



REMOÇÃO DE FLUORETOS DE SOLUÇÕES POR ELETROCOAGULAÇÃO: ANÁLISE DA VARIAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO E DO pH INICIAL

RICARDO, A.A.¹, NIGRI, E.M.¹, SANTOS, A.L.A.¹, ROCHA, S.D.F.^{1,2}

¹Universidade Federal de Minas Gerais (UFMG), Departamento de Engenharia de Minas, Laboratório de Processamento Mineral e Meio Ambiente. e-mail: arthur.andrade.ricardo@gmail.com

²Pesquisadora CNPq

RESUMO

A ocorrência de fluoretos em água pode ser natural devido à composição das rochas na crosta terrestre. Entretanto, as atividades industriais, dentre elas a mineração, podem ser geradoras de efluentes com concentrações elevadas de fluoretos. A Resolução 430/2011 CONAMA estabelece a concentração máxima de fluoreto de 10mg/L para lançamento dos efluentes em corpos d'água. Este trabalho avaliou a aplicação de eletrocoagulação para tratamento de soluções contendo diferentes concentrações iniciais de fluoreto (10, 20 e 30mg/L) e diferentes pHs iniciais (6 e 8) objetivando uma solução tratada com concentração inferior a 10mg/L. Os resultados indicaram remoções de fluoreto da ordem de 90% para o período de 60 minutos. Concentrações inferiores ao limite estabelecido pela Resolução CONAMA 430/2011 foram obtidas em tempos inferiores a 25 minutos, determinado pelo estudo cinético. Nessas condições o consumo energético máximo é da ordem de 2,0Wh/L para reduzir a concentração de fluoreto de 30mg/L a 4 ppm em pH 8. A caracterização dos sólidos gerados no processo mostrou a presença de hidróxidos de alumínio e cloreto de sódio indicando que a remoção de fluoreto deve ocorrer por meio de adsorção nos coágulos formados.

PALAVRAS-CHAVE: Eletrocoagulação, Tratamento de efluentes, Meio ambiente, Remoção de Fluoreto.

ABSTRACT

The presence of fluorides in water can be natural due to the composition of the earth's crust rocks. However, industrial activities, such as mining, can generate effluents with high fluoride concentrations. The Resolution of CONAMA number 430/2011 establishes the maximum fluoride concentration for effluent discharges into water resources is 10mg/L. This paper aims to evaluate the application of electrocoagulation to remove fluoride from aqueous solutions by varying the initial fluoride concentration (10, 20 and 30mg/L) and the initial pH (6 and 8) to obtain a solution treated with a fluoride concentration lower than 10mg/L. The results indicated fluoride removals about 90% at 60 minutes. Concentrations below the limit established by the Resolution of CONAMA 430/2011 were obtained in 25 minutes, as determined by the kinetic study. The maximum energy consumption was around 2.0Wh/L to reduce the fluoride from 30mg/L to 6 ppm at initial pH 8. The characterization of the solids generated in the process showed the presence of aluminum hydroxides and sodium chloride, which indicate that the removal of fluoride must occur through adsorption in the clots formed.

KEYWORDS: Electrocoagulation, Wastewater treatment, Environment, Fluoride removal.

1. INTRODUÇÃO

A existência de fluoretos no meio ambiente é natural, uma vez que o flúor está presente na composição de minerais que fazem parte da crosta terrestre. Esses, em algumas condições, podem ser lixiviados/solubilizados pela água (Ezzeddine et al., 2014). O fluoreto pode ser resultado de atividades antrópicas como nas indústrias de semicondutores, eletrodeposição, vidro, aço, cerâmica, fertilizantes e mineração (Khatibikamal et al., 2010; Sujana et al., 1998; Toyoda e Taira, 2000; Chang e Liu, 2007). Dessa forma, a contaminação por fluoretos pode ocorrer de forma natural em águas subterrâneas, dependendo de características geológicas, químicas e físicas do aquífero, e também por meio dos efluentes produzidos pelas atividades industriais (Ezzeddine et al., 2014).

