

## مقایسه کارایی حذف نیتрат بوسیله پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته و فرآیند انعقاد الکتریکی از محلول آبی

محمد رضا حیدری<sup>۱\*</sup>، امیرحسین محوی<sup>۲</sup>

<sup>۱</sup> کارشناس ارشد بهداشت محیط، عضو هیئت علمی گروه بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی بم، بم، ایران  
<sup>۲</sup> استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی تهران، تهران، ایران  
<sup>\*</sup> نویسنده مسئول: گروه بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی بم، بم، ایران  
پست الکترونیک: moheidari86@Gmail.com

### چکیده

**زمینه و هدف:** تهیه آب آشامیدنی سالم برای مصرف با هزینه پائین یکی از مهمترین اهداف سیستم های تامین آب است. یکی از منابع اصلی ورود نیترات کودهای کشاورزی است. وجود مقادیر بالای نیترات در آب شرب برای سلامتی و محیط زیست مخاطره آمیز بوده بنابراین بایستی تاحدمجاز تعیین شده در رهنمودهای سازمان جهانی بهداشت تقلیل یابد. هدف از این مطالعه حذف نیترات از محلول های آبی با استفاده از منعقد کننده پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته (PASIC) و انعقاد الکتریکی (EC) مورد بررسی قرار گرفت.

**مواد و روش کار:** پژوهش مطالعه ای تجربی با استفاده پیلوت درمقیاس آزمایشگاهی است. تاثیر pH (۴-۱۱)، اختلاف پتانسیل الکتریکی (۱۰-۳۰ ولت)، غلظت اولیه نیترات (۲۵-۱۰۰ میلی گرم بر لیتر)، زمان تماس (۵-۶۰ دقیقه) بر راندمان حذف نیترات از محلول های آبی بررسی شد. شرایط بهینه حاصل از نتایج تحقیق، بروی آب شرب تکرار شد.

**یافته ها:** نتایج نشان داد که این روش توانایی حذف نیترات از محلول های آبی را تا کمتر از رهنمودهای سازمان جهانی بهداشت دارد. pH، اختلاف پتانسیل الکتریکی تاثیر مستقیم و غلظت اولیه نیترات تاثیر معکوس بر راندمان حذف نیترات از محلول های آبی را دارد. نتایج بدست آمده نشان داد که منعقد کننده PASIC و فرایند انعقاد الکتریکی بترتیب نیز قادر به حذف ۶۵ و ۵۵ درصد نیترات می باشد به گونه ای که بیشترین درصد حذف نیترات برای EC در ولتاژ ۳۰ ولت، زمان ماند ۶۰ دقیقه، pH= ۱۰ و برای PASIC غلظت ۵ mg/l، زمان ماند ۱۵ دقیقه و pH= ۱۰ مشاهده گردید. نتایج آزمون آماری SPSS نشان داد که میانگین غلظت در تمامی متغیرها در آب خام ورودی و بعد از انجام فرایند اختلاف معنی داری وجود دارد ( $P < 0.05$ ).

**نتیجه گیری:** در حذف نیترات منعقد کننده PASIC کارایی بهتری نسبت به فرایند انعقاد الکتریکی دارد. با توجه کارایی بهتر PASIC در غلظت کم و pH طبیعی آب شرب نسبت به فرایند انعقاد الکتریکی هم از لحاظ اقتصادی مقرون بصرفه است. میزان یون آلومینیوم باقیمانده در هر دو روش کمتر از رهنمودهای سازمان جهانی بهداشت و استاندارد آب شرب در ایران است، به لحاظ هزینه و کارایی مناسب، برای جایگزینی در تصفیه خانه های آب شرب قابل طرح است.

**واژه های کلیدی:** پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته، انعقاد الکتریکی، نیترات، محلول آبی

## مقدمه

آلودگی نیترات در منابع آب بعلت مصرف غیرمتعارف کودهای نیترا ته در کشاورزی و فاضلابهای خانگی اتفاق می افتد [۱]. ترکیبات حاوی نیتروژن هنگامی که وارد منابع آب شوند مشکلاتی جدی از جمله یوتریفیکاسیون، از بین بردن کیفیت آب و نهایتاً خطرات بالقوه بر سلامتی انسان و حیوان ایجاد می کنند [۲]. یون نیترات نسبتاً غیر سمی است، اما احیای آن توسط میکروارگانیسم ها به نیتريت می تواند خطرات بهداشتی جدی را برای انسانها ایجاد نماید. افزایش میزان دریافت نیترات، با ایجاد بیماری متهموگلوبینما در کودکان، ایجاد فشارخون، کارایی نامناسب تیروئید و یا خطر سرطانزایی نیتروزآمین ها و نیتروزآمیدها بر سلامتی تاثیر می گذارد [۳]. سازمان جهانی بهداشت حداکثر میزان نیترات در آب شرب را  $10 \text{ mg/L}$  برحسب نیتروژن پیشنهاد نموده است [۴]. روش های متداول حذف نیترات از آب را روش های تعویض یون، تصفیه بیولوژیکی، اسمز معکوس، فرایند انعقاد الکتریکی، جذب با کربن فعال، نیتریفیکاسیون با اوزن تشکیل می دهد [۵]. انعقاد الکتریکی یک روش موثر و سریع در تصفیه املاح محلول در آب است که عامل منعقد کننده با مکانیسم تعویض یونی بوسیله صفحه آند صورت می گیرد [۶]. در این فرایند هیچگونه ماده شیمیایی منعقد کننده به آب افزوده نمی شود. حجم لجن تولیدی نسبت به اکثر روش های متداول تصفیه آب کمتر است. لجن تشکیل شده از این روش براحتی قابل حذف بوسیله تخلیه می باشد [۷]. در فرایند مذکور از صفحه های آلومینیومی و آهنی استفاده می شود [۸]. علاقه به استفاده از این فرایند در امر تصفیه آب و فاضلاب رو به افزایش بوده و تحقیقات گسترده ای در زمینه حذف فلزات سنگین، مواد شیمیایی صنعتی، میکروارگانیسم ها، سختی، کدورت و آلاینده های محیطی دیگر صورت گرفته است [۹، ۱۰، ۱۱]. از مزایای فرایند انعقاد الکتریکی می توان به بی نیازی آن به ماده شیمیایی قبل و بعد از تصفیه، عدم تولید لجن، نیاز به فضای کم و هزینه سرمایه گذاری اندک اشاره نمود [۱۲].

