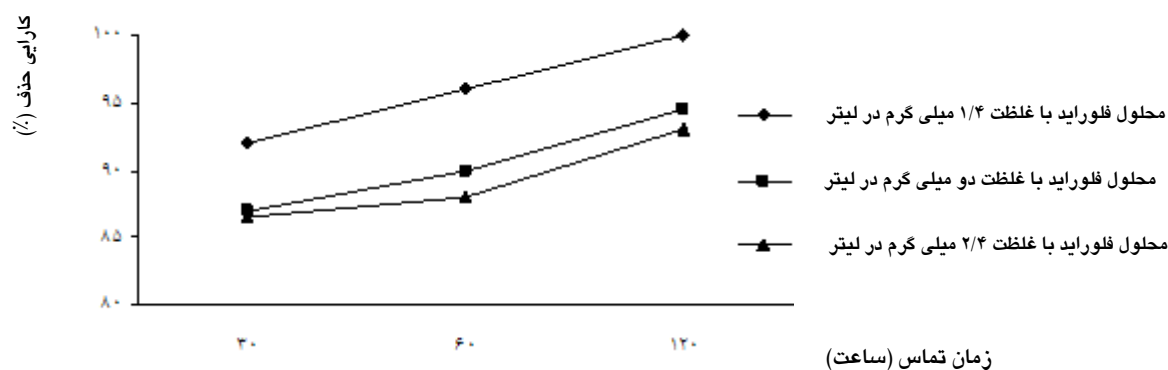
جهت بررسی تأثیر تغییرات زمان تماس بر کارایی حذف فلوراید توسط پلی آلومینیوم کلراید، نمونه برداری در فواصل زمانی ۱/۵، ۱ و ۲ ساعت انجام گردید. همان طور که در نمودارهای ۱ تا ۳ نشان داده شده است، با افزایش زمان تماس علی رغم تغییر غلظت پلی آلومینیوم کلراید، غلظت فلوراید ورودی و pH، کارایی فرآیند افزایش می یابد و این مورد به دلیل تشکیل تعداد فاکهای بیشتر با گذشت زمان اتفاق می افتد.



نمودار ۱: بررسی تأثیر تغییرات PH بر کارایی فرآیند مورد مطالعه در حذف فلوئور (محلول فلوراید با غلظت ۲/۴ میلی گرم در لیتر و پلی آلومینیوم کلراید با غلظت بیست میلی گرم در لیتر)



نمودار ۲: بررسی تأثیر تغییرات غلظت پلی آلومینیوم کلراید بر کارایی حذف فلوراید (PH=۷) و محلول فلوراید با غلظت ۲/۴ میلی گرم در لیتر



نمودار ۳: بررسی تأثیر تغییرات غلظت فلوراید بر کارایی حذف آن (PH=۷) و پلی آلومینیوم کلراید با غلظت بیست میلی گرم در لیتر

افزایش قابل توجهی می‌یابد. (۱۲-۱۳)، در نمودار ۱ نتایج حاصل از کاربرد پلی آلومینیوم کلراید در جهت حذف یون فلوراید در سه محدوده pH اسیدی، خنثی و قلیایی نشان داده شده است. همان‌طور که در این نمودار مشخص گردیده است، کارایی حذف پلی آلومینیوم کلراید در pH خنثی (pH=۷) به مراتب بالاتر از pH اسیدی (pH=۵) و قلیایی (pH=۹) می‌باشد. همچنین کارایی حذف در pH اسیدی کمی بالاتر از pH قلیایی می‌باشد. دلیل این امر می‌تواند تشکیل لخته‌های درشت‌تر و مقاوم‌تر در pH خنثی باشد. با توجه به این که pH در بیشتر منابع آبی در محدوده خنثی می‌باشد، بنابراین استفاده از پلی آلومینیوم کلراید می‌تواند مقادیر اضافی فلوراید در این منابع را حذف نماید. با این وجود این ماده می‌تواند در pHهای اسیدی و قلیایی نیز به طور مؤثری