A ingestão de flúor de 0,5 a 1,5mg/dia é benéfica para o desenvolvimento ósseo e dental (Varol et al., 2010). Entretanto, a ingestão em excesso pode trazer malefícios como a fluorose dentária e a esquelética (Sharma et al., 2015; Mondal e George, 2015), danos metabólicos, estruturais e funcionais em órgãos do sistema nervoso, glândulas endócrinas, sistema reprodutor, hipertensão, rins e fígado (Ezzeddine et al., 2014).

O Conselho Nacional de Meio Ambiente (CONAMA) em sua Resolução CONAMA 430/2011, estabeleceu um limite máximo de 10mg/L de fluoreto para o lançamento de efluentes em corpos d'água. Quando a concentração de fluoretos é superior ao estabelecido na Resolução CONAMA 430/2011, alternativas para tratamento devem ser pensadas para que o efluente não atinja o meio ambiente. Em algumas situações o represamento em barragens geoimpermeabilizadas é praticado, mas que apresentam alto custo de manutenção. Várias técnicas podem ser utilizadas para a remoção de fluoretos em efluentes, sendo a mais comum a precipitação química (Benefield et al., 1982), mas outras alternativas como a troca iônica (Kunin, 1990), osmose inversa (Colla et al., 2016), adsorção (Nigri et al., 2016), troca iônica (Kunin, 1990), eletrodialise (Gwala et al., 2011) e nanofiltração (Simons, 1993), podem ser utilizadas. A eletrocoagulação também pode ser utilizada e vem ganhando espaço (Emamjomeh e Sivakumar, 2009). Entretanto, todos os métodos citados possuem seus princípios de operações, limitações, aplicações, vantagens e desvantagens (Shrivastava e Sharma, 2012) e devem ser avaliados para situações específicas.

A eletrocoagulação é um processo simples, sem a necessidade de adição de reagentes, que utiliza uma fonte de energia elétrica convencional, proporcionando tempos operacionais curtos (30min ou 1h de tratamento) e com bons resultados para o tratamento de vários tipos de efluentes contendo poluentes orgânicos ou inorgânicos (Butler et al., 2011). O trabalho de Shen et al. (2013) que avaliou a remoção de fluoretos em efluente industrial utilizando técnicas combinadas de eletrocoagulação e eletroflotação, resultaram na redução da concentração de fluoreto 20mg/L para menos de 2mg/L.

O mecanismo da eletrocoagulação consiste na utilização de uma corrente contínua entre eletrodos de metal imersos no efluente. A corrente elétrica causa a dissolução do anodo, comumente de ferro ou alumínio, e os íons metálicos gerados no meio podem formar uma variedade de espécies e hidróxidos metálicos que desestabilizam e agregam as partículas suspensas ou precipitam e adsorvem os contaminantes dissolvidos (Drouiche et al., 2009; Mollah et al., 2004). Além disso, o catodo produz a formação de bolhas de hidrogênio que promovem uma turbulência no sistema, conseqüentemente aumentando o processo de floculação e pode causar a flotação dos sólidos (Garg e Sharma, 2016; Canizares et al., 2009; Emamjomeh e Sivakumar, 2009).

As principais reações químicas no processo de eletrocoagulação que ocorrem em eletrodos de alumínio são representadas nas Equações 1-3 (Takdastan et al., (2015) e Bazrafshan et al., 2012).



Atuando como adsorventes, coágulos de hidróxidos de alumínio ou hidróxidos de ferro, dependendo do eletrodo utilizado, removem contaminantes da solução (Takdastan et al., 2015; Bazrafshan et al., 2012).

No entanto, o processo eletrocoagulação aporta ao efluente uma concentração residual de alumínio que, de acordo com as diretrizes da USEPA (*United States Environmental Protection Agency*) deve ser de 0,05-0,2mg/L na água tratada (Vasudevan et al., 2009; Picard et al., 2000). Por outro lado, a Resolução CONAMA 430/2011 não apresenta padrões de lançamento de Al nos efluentes mas sim o valor da concentração de Al de 1,5mg/L para o enquadramento de todas as classes das coleções de água.

Neste sentido, o objetivo deste trabalho é avaliar o uso potencial da eletrocoagulação para remoção de fluoretos de soluções através da variação de parâmetros como concentração inicial de fluoreto e pH inicial, tendo como meta a obtenção de soluções com concentração residual de fluoreto inferior a 10mg/L, o limite estabelecido pela legislação ambiental brasileira.