در این فرایند از یک سلول که آند آن از جنس فلز (که اغلب آهن یا آلومینیوم است) است و جریان برق مستقیم استفاده می شود.

فرایند شامل سه مرحله است:

(۱) تشکیل مواد منعقد کننده در اثر اکسیداسیون الکتریکی آند

(۲) ناپایداری آلاینده ها، سوسپانسیون های حاوی مواد معلق و شکستن امولسیون ها

(۳) اتصال ذرات ناپایدار شده و تشکیل لخته [۱۳].

مکانیسم های ناپایداری سازی توسط این فرایند را فشرده گی لایه ی دوبل الکتریکی، جذب سطحی و خنثی سازی بار، انعقاد جارویی و پل زنی بین ذرات تشکیل می دهد [۱۴].

پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته در زمره نسل نوینی از منعقد کننده های غیر آلی می باشد [۱۵، ۱۶]. برای بهبود اثر انعقاد، با پلمیریزه کردن آلومینیوم سه ظرفیتی تحت شرایط خاصی پلی آلومینیوم کلراید (PAC) و سیلیکای فعال با یکدیگر ترکیب شده و تولید ماده منعقد کننده جدیدی به نام پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته می نمایند [۱۵]. این ماده نسبت به PAC توانایی بیشتری در حذف کدورت، رنگ و تشکیل ذرات با اندازه بزرگتری دارد. گائو<sup>۱</sup> و همکارانش در سال ۲۰۰۷ در چین توانستند بوسیله پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته شده (PASIC) در شرایط آزمایشگاهی به حذف قابل توجهی از جلبک، روغن و COD و TP دست یابند [۱۷].

در مطالعه دیگری که بروی حذف مواد آلی طبیعی در آب آشامیدنی بوسیله PASIC توسط محوی و همکارانش در ایران سال ۲۰۱۱ صورت گرفت که بیش از ۷۵٪ حذف NOM مشاهده گردید [۱۸]. در تحقیقی که توسط ملکوتیان و همکاران در محیط آزمایشگاهی بروی حذف مواد آلی با استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی در سال ۲۰۱۰ انجام گرفت درصد حذف بالای ۹۵ درصد مشاهده گردید [۱۹]. همچنین مطالعه ای توسط لاکاسا<sup>۲</sup> در سال ۲۰۱۳ بروی حذف انیون ها و نیترات بوسیله انعقاد الکتریکی صورت گرفت که بروی حذف یون های نیترات، سدیم، فسفر و غیره بسیار تاثیر گذار می باشد [۲۰].

1 -Gao

2 -Lacasa

شسته شده و سپس با محلول اسید هیدروکلریدریک (۱+۱) تمیز شده و دوباره با آب مقطر دوبار تقطیر شستشو داده می شد.

روش اندازه گیری: این پژوهش یک مطالعه تجربی است که با استفاده از پیلوت درمقیاس آزمایشگاهی انجام شد. مقادیر مشخصی از نیترات پتاسیم ( $KNO_3$ ) به عنوان منبع نیترات در همه آزمایشات و از آب دوبار تقطیر برای آماده سازی معرف ها و کارهای آزمایشگاهی استفاده گردید. سپس بعد از زمان تماس ۵-۶۰ دقیقه تحت اختلاط (۲۰-۱۰۰ دور در دقیقه) از ارتفاع ۲ سانتیمتری زیر سطح آب برای انجام آزمایشات نمونه برداری صورت گرفت [۱۵]. آزمایش pH با استفاده از دستگاه Eutech pHmeter، غلظت نیترات باقیمانده در طول موج ۲۲۰nm بوسیله دستگاه اسپکتوفتومتر UV/Vis Eutech. آزمایش آلومینیوم باقیمانده بر طبق روش Eriochrome cyanine R در طول موج ۵۲۵nm انجام شد. تمامی آزمایشات بر طبق کتاب روش های آزمایشات آب و فاضلاب انجام شد [۲۲]، در همه آزمایشات برای سنجش تاثیر pH بر کارایی حذف نیترات از محلول ۰/۱ مولار HCl و محلول ۰/۱ مولار NaOH استفاده گردید [۲۳]. تمامی مواد شیمیایی مصرفی از شرکت مرک (Merck) آلمان می باشد. در پایان کارایی هر یک از منعقد کننده های ذکر شده در حذف نیترات با استفاده از آزمون آماری SPSS (T-TEST) که  $P < 0.05$  معنی دار تلقی گردید. و نمودارهای مربوطه با استفاده از نرم افزار Excel ترسیم شد.

