

参考文献

Akitt, J. W., Greenwood, N. N., Khandelwal, B. L. and Lester, G. D. (1972). ^{27}Al nuclear magnetic resonance studies of the hydrolysis and polymerization of the hexa-aqua-aluminium (III) cation. *J. Chem. Soc. Dalton Trans.*, pp.604

Akitt, J. W. and Farthing, A. (1978). New ^{27}Al NMR studies of the hydrolysis of the aluminum (III) cation. *J. Magn. Reson.*, Vol.32, pp.345

Akitt, J. W. and Farthing, A. (1981). Aluminium-27 NMR studies of the hydrolysis aluminum (III). V. Slow hydrolysis using aluminum metal. *J. Chem. Soc. Dalton Trans.*, pp.1626

Axelos, M. A. V., Tchoubar, D. and Jullien, R. (1986). X-ray scattering functions of fractal structures: comparison between simulations and experiments. *J. Phys.*, Vol.47, No.10, pp.1843-1847

Akitt, J. W. and Elders, J. M. (1988). Multinuclear magnetic resonance studies of the hydrolysis of aluminum (III). VIII. Base hydrolysis monitored at very high magnetic field. *J. Chem. Soc. Dalton Trans.*, pp.347

Akitt, J. W. (1989). Multinuclear studies of aluminum compounds. *Prog. Nucl. Magn. Reson. Spectrosc.*, Vol.21, pp.1

Black, A. P. (1963). Better coagulation process for better waters. *Wat. Works Eng.*, Vol.116, pp.375.

Baes C. F. and Meamer, R. E. (1971). Acidity measurements at elevated temperature 1. Aluminium ion hydrolysis. *Inorg. Chem.*, No.10, pp.2290

Baes, C. F. and Mesmer, R. E. (1976). *The Hydrolysis of Cations*. John Wiley & Sons, New York.

Bersillon, J. L., Brown, D. W., Fiessinger, F. and Hem, J. D. (1978). Studies of hydroxyaluminium complexes in aqueous solution. *J. research U.S. Geol. Survey*, Vol.6, No.3, pp.325-337

Bottero, J. Y., Cases, J. M., Fiessinger, F. and Poirier, J. E. (1980). Studies of hydrolyzed aluminium chloride solutions. I. Nature of aluminum species and composition of aqueous solutions. *J. Phys. Chem.*, Vol.84, pp.2933

Benfield, L. D., Joseph, J. F. and Weand, B. L. (1982). *Process Chemistry for Water and Wastewater Treatment*. Prentice-Hall Inc., N. J.

