

# NGHIÊN CỨU PHƯƠNG PHÁP KEO TỤ ĐIỆN HÓA KẾT HỢP VỚI VI ĐIỆN HÓA ĐỂ XỬ LÝ CÁC ION KIM LOẠI NẶNG VÀ FLORUA TRONG NƯỚC THẢI

## RESEARCH ON ELECTROCOAGULATION COMBINED WITH MICRO-ELECTROLYSIS FOR THE TREATMENT OF HEAVY METAL AND FLUORIDE IONS IN WASTEWATER

Võ Anh Khuê

Trường Cao đẳng Công nghiệp Tuy Hòa, Phú Yên; Email: khue\_80@yahoo.com

**Tóm tắt** - Nghiên cứu sử dụng phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa để xử lý đồng thời hỗn hợp các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  trong nước thải. Kết quả cho thấy, điều kiện tối ưu của phương pháp này đạt được khi: pH ban đầu của dung dịch là 5, điện áp là 5 volt, thời gian xử lý là 30 phút, khối lượng hạt Fe-C là 60gam, kích thước hạt Fe-C là 20–27mesh. Với điều kiện tối ưu này và nồng độ ban đầu của các ion là 50mg/L thì hiệu suất xử lý của  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  lần lượt là 99.76%, 99.26%, 99.78%, 94.03%. Nước thải sau xử lý rất sạch và chất lượng nước tốt hơn tiêu chuẩn xả trực tiếp ra môi trường. Cơ chế xử lý florua chủ yếu là do sự hình thành kết tủa  $AlF_x(OH)_{3-x}$  và một phần nhỏ là do sự hấp phụ florua của sắt hidroxit.

**Từ khóa** - keo tụ điện hóa; vi điện hóa; ion kim loại nặng; florua; cơ chế.

**Abstract** - Using electrocoagulation method combined with micro-electrolysis method for simultaneous removal of  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  and  $F^-$  from wastewater was studied. The results show that, best removal capacity of this method for  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  and  $F^-$  was achieved in initial pH = 5, voltage= 5V, time =30 minute, mass of Fe-C= 60g, particle diameter of Fe-C =20–27mesh. With this optimal condition and the initial concentration of ions of 50mg/L, treatment efficiency of  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  and  $F^-$  with 99.76%, 99.26%, 99.78% and 94.03%, respectively, the effluent wastewater is very clear and its quality exceeds the direct discharge standard. The mechanism of defluoridation is mainly due to the formation of precipitate  $AlF_x(OH)_{3-x}$  and a small part is due to the adsorption of iron hydroxide.

**Key words** - electrocoagulation; micro-electrolysis; heavy metal ions; fluoride; mechanism.

### 1. Đặt vấn đề

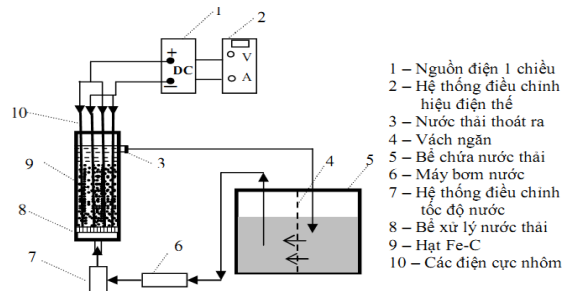
Việc loại bỏ các ion kim loại nặng và florua trong nước thải của các ngành khai thác mỏ, luyện kim, mạ điện,... đang là vấn đề cần quan tâm do tính độc hại của các ion này đối với con người và môi trường. Đặc biệt nước thải trong ngành công nghiệp luyện kim chì và kẽm có độ pH thấp, nồng độ của các ion chì, kẽm, đồng, florua rất cao [1]. Do đó các phương pháp xử lý nước thải như phương pháp sinh học, phương pháp màng, phương pháp hấp phụ,... không phù hợp để xử lý nước thải luyện kim chì và kẽm. Hiện nay phương pháp phổ biến nhất để xử lý loại nước thải này là phương pháp trung hòa bằng vôi [2]. Tuy nhiên phương pháp này có nhiều nhược điểm như: sinh ra lượng bùn thải lớn, nước thải sau xử lý có độ cứng cao nên không thể tái sử dụng, hiệu suất xử lý các ion kim loại không cao và nhất là xử lý ion florua không đạt tiêu chuẩn xả thải ra môi trường [3].