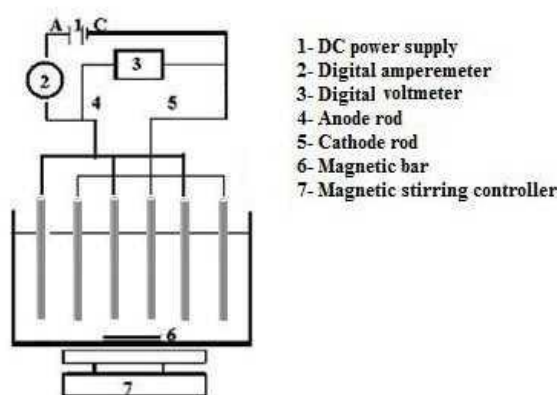
هدف از این مطالعه بررسی و مقایسه عملکرد ماده منعقد کننده پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته و فرایند انعقاد الکتریکی در حذف نیترات از محلول آبی می باشد.

## روش کار

تهیه ماده منعقد کننده: ماده منعقد کننده PASIC به روش زیر ساخته شد [۲۱]: در ابتدا ۱۰/۷۵ میلی لیتر از محلول غلیظ Waterglass ( $SiO_2$ ، ۳ مولار) را به آهستگی تحت شرایط اختلاط بدون ۱۰ میلی لیتر محلول اسید هیدروکلریدریک ریخته تا محلولی بنام PSI با مشخصه  $SiO_2$  ۱/۵ مولار و PH ۲-۲/۵ بدست آمد. در مرحله بعد محلول  $AlCl_3$  ۲/۵ مولار را به محلول PSI تازه افزوده تا نسبت مولی  $Al/Si = 10$  شد سپس به آهستگی محلول  $Na_2CO_3$  غلیظ را به آهستگی تحت شرایط اختلاط افزوده تا نسبت مولی  $OH/AL = 2$  بدست آمد. محلول فوق دارای دانسیته ۱-۱/۵ و  $p = 3.5-1.5$  و  $OH/AL = 2$ ،  $Al/Si = 10$  می باشد.

واحد انعقاد الکتریکی: از یک راکتور ۲۰۰ لیتری به عنوان سل انعقاد الکتریکی استفاده شد. از هشت صفحه آلومینیومی با خلوص ۱۰۰ درصد استفاده شد که هر الکتروود سطح مستغرق (فعال)  $80\text{ cm}^2$  ( $8\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ ) و فاصله مابین صفحات ۱ سانتیمتری ثابت بود. الکتروود ها بصورت دی پولار به یک منبع تغذیه متغییر با جریان ولتاژ ۱۰-۳۰ ولت و ۰-۱۵ آمپر متصل بودند.

قبل از هر آزمایش الکتروکودولاسیون برای ممانعت از مداخله گر ها ابتدا الکتروود ها بوسیله آب مقطر دوبار تقطیر



شکل ۱: پیلوت فرایند انعقاد الکتریکی مورد استفاده در آزمایش

## یافته‌ها

عملکرد ماده منعقد کننده PASIC برای تعیین دز بهینه ماده منعقد کننده PASIC از دوزاژ (۰/۵-۱۰۰ mg/l) در  $pH = 7$  بررسی شد. همانطور که نمودار ۱ نشان می دهد کارایی حذف نیترات با افزایش مقدار ماده منعقد کننده تا مقدار ۵۰ mg/l (۶۵٪) افزایش میابد و بعد از آن تغییر محسوسی مشاهده نمی گردد و سپس با کاهش همراه می باشد. همچنین بهترین درصد حذف در غلظت اولیه ۵۰ mg/l مشاهده گردید، به گونه ای که با افزایش میزان غلظت اولیه نیترات درصد حذف کاهش میابد که دلیل آن حلالیت کم آلومینیوم (۳ ظرفیتی) با افزایش غلظت نیترات و در نتیجه میل ترکیبی کمتر آن می باشد. نتایج آزمون آماری نشان داد که میانگین غلظت درمیزان حذف نیترات در آب خام و بعد از انجام فرایند اختلاف معنی داری وجود دارد ( $P < 0/05$ ).

طبق نمودار ۲ با کاهش میزان غلظت اولیه نیترات و تا ۱۵ دقیقه اول زمان تماس منعقد کننده پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته حذف یون نیترات بصورت قابل ملاحظه ای انجام گرفته است بگونه ای که حداکثر حذف نیترات در غلظت اولیه ۵۰ میلی گرم بر لیتر می باشد که در ۱۵ دقیقه اول واکنش رخ داده است. با افزایش زمان تماس منعقد کننده پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته میزان حذف یون نیترات تغییر محسوسی نمی نماید. چون دنیتریفیکاسیون در سطح فلز اتفاق می افتد مراحل انتقال به سطح فلز و واکنش با نیترات به زمان تماس وابسته است. همچنین آزمایشات نشان داد با افزایش شدت اختلاط در محدوده ۲۰-۱۰۰ دور در دقیقه تا حدود ۴۰ دور در دقیقه میزان ثابت سرعت واکنش افزایش می یابد و بعد از آن نسبتاً ثابت باقی می ماند. نتایج نشان می دهد که میزان کاهش سریع نیترات با انتقال جرم در عرض یک لایه مرزی در نتیجه اختلاط کافی برای ممانعت از اثر محدودکنندگی انتقال جرم ضروری است.

نتایج مندرج در نمودار ۳ نشان داد که با افزایش pH تا محدوده خنثی (۶/۵ -  $pH = 7$ ) که pH طبیعی آب شرب است، میزان حذف نیترات رو به افزایش است (۶۵٪) و سپس با افزایش pH تا محدوده  $pH = 10$  میزان حذف (۵۰٪) بطور نامحسوسی کاهش می یابد. بنابراین حذف

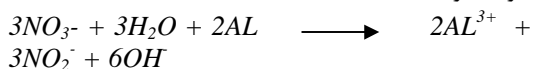
نیترات توسط ماده منعقد کننده PASIC که منعقد کننده بر اساس پایه آلومینیوم می باشد بصورت مشخصی به pH محلول آب بستگی دارد.