- Bertsch, P. M., Thomas, G. W., and Barnhisel, R. I. (1986a). Characterization of hydroxy-aluminum solutions by aluminum-27 nuclear magnetic resonance spectroscopy. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, Vol.50, No.3 pp.825-830
- Bertsch, P. M., Layton, W. J., and Barnhisel, R. I. (1986b). Speciation of hydroxyl-aluminum solutions by wet chemical and aluminum-27 NMR methods. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, Vol.50, No.6, pp.1449-1454
- Bottero, J. Y., Axelos, M., Tchoubar, D., Cases, J. M., Fripiat, J. J. and Fiessinger, F. (1987). Mechanism of formation of aluminum trihydroxide from Keggin Al₁₃ polymers. *J. Colloid Interface Sci.*, Vol.117, No.1, pp.47-57
- Bertsch, P. M. (1987). Conditions for Al₁₃ polymer formation in partially neutralized aluminum solutions. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, Vol.51, No.3, pp.825-828
- Bergna, H. E. (1994). *The Colloid Chemistry of Silica*, ACS, Washton D. C.
- Derjaguin, B. V. and Landau, L. D. (1941). Theory of stability of strong charge lyophobic sols and of the adhesion of strong charged particles in solutions of electrolytes. *Acta Physicochimica URSS*, Vol.14, pp.633-662
- Duan, J. and Gregory, J. (2003). Coagulation by hydrolyzing metal salts. *Adv. Colloid Interface Sci.*, Vol.100-102, pp.475-502
- Fitzgerald, J. J., Johnson, L. E. and Frye, J. S. (1989). Temperature effects on the ²⁷Al NMR spectra of polymeric aluminum hydrolysis species. *J. Magn. Reson.*, Vol.84, pp.121
- Faust, S. D. and Aly, O. M. (1999). *Chemistry of Water Treatment 2nd Edition*.
- Gao, B. Y., Yue, Q. Y. and Wang, B. J. (2002). The chemical species distribution and transformation of polyaluminum silicate chloride coagulant. *Chemosphere*, Vol.46, No.6, pp.809-813
- Gao, B. Y., Chu, Y. B., Yue, Q. Y., Wang, B. J. and Wang, S. G. (2005). Characterization and coagulation of a polyaluminum chloride (PAC) coagulant with high Al₁₃ content. *J. Environ. Manage.*, Vol.76, pp.143-147
- Gray, S. R. and Ritchie, C. B. (2006). Effect of organic polyelectrolyte characteristics on floc strength. *Colloids Surf. A- Physicochem. Eng. Asp.*, Vol.273, pp.184-188
- Hahn, H. H. and Stumm, W. (1968). Kinetics of coagulation with hydrolyzed aluminum. *J. Colloid Interface Sci.*, Vol.28, pp.133

Hayden, P. L. and Rubin, A. J. (1976). Systematic investigation of the hydrolysis and precipitation of aluminum (III). In *Aqueous Environmental Chemistry of Metals*. Rubin, A. J., Eds., Ann Arbor Science, Ann Arbor, MI.

Hem, J. D. and Roberson, C. E. (1990). Aluminium hydrolysis reactions and products in mildly acidic aqueous systems. In *Chemical Modeling of Aqueous Systems*. Vol.2, Melchior, D. C. and Bassett, R. L., Eds., ACS Symp. Ser. American Chemical Society, Washton, D. C., Chap. 3.

Hiradate, S. and Yamaguchi, N. U. (2003). Chemical species of Al reacting with soil humic acids. *J. Inorg. Biochem.*, Vol.97, pp.26-31

Hu, C. Z., Liu, H. J. and Qua, J. H. (2005). Preparation and characterization of polyaluminum chloride containing high content of Al₁₃ and active chlorine. *Colloids Surf. A- Physicochem. Eng. Asp.*, Vol.260, pp.109-117

He, F., Jia, Z. Q., Wang, P. J. and Liu, Z. Z. (2005). Synthesis of polyaluminum chloride with a membrane reactor : parameters optimization for the in situ synthesis. *J. Membr. Sci.*, Vol.247, pp.221-226

Huang, L., Wang, D. S., Tang, H. X. and Wang, S. F. (2006). Separation and purification of nano-Al₁₃ by UF method. *Colloids Surf. A- Physicochem. Eng. Asp.*, Vol.275, pp.200-208

Hu, C. Z., Liu, H. J., Qu, J. H., Wang, D. S. and Ru, J. (2006). Coagulation behavior of aluminum salts in eutrophic water : significance of Al₁₃ species and pH control. *Environ. Sci. Technol.* Vol.40, pp.325-331

Iler, R. K. (1979). *The Chemistry of Silica – Solubility, Polymerization, Colloid and Surface Properties, and Biochemistry*. John Wiley & Sons.