2. MATERIAL E MÉTODOS

Preparou-se uma solução estoque de 1000mg/L de fluoreto adicionando 2,2102g de NaF PA em 1L de água destilada. A partir da solução estoque, foram preparadas soluções aquosas de 2L contendo 10, 20 e 30mg/L de fluoretos e acrescentou-se 0,5% NaCl, para elevar a condutividade elétrica da solução (Shen et al., 2003). Foram realizados ensaios de eletrocoagulação em condições de pH inicial 6 e 8, ajustados com HCl (1mol/L) e NaOH (1mol/L).

A Figura 1 apresenta o sistema de eletrocoagulação aplicado à remoção de fluoretos. Os experimentos foram realizados utilizando-se 1,5L de solução, 4 placas de alumínio (área submersa de 200cm²/placa) e corrente elétrica de 3^A e temperatura ambiente de 25°C. Foi selecionado o arranjo monopolar que apresentou, em estudos prévios, melhores rendimentos.

As amostras foram coletadas em 0, 10, 25, 40 e 60 minutos e filtradas em filtro de membranas de 4-7µm (tamanho de poro) para determinação da concentração residual de fluoreto (Eletrodo de íon específico), alumínio (Espectrometria de absorção atômica), pH e condutividade (instrumentais). Os sólidos também foram coletados e secos em estufa para caracterização (Difratometria de raios-x e Espectrometria no Infravermelho).

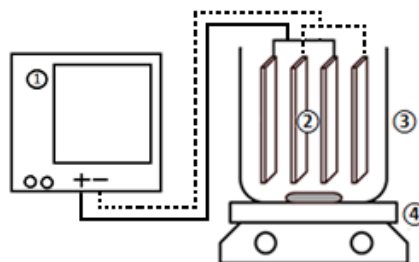


Figura 1. Sistema de eletrocoagulação. (1) Fonte DC Power FA-3005-INSTRUTHERM, 0-30V; 0-5A, (2) 4 placas de alumínio com 0,5cm de distância entre as mesmas, (3) Reator de acrílico com capacidade máxima de 1,8L, (4) agitador magnético.

Ao aplicar a técnica de eletrocoagulação alguns parâmetros do processo como, densidade de corrente (δ – [mA/cm²]), energia consumida (C – [Wh/L]) e quantidade de metal consumido (m – [g]) (Parga et al., 2009), devem ser determinados para efeitos de comparação. As Equações 4-6 indicam como esses parâmetros podem ser obtidos e para avaliar a cinética de reação foram empregados modelos cinéticos de primeira e segunda ordem (Equações 7 e 8).

$$\delta = i/a \quad (4)$$

$$C = U \cdot i \cdot t/V \quad (5)$$

$$m = \frac{i \cdot t \cdot W}{n \cdot F} \quad (6)$$

$$C_t = C_0 e^{-k_1 t} \quad (7)$$

$$\frac{1}{C_t} = \frac{1}{C_0} + k_2 t \quad (8)$$

Nas Equações 4-6, i é a corrente elétrica [mA], a é a área submersa do eletrodo (anodo)[cm²], U é a tensão elétrica [V], i é a corrente elétrica [A], t é o tempo [h] (Equação 5) e [s] (Equação 6), V é o volume do efluente tratado [L], W é a massa molar do material do eletrodo [g/mol], n é o número de elétrons na reação de oxirredução e F é a constante de Faraday (96485A.s/mol).

Nas Equações 7 e 8, C_t é a concentração de adsorvato no tempo t [mg/L]), C_0 é a concentração inicial de adsorvato[mg/L], k_1 e k_2 são as constantes de adsorção de primeira e segunda ordem e t é o tempo[min].

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Tabela 1 apresenta os resultados obtidos com os ensaios de eletrocoagulação para soluções sintéticas de fluoreto. Em todos os ensaios aplicou-se a mesma densidade de corrente de 7,5mA/cm² e percebe-se que a concentração final de fluoretos após 60 minutos está abaixo do limite estabelecido pela Resolução CONAMA nº 430/2011. O pH das soluções resultantes é elevado para a faixa entre 9,0 e 9,4, mesmo nos tempos iniciais, enquanto não houve variação expressiva na condutividade que se mantém na faixa de 9200 a 9500µS/cm.