عملکرد فرایند انعقاد الکتریکی: میزان درصد حذف نیترات در ولتاژهای ۱۰، ۲۰، ۳۰ و با زمان ماندنهای متغیر ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰، ۶۰ دقیقه، pH متفاوت و غلظت اولیه مختلف یون نیترات در نمودارهای ۴، ۵، ۶ نشان داده شده است.

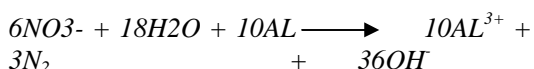
با توجه به نمودار ۴ با افزایش اختلاف پتانسیل الکتریکی راندمان حذف نیترات افزایش یافت. بطوریکه بیشترین راندمان حذف در اختلاف پتانسیل ۳۰ ولت و کمترین راندمان حذف در اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت بدست آمد. آزمون آماری نشان داد که میانگین غلظت در تمامی متغیرها در آب خام ورودی و بعد از انجام فرایند اختلاف معنی داری وجود دارد ( $P < 0/05$ ).

نتایج نمودار ۵ نشان داد که فرایند انعقاد الکتریکی در غلظت های کم موثرتر از غلظت های بالا عمل می کند. بیشترین راندمان در غلظت ۵ mg/L و کمترین راندمان در غلظت ۴۰ mg/L بدست آمد. همچنین راندمان حذف نیترات با افزایش ولتاژ کاهش می یابد بگونه ای که در ولتاژ ۱۰ بیشتر میزان حذف را دارا می باشد.

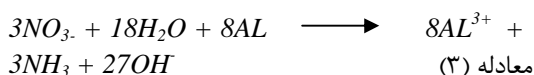
همانطور که نمودار ۶ نشان می دهد با افزایش pH راندمان حذف نیترات افزایش یافت. بطوریکه کمترین راندمان حذف نیترات در pH اسیدی و بیشترین راندمان حذف در pH قلیایی بدست آمد. به علت اینکه یکی از مزایای فرایند انعقاد الکتریکی عدم نیاز به ماده شیمیایی قبل و بعد از فرایند است. در اثر واکنش مابین یون آلومینیوم و یون نیترات واکنش بصورت معادلات روبرو خواهد بود [۲۵]:



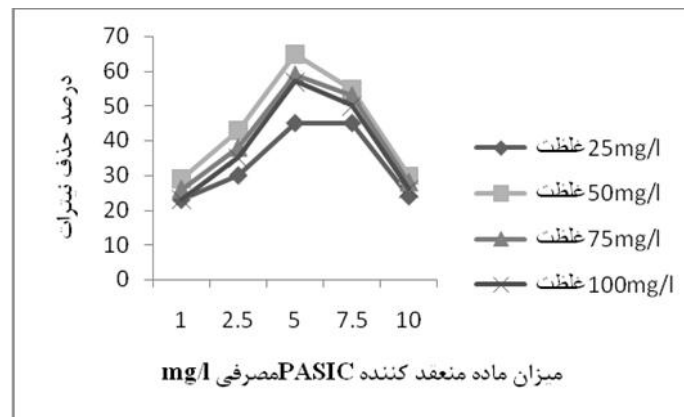
معادله (۱)



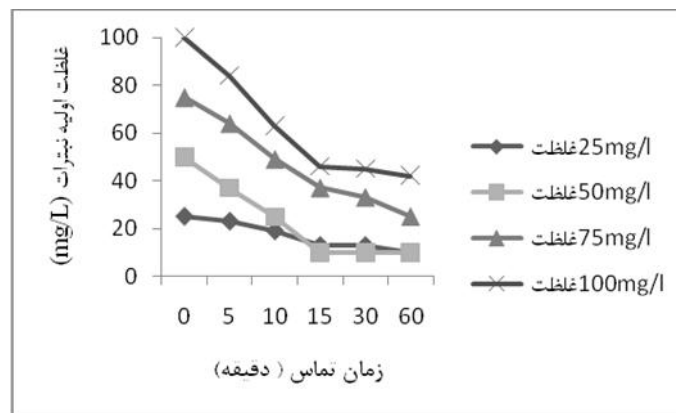
معادله (۲)



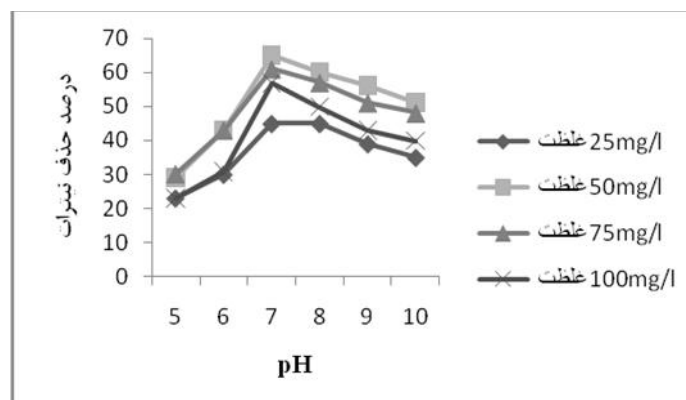
معادله (۳)