Johansson, G. (1960). On the crystal structures of some basic aluminum salts. *Acta Chem. Scand.* Vol.14, pp.771

Johansson, G. (1962). The crystal structure of [Al₂(OH)₂(H₂O)₈](SO₄)₂ • 2H₂O and [Al₂(OH)₂(H₂O)₈](SeO₄)₂ • 2H₂O. *Acta Chem. Scand.* Vol.16, pp.403

Kirkpatrick, R. J., Smith, K. A., Schramm, S., Turner, G. and Yang, W. H. (1985). *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.*, Vol.13

Kloprogge, J. T., Seykens, D., Jansen, J. B. H. and Geus, J. W. (1992a). A ²⁷Al nuclear magnetic resonance study on the optimization of the development of the Al₁₃ polymer. *J. Non-Cryst. Solids*, Vol.142, pp.94-102

Kloprogge, J. T., Seykens, D., Geus, J. W. and Jansen, J. B. H. (1992b). Temperature influence on the Al_{13} complex in partially neutralized aluminum solutions: A ^{27}Al nuclear magnetic resonance study. *J. Non-Cryst. Solids*, Vol.142, pp.87-93

Kerven, G. L., Larsen, P. L. and Blamey, F. P. C. (1995). Detrimental effects of sulfate on the formation of the Al_{13} tridecameric polycation in synthetic soil solutions. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, Vol.59, No.3, pp.765

Kim, S. H., Moon, B. H. and Lee, H. I. (2001). Effects of pH and dosage on pollutant removal and floc structure during coagulation. *Microchem. J.*, Vol.68, pp.197-203

Lamer, V. K. and Healy, T. W. (1963). Adsorption-flocculation reactions of macro-molecules at the solid-liquid interface. *Pure Appl. Chem.*, Vol.13, pp.112

Lamer, V. K. (1964). Coagulation symposium introduction. *J. Colloid Interface Sci.*, Vol.19, pp.291

Letterman, R. D. (1999). *Water Quality and Treatment 5th Edition*. American Water Works Association.

Lu, G. G., Qu, J. H. and Tang, H. X. (1999). The electrochemical production of highly effective polyaluminum chloride. *Water Res.*, Vol.33, pp.807-813

Liu, H. J., Qu, J. H., Hu, C. Z. and Zhang, S. J. (2003). Characteristics of nanosized polyaluminum chloride coagulant prepared by electrolysis process. *Colloids Surf. A- Physicochem. Eng. Asp.*, Vol.216, pp.139-147

Matijevic, E. and Tezak, B. (1953). Detection of polynuclear complex aluminium ions by means of coagulation measurements. *J. Phys. Chem.*, Vol.57, pp.951

Masion, A., Thomas, F., Bottero, J. Y., Tchoubar, D. and Tekely, P. (1994a). Formation of amorphous precipitates from aluminum-organic ligands solutions: macroscopic and molecular study. *J. Non-Cryst. Solids*, Vol.171, pp.191-200

Masion, A., Thomas, F., Tchoubar, D., Bottero, J. Y. and Tekely, P. (1994b). Chemistry and structure of $Al(OH)$ /organic precipitates. A small-angle x-ray scattering study. III. Depolymerization of the Al_{13} polycation by organic ligands. *Langmuir*, Vol.10, pp.4353-4356

Masion, A., Vilg -Ritter, A., Rose, J., Stone, W. E. E., Teppen, B., Rybacki, D., and Bottero, J. Y. (2000). Coagulation-flocculation of natural organic matter with Al salts: speciation and structure of the aggregates. *Environ. Sci. Technol.*, Vol.34, pp.3242-3246

O'Melia, C. R. (1978). *Coagulation in wastewater treatment*, In The Scientific Basis of Flocculation. NATO ASI Series, Ives, K. J., Eds., Sijthoff and Noordhoff, Aalphen aan den Rijn, Netherlands.