## بحث

پلی آلومینیوم کلراید به عنوان یک نوع منعقدکننده جدید و مؤثر به طور گسترده‌ای در سراسر دنیا در تصفیه آب آشامیدنی استفاده می‌گردد این منعقدکننده در مقایسه با سولفات آلومینیوم باقی مانده آلومینیوم کمتری در آب ایجاد می‌کند. (۱۱ و ۱۳)، در ایران نیز استفاده از این ماده در حال گسترش می‌باشد و در حال حاضر در دو تصفیه خانه آب همدان و اصفهان به عنوان منعقدکننده مورد استفاده قرار می‌گیرد. در این بررسی از پلی آلومینیوم کلراید به عنوان یک منعقدکننده جدید که در برخی از تصفیه‌خانه‌های آب کشور مورد استفاده قرار می‌گیرد، جهت حذف فلوراید از محلول‌های شبیه‌سازی شده استفاده گردید. کارایی حذف فلوراید اضافی توسط پلی آلومینیوم کلراید در pH خنثی،

و لخته‌سازی، افزایش زمان تماس باعث افزایش کارایی فرآیند می‌شود. ولی چنانچه زمان تماس بیش از حد مجاز شود باعث شکستن لخته‌ها و کاهش کارایی فرآیند خواهد گردید. (۱۲-۱۳ و ۱۵)، با توجه به نتایج به دست آمده، به نظر می‌رسد که زمان تماس یک ساعت زمان بهینه برای حذف فلوراید توسط پلی آلومینیوم کلراید باشد. همان‌طور که در نمودارهای ۱ تا ۳ نشان داده شده است، در غلظت‌های مختلف پلی آلومینیوم کلراید، فلوراید و pH‌های مختلف، در زمان تماس یک ساعت بیشترین کارایی حذف مشاهده گردید.

### نتیجه‌گیری

در مجموع با توجه به نتایج به دست آمده می‌توان از پلی آلومینیوم کلراید به عنوان یک منعقدکننده مؤثر و مورد استفاده در برخی از تصفیه‌خانه‌های کشور، بدون ایجاد تغییرات فرآیندی و سازه‌ای، جهت حذف مقادیر اضافی فلوراید از محیط‌های آبی استفاده کرد. از طرف دیگر در مناطقی که آب دارای مقادیر پایینتر از حد مطلوب فلوراید باشد استفاده از این نوع منعقدکننده توصیه نمی‌شود زیرا باعث خواهد گردید که مقدار فلوراید به کمتر از حد استاندارد کاهش یابد که ترجیحاً در این صورت باید تأسیسات فلور زنی در محل تصفیه‌خانه پیش بینی شده باشد.

مقادیر اضافی فلوراید را حذف نماید. افزایش غلظت پلی آلومینیوم کلراید، باعث افزایش کارایی فرآیند می‌گردد. با افزایش غلظت پلی آلومینیوم کلراید، تعداد لخته‌های تشکیل شده افزایش می‌یابد، بنابراین باعث افزایش کارایی فرآیند می‌گردد. (۱۳ و ۱۷)، در نمودار ۲ نتایج حاصل از افزایش غلظت پلی آلومینیوم کلراید بر کارایی حذف فلوراید نشان داده شده است. همان‌طوری که در این شکل نشان داده شده است، در غلظت‌های پایین فلوراید ورودی، در برخی موارد کارایی حذف به بیش از ۹۰٪ می‌رسد، بنابراین جهت حذف مقادیر اضافی فلوراید و رساندن آن به مقادیر استاندارد، می‌توان از پلی آلومینیوم با غلظت‌های پایین (۱۰ میلی‌گرم در لیتر) استفاده کرد. با افزایش غلظت فلوراید ورودی، کارایی فرآیند کاهش می‌یابد. در نمودار ۳ تأثیر غلظت فلوراید ورودی بر کارایی فرآیند، نشان داده شده است. همان‌طور که در این نمودار نشان داده شده است، با افزایش غلظت فلوراید ورودی کارایی فرآیند کاهش می‌یابد. با توجه به نتایج به دست آمده از این مطالعه می‌توان از پلی آلومینیوم کلراید با غلظت ده میلی‌گرم در لیتر در آب‌های با غلظت فلوراید حداکثر ۲/۴ میلی‌گرم در لیتر استفاده کرد. چنانچه غلظت فلوراید در آب بیش از ۲/۴ میلی‌گرم در لیتر باشد می‌توان از غلظت‌های بالاتر پلی آلومینیوم کلراید (غلظت‌های ۲۰-۴۰ میلی‌گرم در لیتر) استفاده کرد. در فرآیندهای انعقاد