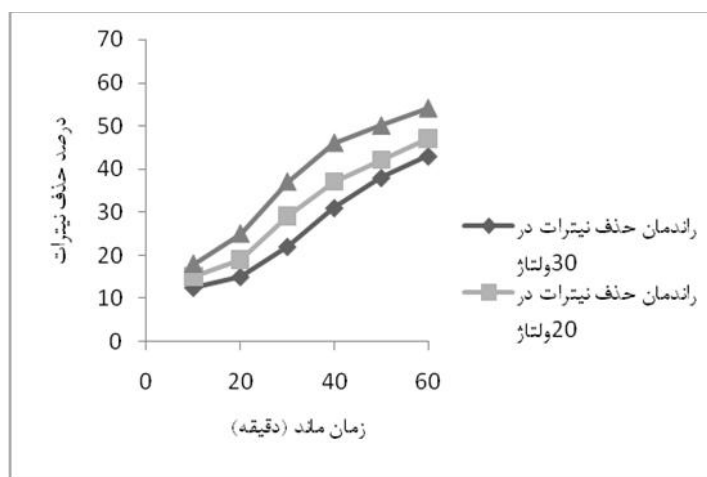
نمودار ۱: تعیین دوز بهینه منعقد کننده PASIC در حذف نیترات (pH = ۷، غلظت نیترات متغیر)



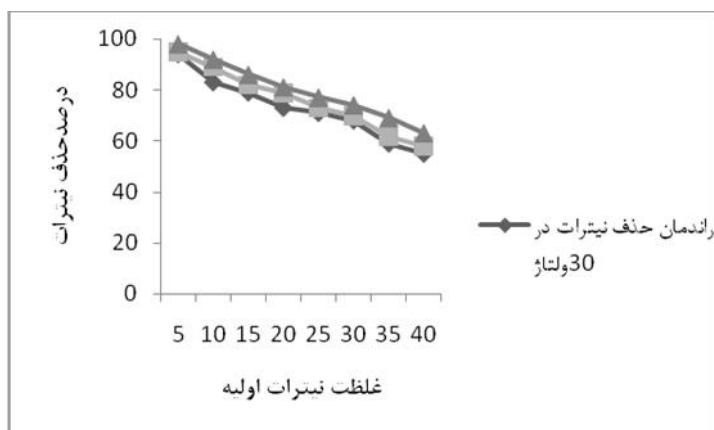
نمودار ۲: تاثیر غلظت اولیه نیترات در مقابل زمان تماس متغیر منعقد کننده PASIC (pH = ۷، غلظت ۵ mg/L)



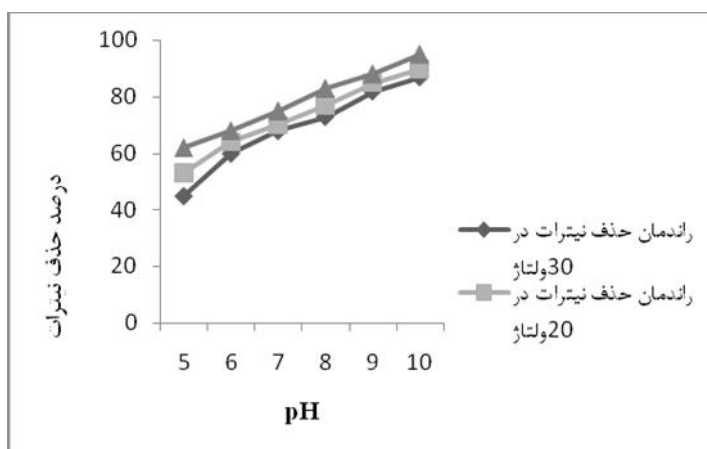
نمودار ۳: تاثیر pH بر راندمان منعقد کننده PASIC در حذف غلظت اولیه متغیر نیترات



نمودار ۴: راندمان فرایند انعقاد الکتریکی در حذف نیترات با ولتاژهای متغیر



نمودار ۵: غلظت اولیه نیترات بر راندمان حذف نیترات



نمودار ۶: تاثیر pH راندمان فرایند انعقاد الکتریکی در حذف نیترات

جدول ۱: مشخصات آب شرب

مشخصه	pH	TDS (g/L)	SO <sub>4</sub> (mg/L)	N(mg/L as NO <sub>3</sub> )	Na (mg/L)	K (mg/L)
مقدار	۷/۴۳	۱/۲۵	۲۲۹	۵۰	۶۵	۲۲

جدول ۲: راندمان حذف نیترات از نمونه آب شرب در شرایط بهینه

درصد حذف نیترات در زمان های متغیر، pH = ۷ و غلظت ۵ mg l<sup>-۱</sup>

آزمایش

۱۲	۲۴	۳۶	۴۸	۶۰
۶۵/۵	۸۱/۲	۸۸/۴	۹۴/۵	۹۶/۲

حذف نیترات از آب شرب شهر

زابل بوسیله ماده منعقد کننده

PASIC

درصد حذف در زمان های متغیر (دقیقه) و pH = ۱۰ و ولتاژ ۳۰

آزمایش

۱۲	۲۴	۳۶	۴۸	۶۰
۵۱/۸	۶۲/۶	۷۹/۴	۸۵/۷	۹۱/۸

حذف نیترات از آب شرب شهر

زابل بوسیله فرایند انعقاد الکتریکی

آزمایش بروی نمونه آب شرب: نتایج حاصل از راندمان حذف نیترات در محلول آبی در شرایط بهینه حاصل از آزمایش (pH = ۷/۵۴، اختلاف پتانسیل ۴۰ ولت، جامدات محلول ۱/۲۷g/L) که میزان نیترات آن در حد نیترات ۲۰ mg/L برحسب نیتروژن تنظیم شده، در جدول ۲ نشان داده شده است.

با توجه اندازه گیری انجام شده در طول تمامی آزمایشات تاثیر متغیرهای مختلف در عملکرد منعقد کننده PASIC و انعقاد الکتریکی همواره میزان آلومینیوم باقیمانده کمتر از حد تعیین شده سازمان جهانی بهداشت (WHO) بود (۰/۲ mg/L) [۱۸].