Packham, R. F. (1965). Some studies of the coagulation of dispersed clays with hydrolyzed salts. *J. Colloid Interface Sci.*, Vol.20, pp.81

Patterson, J. H. and Tyree, S. Y. (1973). A light scattering study of the hydrolytic polymerization of aluminum. *J. Colloid Interface Sci.*, Vol.43, pp.384

Parker, D. R. and Bertch, P. M. (1992a). Identification and quantification of the Al₁₃ tridecameric polycation using ferron. *Environ. Sci. Technol.*, Vol.26, No.5, pp.908-913

Parker, D. R. and Bertsch, P. M. (1992b). Formation of the Al₁₃ tridecameric polycation under diverse synthesis conditions. *Environ. Sci. Technol.*, Vol.26, No.5, pp.914-921

Pernitsky, D. J. and Edzwald, J. K. (2003). Solubility of polyaluminum coagulants. *J. Water Supply Res. Technol. - Aqua*, Vol.52, No.6, pp.395-405

Qu, J. H. and Liu, H. J. (2004). Optimum conditions for Al₁₃ polymer formation in PACl preparation by electrolysis process. *Chemosphere*, Vol.55, pp.51-56

Rausch, M. V. and Bale, H. D. (1964). Small-angle x-ray scattering from hydrolyzed Al nitrate solutions. *J. Chem. Phys.*, Vol.40, pp.3391

Sillen, L. G. (1952). On the reaction of the aluminium ion with water. *Acta. Chem. Scand.*, Vol.6, pp.910

Singh, S. S. (1969). Basic aluminum sulfate formed as a metastable phase and its transformation to gibbsite. *Can. J. Soil Sci.*, Vol.49, pp.383-388

Smith, R. W. (1971). Relations among equilibrium and nonequilibrium aqueous species of aluminum hydroxyl complexes. *Adv. Chem. Ser.*, Vol.106, pp.250-279

Stumm, W. and Morgan, J. J. (1981). *Aquatic Chemistry*. Wiley-Interscience., New York.

Sposito, G. Eds. (1996). *The Environmental Chemistry of Aluminium 2nd Edition*. CRC press, Inc.

Shen, Y. H. and Brian, A. D. (1998). Synthesis and speciation of polyaluminium chloride for water treatment. *Environ.l Int.*, Vol.24, pp.899-910

Shafran, K. L., Deschaume, O. and Perry, C. C. (2005). The static anion exchange method for generation of high purity aluminium polyoxocations and monodisperse aluminium hydroxide nanoparticles. *J. Mater. Chem.*, Vol.15, pp.3415-3423

Turner, R. C. (1969). Three forms of aluminum in aqueous system determined by 8-quinolinolate extraction method. *Anal. Chem.*, Vol.34, pp.581

Thompson, A. R., Kunwar, A. C., Gutowsky, H. S. and Oldfield, E. (1987). Oxygen-17 and aluminum-27 nuclear magnetic resonance spectroscopic investigations of aluminum (III) hydrolysis products. *J. Chem. Soc. Dalton Trans.*, pp.2317

Thomas, F., Masion, A., Bottero, J. Y., Rouiller, J., Montigny, F. and Génévrier, F. (1993). Aluminum (III) speciation with hydroxy carboxylic acids ²⁷Al NMR study. *Environ. Sci. Technol.*, Vol.27, No.12, pp.2511-2516

Verwey, E. J. and Overbeek, G. Th. J. (1948). Theory of the stability of lyophobic colloid. Elsevier, Amsterdam.

Vermeulen, A. C., Geus, J. W., Stol, R. J. and DeBruyn, P. L. (1975). Hydrolysis-precipitation studies of aluminium (III) solution. I. Titration of acidified aluminium nitrate solutions. *J. Colloid Interface Sci.*, Vol.51, pp.449

Van Benschoten, J. E. and Edzwald, J. K. (1990). Chemical aspects of coagulation using aluminum salts- I. Hydrolytic reactions of alum and polyaluminum chloride. *Water Res.*, Vol.24, No.12, pp.1519-1526

Van Benschoten, J. E. (1992). Effects of temperature and pH on residual aluminum for alum and polyaluminum coagulants. *Water Supply*, Vol.10, No.4, pp.49-54

Water, D. N. and Heely, M. S. (1977). Ramn spectraorauous of hydrolysed aluminum (III) salts. *J. Chem. Soc. Dalton Trans.*, Vol.3, pp.243