Do đó, việc nghiên cứu một phương pháp mới phù hợp để xử lý nước thải luyện kim chì và kẽm là cấp thiết. Trong bài báo này, sử dụng kết hợp 2 phương pháp keo tụ điện hóa và vi điện hóa để xử lý mẫu nước chứa đồng thời các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$ . Cả hai phương pháp này đều có những ưu điểm và nhược điểm riêng. Nhưng khi kết hợp với nhau sẽ phát huy ưu điểm và hạn chế nhược điểm của từng phương pháp nên rất phù hợp cho xử lý nước thải luyện kim chì và kẽm.

### 2. Hóa chất, thiết bị và phương pháp nghiên cứu

Các hóa chất sử dụng trong thí nghiệm bao gồm:  $Pb(NO_3)_2$ ,  $ZnSO_4$ ,  $CuSO_4$ , NaF, NaCl,  $H_2SO_4$ ,  $HNO_3$ , NaOH, ....(tất cả đều tinh khiết phân tích); Quy cách của các điện cực nhôm là: dài 28cm, rộng 4.7cm, dày 1mm (độ tinh khiết  $\geq 99\%$ ); bột Fe-C tự chế tạo có thành phần 70.4% Fe, 20.7% C, còn lại là các thành phần khác.

Thiết bị sử dụng trong thí nghiệm bao gồm: Bộ dụng cụ tự chế tạo như hình 1, máy đo tốc độ dòng nước LZB-25, máy bơm nước, máy KGF50A/50V cung cấp dòng điện 1 chiều, máy quang phổ hấp thụ nguyên tử AA240FS, máy PXSJ-216F và các dụng cụ khác.



Hình 1. Quy trình của phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa

Trong đó, bộ dụng cụ tự chế tạo có bể chứa nước thải với thể tích 3.5 lít; Bể xử lý nước thải có thể tích 0.66 lít; Có 4 điện cực nhôm, với các điện cực dương và âm được đặt xen kẽ nhau; Các hạt Fe-C được đặt vào khoảng không gian giữa 4 điện cực nhôm. Như vậy, quá trình keo tụ điện hóa sẽ xảy ra trên bề mặt các điện cực nhôm, quá trình vi điện hóa sẽ xảy ra trên bề mặt của các hạt Fe-C.

Xác định nồng độ của  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  bằng phương pháp quang phổ hấp thụ nguyên tử; Xác định nồng độ florua bằng phương pháp đo điện hóa; Xác định hàm lượng nhôm bằng phương pháp chuẩn độ phức chất.

### 3. Kết quả và thảo luận

#### 3.1. Khảo sát ảnh hưởng của các yếu tố đến hiệu suất xử lý các ion

Đối tượng nghiên cứu của thí nghiệm là mẫu nước chứa hỗn hợp các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$ . Nồng độ ban đầu

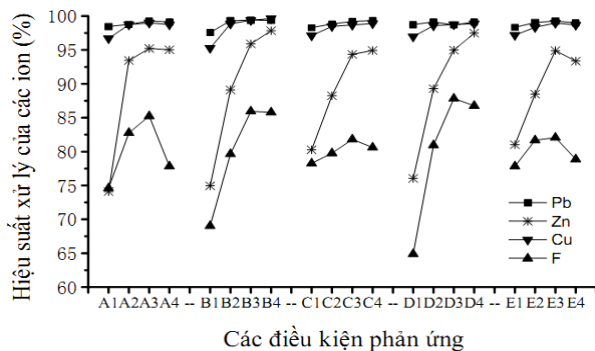
của các ion này đều là 50mg/L. Trong phần này, sử dụng thí nghiệm trực giao để khảo sát ảnh hưởng của các yếu tố đến hiệu suất xử lý các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$ . Các yếu tố và các mức thí nghiệm tương ứng được thể hiện trong bảng 1.