## بحث

با افزایش میزان تماس منعقد کننده PASIC تا ۱۵ دقیقه و اختلاط ۴۰ دور در دقیقه میزان راندمان حذف نیترات افزایش می یابد که چون اختلاط در خلال واکنش برای واکنش های بسیار سریع بویژه در سیستم های هیدروژنی مانند واکنش نیترات دارای اهمیت است. زمان تماس و اختلاط مناسب می تواند سرعت واکنش را افزایش داده و شرایط مناسبی برای حرکت کلویدها و اختلاط مابین یون های آلومینیوم و نیترات ایجاد می کند. بنابراین چنان که نتایج نیز نشان داد، انتقال یون نیترات از محلول به سطح آلومینیوم یک مرحله محدود کننده بوده که زمان تماس و میزان اختلاط مناسب سرعت واکنش را بالا می برد. این نتایج با یافته های یاکسویا<sup>۱</sup> و همکاران بروی تصفیه فاضلاب با استفاده از PASIC [۲۴] همچنین بررسی انجام شده توسط زوپانوس<sup>۲</sup> و همکاران بروی خصوصیات PASIC به عنوان یک منعقد کننده نوین نیز همخوانی داشت [۲۵].

با افزایش اختلاف پتانسیل الکتریکی راندمان حذف نیترات افزایش یافت. به این علت است که با افزایش اختلاف پتانسیل اکسیداسیون درآند افزایش می یابد، این امر موجب تولید لخته بیشتر بروی سطوح الکتروالومینیومی شده و جذب نیترات بوسیله هیدروکسید آلومینیوم می گردد که در نهایت منجر به کاهش نیترات می گردد. این نتایج نیز با نتایج حاصل از تحقیق ملکوتیان و همکاران کوپارال<sup>۳</sup> و همکاران، مطالعه بذرافشان و همکاران که اشاره شد و همچنین بررسی انجام شده توسط رانتا کومار<sup>۴</sup> و همکاران تحت عنوان بررسی راندمان حذف آرسنیک به روش انعقاد الکتریکی، لاسکا و همکاران در تحقیقی که تحت عنوان حذف الکترو شیمیایی نیتريت از آبهای زیرزمینی، مطالعه هو<sup>۵</sup> و همکاران که برتاثیر حضور کاتیون های همراه با یون فلوراید بر راندمان حذف توسط انعقاد الکتریکی و مطالعه گورلو<sup>۶</sup> تحت عنوان حذف برخی

ترکیبات غیرآلی از پساب صنایع کاغذسازی با استفاده از انعقاد الکتریکی انجام گرفته است همخوانی دارد [۲۶-۳۰]. با کاهش غلظت اولیه نیترات، راندمان حذف نیترات کاهش یافت. ضمناً با افزایش غلظت اولیه نیترات، مدت زمان لازم برای رسیدن به مقدار مطلوب نیترات باقی مانده نیز افزایش می یابد، که دلیل این امر حلالیت کم آلومینیوم در غلظت های بالای نیترات می باشد. این نتایج نیز با نتایج حاصل از تحقیق ملکوتیان و همکاران، مطالعه هوناگا<sup>۷</sup> و همکاران، مطالعه بذرافشان و همکاران که اشاره شد و همچنین مطالعه دروچی<sup>۸</sup> و همکاران در سال ۲۰۰۸ تحت عنوان تصفیه الکتروشیمیایی فاضلاب زلال شده شیمیایی و مکانیکی- حذف فلوراید انجام شدن نیز همخوانی دارد [۳۱-۳۳]. pH یک عامل تاثیرگذار بر عملکرد فرایند انعقاد بوسیله منعقد کننده پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته و فرایند انعقاد الکتریکی است که در روش استفاده از منعقد کننده در محدوده pH خنثی و در فرایند انعقاد الکتریکی با افزایش pH راندمان حذف نیترات افزایش می یابد. این موضوع رامی توان به واکنش بین یون های هیدروکسید و یون های فلزی نسبت داد. همانطور که از معادلات ۱، ۲ و ۳ مشخص می گردد این واکنش ها همراه با تولید OH<sup>-</sup> می باشد که باعث افزایش میزان pH می گردد. نتایج حاصل از این پژوهش با نتایج حاصل از مطالعه ای که توسط گائو و همکارانش در چین بروی خصوصیات PASIC در تصفیه آب صورت گرفت مطابقت دارد [۲۱]. یافته های Qin و همکارانش در سال ۲۰۰۶ و محوی و همکاران در سال ۲۰۱۱ بر روی تاثیر PH بر افزایش عملکرد انعقاد بوسیله ماده منعقد کننده پلی آلومینیوم کلراید سیلیکاته مطابقت داشته [۱۸]. ملکوتیان و همکاران در سال ۲۰۰۹ در ایران تحت عنوان بررسی قابلیت استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی با استفاده از الکترودهای آلومینیومی در حذف سختی آب و همچنین مطالعه ای که توسط کوپارال و همکاران در سال ۲۰۰۲ در ارتباط با حذف نیترات از آب با استفاده از انعقاد الکتریکی / احیا الکتریکی در ترکیه و همچنین با مطالعات آقای بذرافشان و همکاران که در ارتباط با قابلیت استفاده

- 1 -Xiaoxia
- 2 -Tzoupanos
- 3 - Koparal
- 4 -Ranta Kumar
- 5 -Hu
- 6- Ugurlu

- 7- Huang
- 8 -Drouiche



از فرایند انعقاد الکتریکی با استفاده از الکترودهای آلومینیومی در حذف کروم ( $Cr^{6+}$ ) از محیط های آبی که در سال ۲۰۰۷ و در ایران انجام گرفته همخوانی دارد [۳۰-۳۴].