Wang, H. Z., Gao, L., Gui, L. H. and Guo, J. K. (1998). Preparation and properties of intragranular Al₂O₃-SiC nanocomposites. *Nanostructured Materials*, Vol.10, No.6, pp.947-953

Wang, M. and Muhammed, M. (1999). Novel synthesis of Al₁₃-cluster based alumina materials. *Nanostructured Materials*, Vol.11, No.8, pp.1219-1229

Wang, D. S., Tang, H. X. and Cao, F. (2000). Particle speciation analysis of inorganic polymer flocculants: An examination by photon correlation spectroscopy. *Colloids Surf. A- Physicochem. Eng. Asp.*, Vol.166, pp.27-32

Wang, D. S., Tang, H. X. and Gregory, J. (2002). Relative importance of charge neutralization and precipitation on coagulation of kaolin with PACl: effect of sulfate ion. *Environ. Sci. Technol.* Vol.36, pp.1815-1820

Wang, D. S., Luan, Z. K. and Tang, H. X. (2003). Differences in coagulation efficiencies between PACl and PCl₃. *J. Am. Water Works Assoc.* Vol.95, No.1, pp.79-86

Wang, D. S., Suna, W., Xua, Y., Tang, H. X. and Gregory, J. (2004). Speciation stability of inorganic polymer flocculant-PACl. *Colloids Surf. A- Physicochem. Eng. Asp.*, Vol.243, pp.1-10

Wang, D. S. and Tang, H. X. (2006a). Quantitative model of coagulation with inorganic polymer flocculant PACl: application of the PCNM. *J. Environ. Eng. - ASCE.*, Vol.132, No.5, pp.434-441

Wang, D. S., Li, H., Li, C. H. and Tang, H. X. (2006b). Removal of humic acid by coagulation with nano-Al₁₃. *Water Sci. and Technol. : Water Supply*, Vol.6, No.1, pp.59-67

Xu, Y., Wang, D. S., Liu, H. L. and Tang, H. X. (2003). Optimization of the separation and purification of Al₁₃. *Colloids Surf. A- Physicochem. Eng. Asp.*, Vol.231, pp.1-9

Yao, C. H. (1987). The preparation of polymeric aluminum chloride (PACl) and its application in water treatment. *Doctoral Dissertation*, The Johns Hopkins University, Baltimore, MD.

王東升、湯鴻霄、John Gregory，IPF-PACl 混凝動力學研究：型態組成的重要性，環境科學學報，增 pp.17-22，2001 年。

吳宏基，以超過濾薄膜結合混凝前處理回收半導體工業研磨廢水之評估，國立交通大學環境工程研究所碩士論文，民國 90 年。

邱顯盛，以電化學法處理化學機械研磨廢水，國立交通大學環境工程研究所碩士論文，民國 91 年。

李國紅，Al₁₃ 分離純化工藝研究及其凝聚絮凝特性初探，中國地質大學碩士論文，2006 年。

周澤川，應用電子轉移技術開發特用化學品-子計畫一：應用電子轉移技術合成高純度聚氯化鋁 (1/3)，行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告，民國 86 年。