O consumo médio dos eletrodos de alumínio foi de 1,3117g/L, não diferindo muito do seu consumo teórico de 1,0067g/L (Equação 6).

Tabela 1. Resultados dos testes de eletrocoagulação para remoção de fluoretos.

Teste	pH	Condutividade ($\mu\text{S/cm}$)	Al (mg/L)	Consumo de eletrodo (g/L)	F ⁻ (mg/L)
10 mg/L F ⁻ , pH 6	6,06 - 9,26	9401 - 9188	0 - 18,5	1,3942	10,6 - 1,2
10 mg/L F ⁻ , pH 8	7,96 - 9,27	9208 - 9140	0 - 26,8	1,5125	14,5 - 1,4
20 mg/L F ⁻ , pH 6	6,00 - 9,23	9162 - 9186	0 - 30,5	1,2659	22,6 - 2,6
20 mg/L F ⁻ , pH 8	7,97 - 9,44	9532 - 9265	0 - 38,9	1,3126	21,7 - 2,3
30 mg/L F ⁻ , pH 6	5,97 - 9,28	9295 - 9326	0 - 36,8	1,1826	32,4 - 4,0
30 mg/L F ⁻ , pH 8	8,01 - 9,24	9398 - 9358	0 - 47,3	1,2023	32,7 - 3,9

Embora após 60 minutos de ensaio a concentrações de fluoreto tenha atingido valores inferiores a 10mg/L, percebe-se que em apenas 10 minutos há uma remoção considerável de fluoretos (Figura 2), indicando uma cinética rápida. Somente para concentrações iniciais de fluoreto de 30mg/L, a concentração residual de fluoreto foi superior a 10mg/L apresentando, para 10 minutos uma remoção de 57,4% (13,8mg/L F⁻) e 58,4% (13,6mg/L F⁻) em pHs iniciais 6 e 8, respectivamente. Ainda assim, são valores muito próximos ao limite máximo para lançamento de efluente (Resolução CONAMA 430/2011) considerando apenas estes 10 minutos iniciais o que pode indicar, para tratamento de efluentes que tempos de residência menores ainda podem ser possíveis. Os resultados obtidos por Shen et al. (2003), mostraram ser possível obter concentração residual de fluoreto abaixo de 4mg/L em pHs na faixa 4-8, para um efluente com concentração inicial de 15mg/L em 20 minutos de processo.

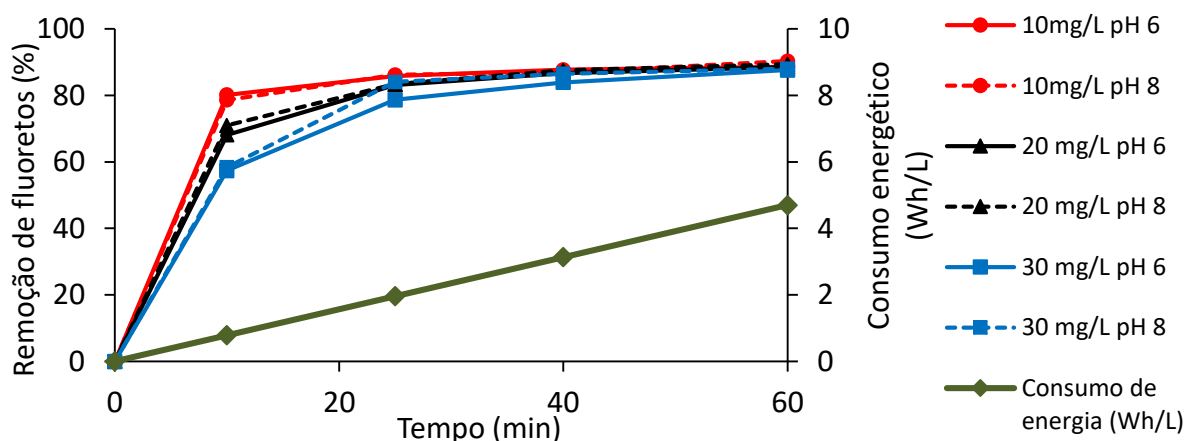


Figura 2. Remoção de fluoreto e consumo energético dos ensaios de eletrocoagulação com eletrodos de alumínio em arranjo monopolar, 25°C.