### نتیجه گیری

براساس نتایج حاصل از آزمایشات ارائه شده در مقایسه منعقد کننده PASIC و فرایند انعقاد الکتریکی برای حذف نیتрат چنین نتیجه گیری می شود که افزایش راندمان حذف آنیون نیترات با استفاده از منعقد کننده PASIC با افزایش مقدار ماده منعقد کننده تا مقدار  $5mg/l$ ، افزایش pH تا محدوده  $pH = 7$ ، غلظت پایین نیترات رابطه مستقیم دارد و فرایند انعقاد الکتریکی با توجه به افزایش pH، اختلاف پتانسیل الکتریکی و غلظت اولیه نیترات تاثیر مستقیم بر راندمان حذف نیترات از محلول های آبی را دارد. بررسی تاثیر این دو فرایند در شرایط بهینه حاصل از تحقیق بر حذف نیترات از آب شرب حکایت از حذف نیترات با راندمان  $96/2$  درصد بوسیله منعقد کننده PASIC و  $91/8$  درصد فرایند انعقاد الکتریکی را داشت. لذا می توان حذف نیترات با استفاده از هر دو روش منعقد کننده PASIC و فرایند انعقاد الکتریکی بدلیل پایه آلومینیوم قابلیت یکسانی در حذف دارند ولی با توجه کارایی بهتر PASIC در غلظت کم و pH طبیعی آب شرب نسبت به فرایند انعقاد الکتریکی هم از لحاظ اقتصادی مقرون بصرفه است. درشرایطی که حداکثر راندمان حذف حاصل گردد می توان هر دو روش را در زمره سایر روش ها مطرح، و با مقایسه مزایا و معایب هریک از روش ها بهترین و مناسبترین روش برای حذف نیترات را انتخاب نمود.

### تشکر و قدردانی

نویسندگان لازم می دانند از معاونت پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی زابل و همچنین کلیه کسانی که در اجرای این تحقیق همکاری نمودند تشکر و قدردانی نماید.

## References

1. Pinta A, Batista J, Levec J , Integrated ion exchange/catalytic process for efficient removal of nitrates from drinking water, Chemical Engineering Science 2001; 56: 1551-1559
2. Ghafari S, Hasan M, Aroua M, Bio-electrochemical removal of nitrate from water and wastewater—A review, Bioresource Technology 2008; 99: 3965 – 3974[Persian]
3. Choi N, Kim D, Two-Stage Removal of Nitrate from Groundwater Using Biological and Chemical Treatments, Journal of Bioscience and Bioengineering 2007; 104: 129 - 134.
4. Aslan S, Turkman A, Nitrate and pesticides removal from contaminated water using bionitrification reactor, Process Biochemistry 2006; 41: 882-886.
5. Hell F, Experience with full-scale electrodialysis for nitrate and hardness removal, Desalination 1998; 32: 173 - 180.
6. Emamjomeh M, Sivakumar M, Review of pollutants removed by electrocoagulation and electro coagulation / flotation processes, Environment Management 2009; 90: 1663 - 1679
7. Zhua B, Clifforda D, Chellam S, Comparison of electrocoagulation and chemical coagulation pretreatment for enhanced virus removal using microfiltration membranes, Water Research 2005; 39 : 3098–3108
8. Abuzaid N, Bukhari A, Zakariya M, Ground water coagulation using soluble stainless steel electrodes .Advances in Environmental Research 2002; 6 : 325-333[Persian]
9. Vepsäläinen M, Ghiasvand M, Selin J, Pienimaa J, Repo E, Pulliainen M , Sillanpää M, Investigations of the effects of temperature and initial sample pH on natural organic matter (NOM) removal with electrocoagulation using response surface method (RSM), Separation and Purification Technology 2009; 69 : 255–26
10. Chou w, Wang C, Hsu C, Huang K , Liu T, Removal of total organic carbon from aqueous solution containing polyvinyl alcohol by electro coagulation technology , Desalination 2010; 259 : 103 –110
11. Viero F, Mazzarollo A, Wada K, Tessaro I, Removal of hardness and COD from retanning treated effluent by membrane process , Desalination 2002; 149: 145-149
12. Yilmaz E, Boncukcuoglu R , Kocakerim M , A quantitative comparison between electro coagulation and chemical coagulation for boron removal from boron-containing solution, Hazardous Materials 2007;149 : 475–481
13. Kim T, Dechlorination of disperse and reactive dyes by continuous electro coagulation process, Desalination, 2002; 150: 165-175.
14. Daida P, Removal of arsenic from water by electro coagulation using Al – Al , Fe – Fe electrode pair systems and characterization of by product, UMI Microform 2005; 23: 1-68.
15. Gao B Y, Yue Q Y, Wang B J, Chu Y B, Poly-aluminum-silicate-chloride (PASiC) – a new type of composite inorganic polymer coagulant, Colloids and surfaces A :Physicochem Eng Aspects 2003 ; 229: 121-127
16. Gao B Y, Hahn H H, Hoffmann E, Evaluation of aluminum – silicate polymer composite as a coagulant for water treatment, water Research 2002; 36: 3573-3581
17. Gao B Y, Yue Q Y, Wang Y, Coagulation performance of polyaluminum silicate chloride(PASiC) for water and wastewater treatment, Separation and Purification Technology 2007; 56 : 225–230
18. Mahvi A.H, Malakootian M, Heidari M.R, Comparison of Polyaluminum Silicate Chloride and Electrocoagulation Process, in Natural Organic Matter Removal from Surface Water in Ghochan, Iran, Water Chemistry and Technology 2011; 33(6): 377–385[Persian]
19. Malakootian M , Mansoorian H.J , Moosazadeh M, Performance evaluation of electrocoagulation process using iron-rod electrodes for removing hardness from drinking water, Desalination 2010 ; 255 : 67–71[Persian]
20. Lacasa E, Canizares P, Sáez C, Fernández F.J., Rodrigo M A, Modelling and cost evaluation of electro-coagulation processes for the removal of anions from water , Separation and Purification Technology 2013; 107: 219–227
21. Gao B Y, Yue Q, Wang B, The chemical species distribution and transformation of polyaluminum silicate chloride coagulant, Chemosphere 2002; 46 (6): 809–813.