**Bảng 1.** Các yếu tố thí nghiệm và các mức tương ứng  $L_{16}(4^5)$

| Các mức | Các yếu tố |    |    |   |       |
|---------|------------|----|----|---|-------|
|         | A          | B  | C  | D | E     |
| 1       | 3          | 10 | 30 | 3 | 14-17 |
| 2       | 4          | 20 | 45 | 4 | 18-19 |
| 3       | 5          | 30 | 60 | 5 | 20-27 |
| 4       | 6          | 40 | 75 | 6 | 28-34 |

Trong đó, trọng điểm khảo sát các yếu tố là: A- pH ban đầu của dung dịch, B- thời gian xử lý (phút), C- khối lượng hạt Fe-C (gam), D- điện áp (vôn), E- kích thước hạt Fe-C (mesh). Các yếu tố khác của thí nghiệm được cố định như: khoảng cách 2 điện cực gần nhất là 1.4cm, tốc độ dòng nước thải là 260 lít/giờ, nồng độ của NaCl là 0.5g/L.

Dựa vào dữ liệu bảng 1 và cách thiết kế thí nghiệm trực giao loại  $L_{16}(4^5)$  [4], tiến hành các thí nghiệm. Sau đó sử dụng phương pháp phân tích phương sai để phân tích kết quả. Kết quả thí nghiệm được trình bày ở hình 2.



**Hình 2.** Quan hệ giữa điều kiện thí nghiệm với hiệu suất xử lý các ion

Từ hình 2 nhận thấy: Phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa đã xử lý các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  trong nước thải đạt hiệu suất cao. Khả năng xử lý của phương pháp này đối với các ion theo thứ tự hiệu suất xử lý tăng dần là  $Pb^{2+} \approx Cu^{2+} > Zn^{2+} > F^-$ . 5 yếu tố với 4 mức tương ứng hầu như không ảnh hưởng đến hiệu suất xử lý của  $Pb^{2+}$  và  $Cu^{2+}$ . Nhưng chúng ảnh hưởng tương đối lớn đến hiệu suất xử lý của  $Zn^{2+}$  và  $F^-$ . Điều kiện tối ưu cho xử lý đồng thời các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  để đạt hiệu suất cao và giá thành xử lý thấp là  $A_3B_3C_3D_3E_3$ , tương ứng với pH ban đầu của dung dịch là 5, thời gian xử lý là 30 phút, khối lượng hạt Fe-C là 60g, điện áp là 5V, kích thước hạt Fe-C là 20~27mesh (mặc dù điều kiện  $B_4$  và  $D_4$  xử lý  $Zn^{2+}$  tốt hơn điều kiện  $B_3$  và  $D_3$  khoảng 2%, nhưng không lựa chọn  $B_4$  và  $D_4$  làm điều kiện tối ưu vì: lượng Fe-C sử dụng nhiều hơn, năng lượng tiêu hao cao hơn, hiệu suất xử lý  $F^-$  thấp hơn và đặc biệt là các điện cực phát nhiệt làm ảnh hưởng đến độ bền của hệ thống xử lý nước thải).

Tại điều kiện tối ưu này, tiến hành xử lý mẫu nước chứa các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  bằng phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa. Sau xử lý nồng độ còn lại của

các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  tương ứng là 0.118mg/L, 0.369mg/L, 0.112mg/L, 2.986mg/L. Căn cứ vào tiêu chuẩn nước thải công nghiệp (TCVN 5945: 2005), nhận thấy: nồng độ dư lượng của  $Pb^{2+}$  nhỏ hơn cột B; nồng độ dư lượng của  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  nhỏ hơn cột A.