O consumo energético determinado é de 0,8Wh/L de solução tratada, para concentrações iniciais de fluoreto de 10 e 20mg/L (10 minutos), e de 2,0Wh/L de solução tratada, para concentrações iniciais de fluoreto de 30mg/L (25 minutos). Entretanto, há possibilidade do consumo ser menor visto que a concentração limite pode ser atingida em

tempo inferior a 25 minutos. Considerando que se gasta 4,7Wh/L de energia em 60 minutos, tempos menores de residência reduzem o consumo de energia em mais de 50%.

O consumo energético determinado é de 0,8Wh/L de solução tratada, para concentrações iniciais de fluoreto de 10 e 20mg/L, e de 2,0Wh/L de solução tratada, para concentrações iniciais de fluoreto de 30mg/L. Entretanto, há ainda possibilidade de o consumo ser menor visto que a concentração limite pode ser atingida em 25 minutos. Considerando que se gasta 4,7Wh/L de energia em 60 minutos, tempos menores de residência economizam energia em mais de 50%.

O estudo cinético do ensaio de eletrocoagulação com concentração inicial de fluoreto de 30 mg/L e pH inicial 8 (Figura 3) apresentou o melhor coeficiente de correlação dentre os ensaios. O ajuste permite estimar que a partir entre 15 e 20 minutos a concentração residual de fluoretos é inferior a 10mg/L. Apesar da cinética conter poucos pontos os ajustes indicaram boa correlação entre os dados experimentais e os modelos apresentando constantes cinéticas de 0,07335 (primeira ordem) e 0,00476 (segunda ordem) com coeficientes de correlação 0,95 e 0,99, respectivamente.

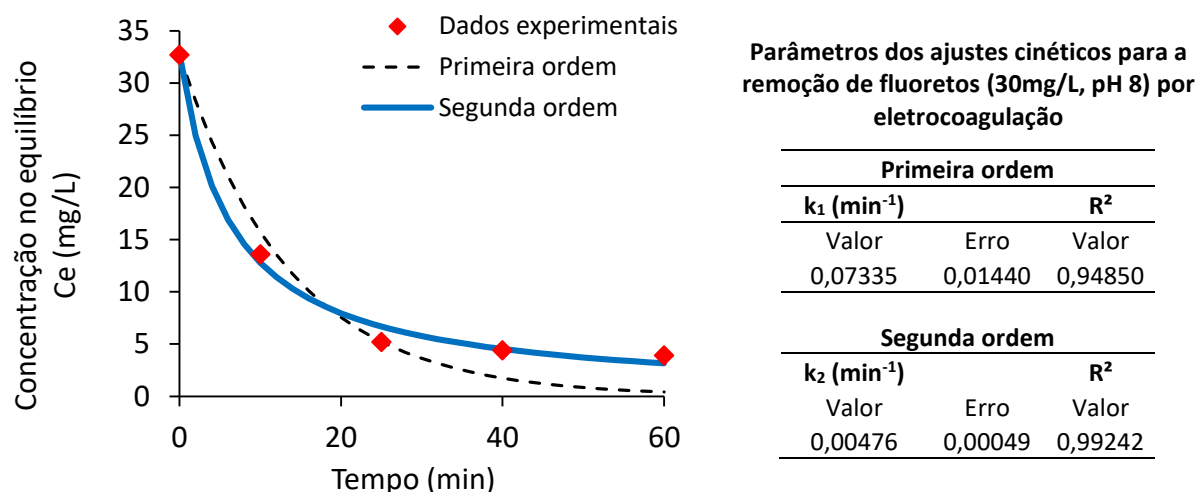


Figura 3. Cinética de remoção de fluoretos e parâmetros dos ajustes de cinética de primeira e segunda ordem para a remoção de fluoretos (30mg/L, pH 8) por eletrocoagulação.

A caracterização dos sólidos formados no ensaio de eletrocoagulação da solução com concentração inicial de 30mg/L e pH 8 indicou a presença de hidróxido de alumínio pouco cristalino evidenciado por domos de amorfização do difratograma de raios-x. Além do hidróxido de alumínio também foi identificado a presença de cloreto de sódio (halita) que pode ser resultado da cristalização do cloreto de sódio contido na fase líquida residual no sólido e que cristalizou durante a secagem.