## REFERENCES

1. Tor A. Removal of fluoride from an aqueous solution by using montmorillonite. Desalination 2006 Nov; 201 (3): 267-276.
2. Mohammad ME, Muttucumar S. Removal of fluoride by a continuous flow electrocoagulation reactor. Environ Manag. 2009 Feb; 90 (2): 1204-1212.
3. World Health Organization (WHO). Guidelines for drinking water quality. Geneva: WHO; 1993, 273-276.
4. Zuo Q, Chen X, Li W, Chen G. Combined electrocoagulation and electroflotation for removal of fluoride from drinking water. J Hazard Mat. 2008 Nov; 159 (2):452-457.
5. Tor A. Removal of fluoride from water using anion-exchange membrane under Donnan dialysis condition, J Hazard Mat. 2007 March; 141 (3): 814-818.
6. Baris K, Duygu O, Ali G, Volkan NB, Celal D, Mustafa S. Removal of fluoride ions from aqueous solution by waste mud. J Hazard Mat. 2009 Sep; 168 (3): 888-899.
7. Sujana MG, Thakur RS, Rao SB. Removal of fluoride from aqueous solution by using alum sludge, J Colloid Sci. 1998 Oct; 206 (1): 94-101.

8. Tahai M, Achary I, Menkouchi MA, Amor Z, Taky M. Defluoridation of moroccan ground water by electrodialysis: Continuous operation. Desalination 2006 March; 189 (3):215-220.
9. Arora M, Maheshwari RC, Jain SK, Gupta A. Use of membrane technology for potable water production. Desalination 2004 Oct; 170 (2): 105-112.
10. Hu K, Dickson JM. Nanofiltration membrane performance on fluoride removal from water. J Memb Sci. 2006 Aug; 279 (2): 529-538.
11. Wang D, Sun W, Xu TH, Grogory J. Speciation of inorganic polymer flocculant-PACL. J Colloid Surf. 2004 Aug; 243 (3):1-10.
12. Banihashem A, Alavi Moghadam MR, Maknon R, Nik Azar M.[Removal of turbidity by poly aluminum chloride]. Wat Wast. 1387 Sum; 19 (66):82-86. (Persian)
13. Klimiuk E, Filipkowska U, Libeck B. Coagulation of wastewater containing reactive dyes with the use of Polyaluminium chloride (PAC) Polish. J Env Stud. 1999 Jan; 8 (2):81-88.
14. Mahvi AH, Shekhi R. [Application of poly aluminum chloride in water treatment of Abadan]. J Med Sci Ilam. 1385 Sum; 14 (2):48-55. (Persian)
15. Ahmad AL, Wong SS, Teng TT, Zuhairi A. Improvement of alum and PACl coagulation by polyacrylamides (PAMs) for the treatment of pulp and paper mill wastewater. Chem Eng J. 2008 April; 137(3): 510-517.
16. American Public Health Association. Standard methods for the examination of water and wastewater. 20<sup>th</sup> ed. [S.L]: [S.N]; 1999, 1093.
17. Mostafapor F, Bazafshan E, Kamani H. [Compartion of alum, poly aluminum chloride and ferric chloride in removal of turbidity from drinking water]. J Tabib Shargh. 1387 Sum; 10(1):17-25. (Persian)