### 3.2. Khảo sát hiệu suất của cường độ dòng điện

Hiệu suất của cường độ dòng điện được định nghĩa là tỉ lệ giữa lượng kim loại bị ăn mòn ở điện cực trong điều kiện thực tế so với lý thuyết. Đây là thông số rất quan trọng trong phương pháp keo tụ điện hóa, vì thông số này ảnh hưởng đến tuổi thọ của điện cực [5]. Tiến hành thí nghiệm xử lý hỗn hợp các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  ở điều kiện tối ưu là  $A_3B_3C_3D_3E_3$ . Kết quả cho thấy, lượng nhôm bị ăn mòn thực tế tương ứng là 0.400g. Đối với lượng nhôm bị ăn mòn theo lý thuyết được tính toán dựa vào định luật Faraday [5]. Kết quả như sau:

$$m_{Al} = \frac{Alt}{nF} = \frac{27 \times 1.4 \times 30 \times 60}{3 \times 96500} = 0.235g$$

Trong đó:  $m_{Al}$  - khối lượng nhôm bị ăn mòn (g), A-khối lượng mol nguyên tử của nhôm (g/mol), I - cường độ dòng điện (ampe), t – thời gian (giây), n - số electron trao đổi, F - hằng số Faraday (96500C)

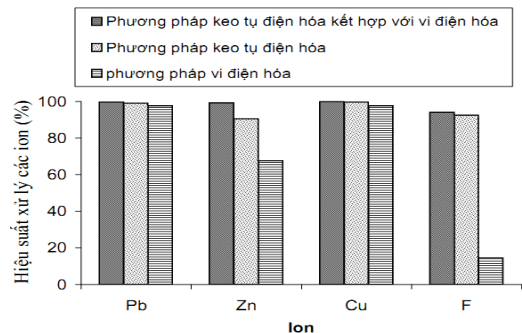
Như vậy hiệu suất của cường độ dòng điện là 170.21%. Kết quả này cho thấy, lượng nhôm bị ăn mòn trong thực tế thí nghiệm nhanh hơn lý thuyết, vì ngoài quá trình ăn mòn điện hóa còn có quá trình ăn mòn hóa học. Điều này có ý nghĩa lớn là thời gian xử lý nước thải được rút ngắn nên giá thành xử lý nước thải sẽ giảm.

### 3.3. So sánh các phương pháp

#### 3.3.1. So sánh hiệu suất xử lý các ion

Hiệu suất xử lý các ion kim loại và florua của các phương pháp được trình bày ở hình 3. Cả 3 phương pháp đều được tiến hành với bộ dụng cụ như hình 1. Trong đó, các điều kiện thực hiện của từng phương pháp là:

- Phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa được thực hiện ở điều kiện tối ưu như mục 3.1.
- Phương pháp keo tụ điện hóa cũng được thực hiện ở điều kiện tối ưu như mục 3.1, chỉ khác nhau là ở giữa các điện cực không có hạt Fe-C.
- Phương pháp vi điện hóa được thực hiện ở điều kiện: khối lượng hạt Fe-C là 150g, không có các điện cực, còn tất cả các điều kiện khác giống với phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa.

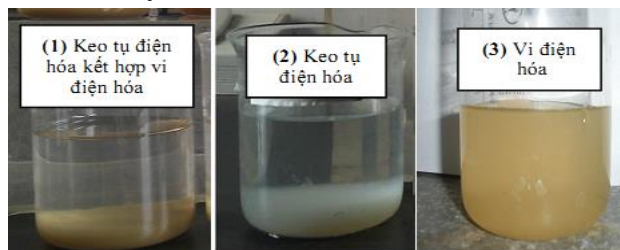


**Hình 3.** So sánh hiệu suất xử lý các ion kim loại và florua của các phương pháp

Từ hình 3 nhận thấy, phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa có khả năng xử lý đồng thời hỗn hợp các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  tốt hơn so với 2 phương pháp còn lại. Đặc biệt nhận thấy, phương pháp vi điện hóa xử lý  $F^-$  rất kém. Điều này chứng tỏ khả năng hấp phụ  $F^-$  của các kết tủa sắt hidroxit kém hơn nhôm hidroxit (kết quả này tương đồng với tài liệu [6]).