A análise por infravermelho identificou três números de ondas intensos correspondentes a 470, 1064 e 3297 cm^{-1} . Foram identificados também outros dois menos intensos em 967 e 1638 cm^{-1} . Esses números de onda correspondem às deformações das ligações O-H características de hidróxido de alumínio (470, 967, 1064 e 3297 cm^{-1}) (Camemar et al., 2018; Kloprogge, Ruan e Frost, 2002). O número de onda 1638 cm^{-1} , por sua vez, corresponde a deformação angular de O-H característico da água que pode ter sido incorporada ao sólido (Camemar et al., 2018). Nenhuma fase de fluoreto foi observada,

corroborando com a hipótese de remoção do fluoreto através de adsorção da espécie nos coágulos do processo. Entretanto a formação de fases de alumínio e flúor não pode ser descartada e requer pesquisas adicionais. A partir da caracterização do sólido gerado pela eletrocoagulação, Shen et al. (2002) identificou uma composição majoritária alumínio (25,41%) e em menor quantidade, carbono (5,01%), sódio (2,64%) e cloro (1,42%).

4. CONCLUSÕES

A redução da concentração de fluoreto em soluções sintéticas, contendo até 30mg/L do contaminante, para os limites estabelecidos pela Resolução CONAMA 430/2011 foi obtida em menos de 25 minutos de processo e com um consumo máximo de energia inferior a 2,0Wh/L de solução tratada. Assim, não são necessários longos tempos de residência da solução tratada nesta operação, o que contribui para a redução no consumo de energia. A variação de pH inicial e concentração de fluoreto inicial não mostraram grandes variações nos parâmetros finais de pH, condutividade e consumo de eletrodo. Entretanto, a concentração residual de alumínio e fluoreto variaram de 1 a 3 vezes o obtido para a condição de 10mg/L (F⁻) e pH 6. A eletrocoagulação é portanto, uma técnica com elevado potencial para aplicação de remoção de fluoretos em efluentes industriais, previamente ao seu lançamento de água nos corpos hídricos receptores.

5. AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem à Capes (Programa PNPD) e ao CNPq, pela bolsa de Produtividade, Processo 308044/2018-5.

6. REFERÊNCIAS

- Bazrafshan E, Ownagh K, Mahvi, AH. Application of electrocoagulation process using Iron and Aluminum electrodes for fluoride removal from aqueous environment. *Journal of Chemistry*, 2012, 9(4): 2297-2308.
- Benfield LD, Junking JF, Weand BL. 1982. *Process Chemistry for Water and Wastewater Treatment*. Prentice Hall, UpperSaddle River, NJ, 1982, 405-421.
- Brasil, CONAMA. Resolução nº 430, de 2011. Dispõe sobre as condições e padrões de lançamento de efluentes, complementa e altera a Resolução nº 357, de 17-03-2005, do conselho nacional do meio ambiente – CONAMA. *Diário Oficial*, Brasília, DF, 16/05/2011, p. 89.
- Butler E. Hung YT, YehRYL, Al Ahmad MS. Electrocoagulation in wastewater treatment, *Water*, 2011, 3:495–525.
- Camemar EL, Bach MA, Carvalho Jr RM, Marangoni R, Zatta L. Síntese e caracterização de hidróxidos e óxidos mistos Fe(III):Al com potencial aplicação como pigmentos obtidos a partir da mistura dos géis de goethita e boehmita. *Cerâmica*, 2018; 64; 331-340.
- Canizares P, Jimenez C, Martinez F, Rodrigo MA, Saez C. The pH as a key parameter in the choice between coagulation and electrocoagulation for the treatment of wastewaters. *J. Hazard. Mater*, 2009, 163, 158–164.
- Chang M F, Liu JC. Precipitation Removal of Fluoride from Semiconductor Wastewater. 2007, 133(4): 419-425.
- Colla V, Branca TA, Rosito F, LuccaC, VivasBP, Delmiro VM. Sustainable reverse osmosis application for wastewater treatment in the steel industry. *J. Clean. Prod.*, 2016, 130, 103-115.