22. APHA /AWWA /WEF, Standard method for examination of water and wastewater, American public health association publication, Washington DC, 2003.
23. Malakootian M, Yousefi N, The efficiency of electrocoagulation process using aluminum electrodes in removal of hardness from water. Iran. Environ. Health 2009; 6(2): 131 – 136[Persian]
24. Niu X, Li X, Zhao J, Ren Y, Yang Y, Preparation and coagulation efficiency of polyaluminium ferric silicate chloride composite coagulant from wastewater of high-purity graphite production , Environmental Sciences 2011; 23(7): 1122–1128
25. Tzoupanos N, Zouboulis A, Tsoleridis C, A systematic study for the characterization of a novel coagulant (polyaluminium silicate chloride), Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects 2009; 342: 30–39
26. Kumar R, Removal of arsenic from water by electro coagulation, Chemosphere 2004; 55: 1245 - 1252.
27. kumar R, Chaudhary s, Khilar K.C, Mahajan.S.P, Removal of arsenic from water by electro coagulation, Chemosphere 2004; 55: 1245 – 1252
28. Lacasa E, Canizares P, Sáez C, Fernández F.J., Rodrigo M A, Removal of nitrates from groundwater by Electrocoagulation, Chemical Engineering Journal 2011; 171: 1012– 1017
29. Hu C, LO S, Kuan W, Removal of fluoride from semi conductor wastewater by electro coagulation- flotation, Water Research 2005; 39: 895-901.
30. Ugurlu M, The removal of some inorganic compounds from paper mill effluents by electro coagulation method, Science 2004; 17(3): 85 - 99.
31. Huang C, Chen L, Chen-Lu Yang, Effect of anions on electrochemical coagulation for cadmium removal, Separation and Purification Technology 2009 ; 65: 137–146
32. Drouiche N, Electro coagulation treatment of chemical mechanical polishing wastewater : removal of fluoride – sludge characteristics – operation cost, desalination 2008; 223: 134-142.
33. Bazrafshan E, Mahvi A.H, Zazouli M.A, Removal of zinc and copper from aqueous Solutions by electrocoagulation technology using iron electrodes, Chemistry 2011; 23(12): 5506 -551[Persian]
34. Bazrafshan E, Performance evaluation of electro coagulation process for removal of chromium (VI) from synthetic chromium solutions using iron and aluminum electrodes, Turkish J.Eng .Env Sci 2008; 32: 59-66[Persian]

## Comparison of polyaluminum silicate chloride and electrocoagulation process efficiency in removal Of nitrate from aqueous solutions

Heidari MR<sup>1</sup> , Mahvi AH<sup>2</sup>

<sup>1</sup>MSc of Environmental Health Engineering, Department of Environment Health Engineering , School of Health, Bam University of Medical Sciences, Bam , Iran

<sup>2</sup>School of Public Health and Center for Environmental research, Tehran University of Medical Sciences, Tehran, Iran

**\*Corresponding Author:** Department of Environment Health Engineering, School of Health , Bam University of Medical Sciences, Bam , Iran

Email: moheidari86@gmail.com

### Abstract

**Background & Objectives :** Providing safe water for consumption with low cost is one of the main objective of water supply systems. A main source of nitrate in water is using excessive fertilizer. The high amounts of nitrate in water has a deteriorating effect on the environment and health so nitrate removal must be below the recommended levels of WHO guidelines. The purpose of this study is nitrate removal from aqueous solution by Poly Aluminum Silicate Chloride (PASIC) and Electro Coagulation process (EC).

**Materials and Methods :** This experimental study was aimed to examine efficiency of the effects of various operating parameters such pH (4-11), initial nitrate (25-100 mg L<sup>-1</sup>), contact time (5-60 min), residual aluminum in finished water by application of EC process and PASIC..

**Results:** The results showed that the applied methods have the ability to remove nitrate from aqueous solutions to levels less than standard those of WHO. PH and electrical potential difference had direct effect while contrast initial nitrate concentration had reverse effect of nitrate removal. The results showed that the coagulant PASIC and EC process, can reach nitrate removal respectively 65% and 55% , so that the optimum condition of the nitrate removal for EC was contact time of 60 min , a voltage of 30 W , pH = 10 and for PASIC was Concentration in 5 mg /L , contact time of 15 min , pH = 10. Our results showed significant differences between the mean concentration in all variables of the raw water before and after doing all process ( P = 0.05 ).

**Conclusion:** According to our findings PASIC coagulants in removing nitrates AD better performance than electro coagulation process. Given the higher performance of PASIC in the low concentration and natural pH of water than the EC process, it would be more cost- effective and economical. Residual aluminum in finished water was below the recommended WHO guidelines and Iranian standard institute. In terms of cost and efficacy this method could be considered as an alternative method to the drinking water treatment plant

**Keywords:** poly aluminum silicate chloride, Electro coagulation, Nitrate , aqueous solution

Recivied: 1 Jan 2011  
Revised:19 May 2013  
Accepted:11 Jun 2013