### 3.3.2. So sánh mẫu nước sau xử lý

Mẫu nước sau xử lý bằng 3 phương pháp khác nhau được trình bày ở hình 4.



**Hình 4.** So sánh các mẫu nước sau xử lý

Từ hình 4 nhận thấy: Mẫu (1) có tốc độ lắng kết tủa rất nhanh, phần kết tủa và dung dịch tách biệt rõ ràng, dung dịch sau xử lý trong suốt, lượng kết tủa nhỏ hơn mẫu (2); Mẫu (2) có tốc độ lắng kết tủa chậm hơn mẫu (1), điều này có thể giải thích là do trọng lượng riêng của kết tủa nhôm hidroxit nhỏ hơn hỗn hợp kết tủa nhôm hidroxit và sắt hidroxit; mẫu (3) có dạng huyền phù nên không đạt tiêu chuẩn xử lý nước thải.

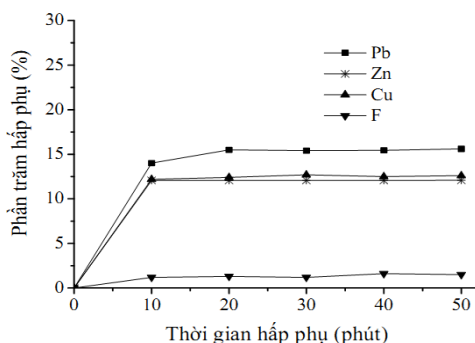
Như vậy sử dụng phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa để xử lý đồng thời các ion  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  trong nước thải là tốt hơn so với chỉ sử dụng một trong hai phương pháp là keo tụ điện hóa hoặc vi điện hóa.

### 3.4. Phân tích cơ chế xử lý

Cơ chế xử lý nước thải của phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa bao gồm 3 cơ chế hợp thành: cơ chế hấp phụ của cacbon trong hạt Fe-C, keo tụ điện hóa và vi điện hóa. Mỗi cơ chế có vai trò xử lý các ion trong nước thải như sau:

#### 3.4.1. Cơ chế hấp phụ của cacbon

Khả năng hấp phụ của cacbon trong hạt Fe-C đối với các ion kim loại và florua được trình bày ở hình 5.



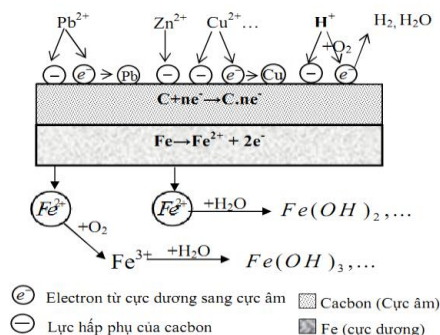
**Hình 5.** Cacbon hấp phụ các ion kim loại và florua

Từ hình 5 nhận thấy: cacbon có khả năng hấp phụ  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  kém, không có khả năng hấp phụ  $F^-$ . Mỗi 1 gam cacbon có dung lượng hấp phụ 0.225mg  $Pb^{2+}$ , 0.180mg  $Zn^{2+}$ , 0.180mg  $Cu^{2+}$ , 0.000mg  $F^-$ . Như vậy có thể

trên bề mặt cacbon có chứa các nhóm mang điện tích âm nên có khả năng hấp phụ các ion dương.

#### 3.4.2. Cơ chế của quá trình vi điện hóa

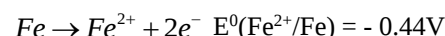
Mỗi hạt Fe-C trong môi trường nước thải là một nguồn điện với hiệu điện thế rất nhỏ nên khả năng hòa tan sắt diễn ra rất chậm. Nhưng dưới tác dụng của điện trường ngoài sẽ tăng cường quá trình vi điện hóa nhanh hơn, giúp rút ngắn thời gian xử lý nước thải. Cơ chế phản ứng của quá trình vi điện hóa được mô tả như hình 6.