Drouiche N, AoudjS, HeciniM, Ghaffour N, Lounici H, Mameri N. Study on the treatment of photovoltaic wastewater using electrocoagulation: fluoride removal with aluminium electrodes--characteristics of products. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 169: 65–69.

EmamjomehMM, Sivakumar M. Review of pollutants removed by electrocoagulation and electrocoagulation/flotation processes. *J. Environ.Manage.*, 2009, 90, 1663–1679.

Ezzeddine A, Bedoui A, Hannachi A, Bensalah N. Removal of fluoride from aluminum fluoride manufacturing wastewater by precipitation and adsorption processes. *Desalination and Water Treatment*, 2014, 54. 1-13.

Garg UK, Sharma C. Electrocoagulation: Promising Technology for Removal of Fluoride from Drinking Water - A Review. *Biological Forum - An International Journal*, 2016, 8(1): 248-254.

Gwala P, AndeyS, Mhaisalkar V, Labhasetwar S, Kshirsagar C. Lab scale study on electrocoagulation defluoridation process optimization along with aluminium leaching in the process and comparison with full-scale plant operation. *Water Sci. Technol.*, 2011, 63, 2788.

Khatibikamal V, TorabianA, Janpoor F, Hoshyaripour G. Fluoride removal from industrial wastewater using electrocoagulation and its adsorption kinetics. *Journal of Hazardous Materials*, 2010, 179.276–280.

Kloprogge JT, Ruan HD, Frost RL. Thermal decomposition of bauxite minerals: infrared emission spectroscopy of gibbsite, boehmite and diaspor. *Journal of Materials Science*, 2002;37(6);1121-1129

Kunin R. *Ion Exchange Resins*. Krieger, R. E. Publishing Co, Florida, 1990, 135-139.

Mondal P, George S. A review on adsorbents used for defluoridation of drinking water, *Review on EnvSciBiotechnol.* 2015, 14:195–210.

Nigri E, BhatnagarA, Rocha S. Thermal regeneration process of bone char used in the fluoride removal from aqueous solution. *Journal of Cleaner Production*, 2016, 142.

Parga JR, Vazquez V, Moreno H. Thermodynamic Studies of the Arsenic Adsorption on Iron Species Generated by Electrocoagulation, *Journal of Metallurgy*, 2009, 1–9.

Picard T, Cathalifaud-Feuillade G, Mazeta M, Vandensteendam C. Cathodic Dissolution in the Electrocoagulation Process using Aluminium Electrodes. *J. Environ.*, 2000, Monit. 2, 77.

Sharma P, Agarwal M, Gupta AB. Polyaluminium chloride – Alternative to alum for defluoridation. *International Journal of Advance Research in Science and Engineering*, 2015.

Shen F, Chen X, Gao P, Chen G. Electrochemical removal of fluoride ions from industrial wastewater. *Chemical Engineering Science*, 2003, v. 58, 987-993.

Shrivastava AK, Sharma M. An innovative technique for removal of fluoride from drinking water *Sci. Revs. Chem. Commun.*, 2012, 2(2), 133-140.

Simons, R. Trace element removal from ash dam waters by nanofiltration and diffusion dialysis. *Desalination* 89, 1993, 325-341.

Sujana MG, Thakur RS, Rao SB. Removal of fluoride from aqueous solution by using alum sludge, *J. Colloid Interface Sci.* 206, 1998, 94–101.

Takdastan A, Tabar SE, Islam A, Bazafkan MH, Naisi AK. The Effect of the Electrode in Fluoride Removal from Drinking Water by Electro Coagulation Process. In: *International Conference on Chemical, Environmental and Biological Sciences*, 2015, Dubai, 39-44.

Toyoda A, TairaT. A new method for treating fluorine wastewater to reduce sludge and running costs, *IEEE Trans. Semiconduct. Manufact.* 13 (3), 2000, 305–309.

Varol E, Akcay S, Ersoy IH, Ozaydin M, Koroglu BK, Varol S. Aortic elasticity is impaired in patients with endemic fluorosis, *Biol. Trace Elem. Res.* 133, 2010, 121–127.

Vasudevan S, LakshmiJ, Sozhan G. Studies on a Mg-Al-Zn Alloy as an Anode for the Removal of Fluoride from Drinking Water in an Electrocoagulation Process. *Clean*, 37 (4–5), 2009, 372 – 378.