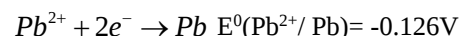
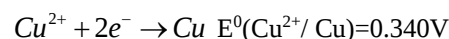
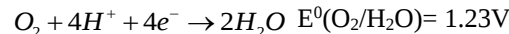
**Hình 6.** Cơ chế của quá trình vi điện hóa

Từ hình 6 nhận thấy:

1) Phản ứng ở cực dương:

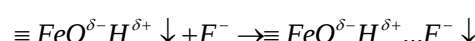
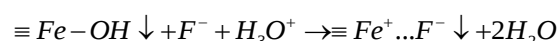
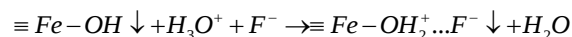


2) Phản ứng ở cực âm: Bề mặt cacbon tồn tại lực hấp phụ các ion dương và có các electron tự do, nên xảy ra các phản ứng khử một số ion dương tạo thành đơn chất.



$Zn^{2+}$  không bị khử thành Zn vì  $E^0(Zn^{2+}/Zn)$  nhỏ hơn  $E^0(Fe^{2+}/Fe)$ .

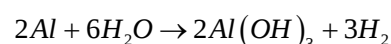
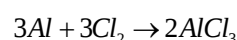
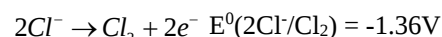
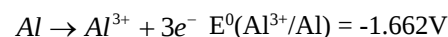
3) Các phản ứng trong dung dịch: quá trình vi điện hóa diễn ra làm pH của dung dịch tăng lên, dẫn đến sự hình thành các kết tủa sắt hidroxit. Các kết tủa này có khả năng đồng kết tủa với ion kim loại và hấp phụ  $F^-$ . Nhưng khả năng hấp phụ  $F^-$  yếu [6, 7].



#### 3.4.3. Cơ chế của quá trình keo tụ điện hóa

Cơ chế của quá trình keo tụ điện hóa với các điện cực nhôm như sau:

(1) Các phản ứng ở cực dương:



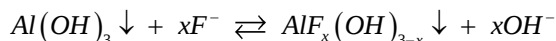
Như vậy điện cực nhôm bị ăn mòn bởi 2 quá trình là ăn mòn điện hóa và ăn mòn hóa học. Nên hiệu suất của cường độ dòng điện đạt giá trị 170.21% (như mục 3.2).

#### (2) Các phản ứng ở cực âm:

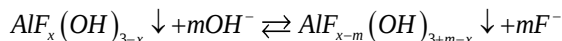
Bề mặt cực âm tồn tại các electron tự do, nên xảy ra các phản ứng khử một số ion dương tạo thành đơn chất, cơ chế phản ứng tương tự như ở cực âm của quá trình vi điện hóa.

#### (3) Các phản ứng xảy ra trong dung dịch:

Ion  $Al^{3+}$  trong dung dịch bị thủy phân tạo thành  $AlOH^{2+}$ ,  $Al(OH)_2^+$ ,  $Al(OH)_3$ , ... Các kết tủa nhôm hydroxit này có khả năng đồng kết tủa với các ion kim loại như  $Zn^{2+}$ ,  $Pb^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$ . Đặc biệt kết tủa nhôm hydroxit có khả năng hấp phụ rất tốt ion  $F^-$ , phản ứng như sau [6]:



Quá trình hấp phụ  $F^-$  của nhôm hydroxit bị ảnh hưởng rất lớn bởi pH của dung dịch. pH của dung dịch thích hợp nhất cho quá trình này là trong khoảng 6 - 7 [6]. Nếu pH < 6 thì sự hình thành  $Al(OH)_3$  không nhiều nên khả năng hấp phụ  $F^-$  kém. Ngược lại nếu pH > 7 thì dễ dàng xảy ra phản ứng giải hấp  $F^-$ , phản ứng như sau [8]:



### 4. Kết luận

(1) Điều kiện tối ưu của phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa là: pH ban đầu là 5, thời gian xử lý là 30 phút, khối lượng hạt Fe-C là 60g, điện áp là 5V, kích thước hạt Fe-C là 20~27mesh. Nước thải sau xử lý có dư lượng nồng độ của  $Pb^{2+}$ ,  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  lần lượt là 0.118mg/L, 0.369mg/L, 0.112mg/L, 2.986mg/L. Căn cứ vào tiêu chuẩn nước thải công nghiệp (TCVN 5945: 2005) thì nồng độ dư lượng của  $Pb^{2+}$  nhỏ hơn cột B; Nồng độ dư lượng của  $Zn^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$  và  $F^-$  nhỏ hơn cột A.

(2) Cơ chế xử lý các ion  $Pb^{2+}$  và  $Cu^{2+}$  của phương pháp keo tụ điện hóa kết hợp với vi điện hóa chủ yếu là do sự khử  $Pb^{2+}$  và  $Cu^{2+}$  tạo thành kim loại Pb và Cu; Cơ chế xử lý của ion  $Zn^{2+}$  là do sự hình thành kết tủa kẽm hydroxit thông qua quá trình đồng kết tủa với nhôm hydroxit và sắt hydroxit; Cơ chế xử lý của  $F^-$  chủ yếu là do sự hình thành kết tủa  $AlF_x(OH)_{3-x}$  và một phần nhỏ là do sự hấp phụ của các kết tủa sắt hydroxit.

### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Yang Jinjin, Xu Xiaojun, et al, "Treatment of zinc and lead smelting wastewater containing heavy metals by combined process of microelectrolysis with flocculation", *The Chinese Journal of nonferrous metals*, 22(7), 2012, 2125-2132.
- [2] Konstantinos Dermentzis, Achilleas Christoforidis, Evgenia Valsamidou, "Removal of nickel, copper, zinc and chromium from synthetic and industrial wastewater by electrocoagulation", *International Journal of Environmental Sciences*, 1 (5), 2011, 697-710.
- [3] N. Parthasarathy, J. Buffle, W. Haerdi, "Combined use of calcium salts and polymeric aluminium hydroxide for defluoridation of wastewater", *Water Research*, 20 (4), 1986, 443-448.
- [4] Ya-fei Zhou, Mao Liu, Qiong Wu, "Water quality improvement of a lagoon containing mixed chemical industrial wastewater by micro-electrolysis-contact oxidization", *Journal of Zhejiang University-Science A (Applied Physics & Engineering)*, 12 (5), 2011, 390-398.
- [5] Z. Zaroual, M. Azzi, N. Saib, E. Chainet, "Contribution to the study of electrocoagulation mechanism in basic textile effluent", *Journal of Hazardous Materials*, 131(1-3), 2006, 73-78.
- [6] Salaheddine Aoudj, Nadjib Drouiche, et al, "Coagulation as a post-treatment method for the defluoridation of photovoltaic cell manufacturing wastewater", *Procedia Engineering*, 33, 2012, 111-120.
- [7] Krishna Biswas, Kaushik Gupta, et al, "Fluoride removal efficiency from aqueous solution by synthetic iron(III) -aluminum(III) -chromium(III) ternary mixed oxide", *Desalination*, 255 (1-3), 2010, 44-51.
- [8] C.Y. Hu, S.L. Lo, W.H. Kuan, "Effects of themolar ratio of hydroxide and fluoride to Al(III) on fluoride removal by coagulation and electrocoagulation", *Journal of Colloid and Interface Science*, 283 (2), 2005, 472-476.

(BBT nhận bài: 27/05/2014, phản biện xong: 16/06/2014)