杭子樵，聚氯化鋁之生產、品質控制與應用，台灣省自來水公司技術報告，民國 91 年。

林欣慧，利用 UF 配合鎂鹽前處理移除 CMP 廢水中矽酸之研究，國立交通大學環境工程研究所碩士論文，民國 94 年。

柯宏杰，以電解混凝法處理化學機械研磨廢水：影響因子及反應機制，國立交通大學環境工程研究所碩士論文，民國 94 年。

涂佳薇，半導體化學機械研磨 (CMP) 廢液之資源化處理研究，國立成功大學資源工程研究所碩士論文，民國 90 年。

翁韻雅，以高分子凝集劑處理高濁度原水之研究，國立成功大學環境工程研究所碩士論文，民國 92 年。

徐毅， Al_{13} 型態的分離提純及其穩定性和凝聚絮凝作用機理，中國科學院生態環境研究中心博士論文，2003 年。

陳佳欣，Dead-end 式薄膜微過濾處理氧化層化學機械研磨廢水 - 前處理方式之評估及其影響，國立交通大學環境工程研究所碩士論文，民國 93 年。

陳韋弘，凝集劑 Al 型態對高濁水凝集行為之影響，國立交通大學環境工程研究所碩士論文，民國 94 年。

湯鴻霄、樂兆坤，聚合氯化鋁與傳統凝集劑的凝集-絮凝行為差異，環境化學，第 16 卷第 6 期，pp.497-504，1997 年。

湯鴻霄，羥基聚合氯化鋁的絮凝型態學，環境科學學報，第 18 卷第 1 期，pp.1-10，1998 年。

黃俊欽，陰離子與溶劑影響電解合成聚合鋁之研究，國立成功大學化學工程研究所碩士論文，民國 88 年。

劉會娟，高 Al_{13} 含量聚合氯化鋁的電化學製備及其絮凝特性研究，中國科學院生態環境研究中心博士論文，2003 年。

劉訓瑜，化學機械研磨廢水凝沉效能之評估，國立交通大學環境工程研究所碩士論文，民國 89 年。

趙華章，高純聚合氯化鋁的研製與表徵，中國科學院生態環境研究中心博士論文，2003 年。

羅金生，半導體廠化學機械研磨 (CMP)廢水回收再利用可行性評估，國立台灣大學環境工程研究所碩士論文，民國 90 年。





附錄 A

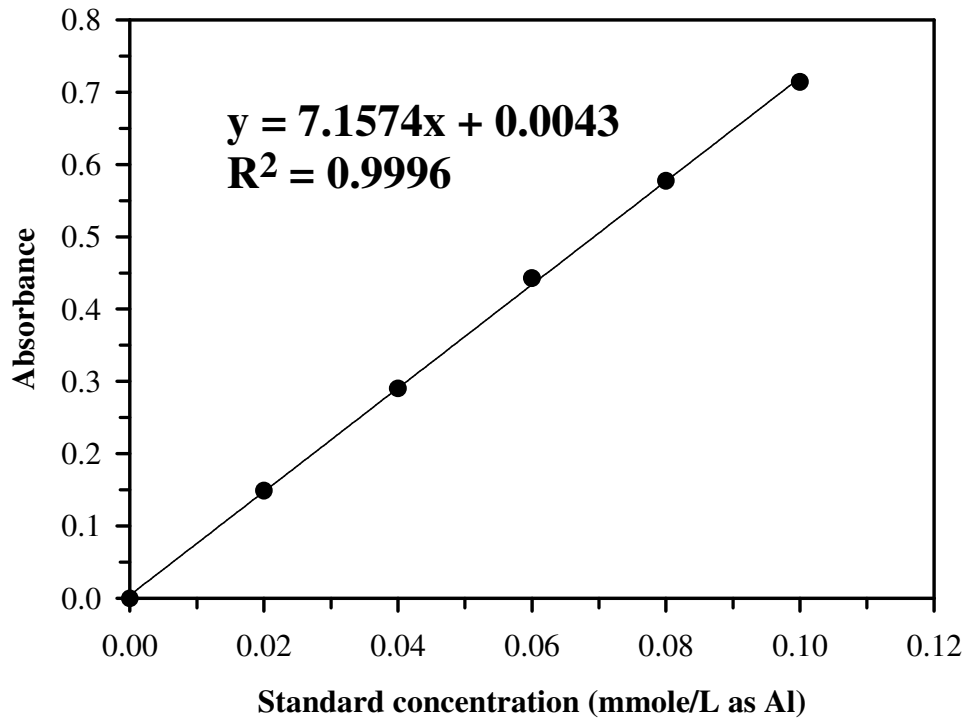


圖 A-1 Al-Ferron assay 的檢量線 (為各個標準品於 1 分鐘時的吸光值)

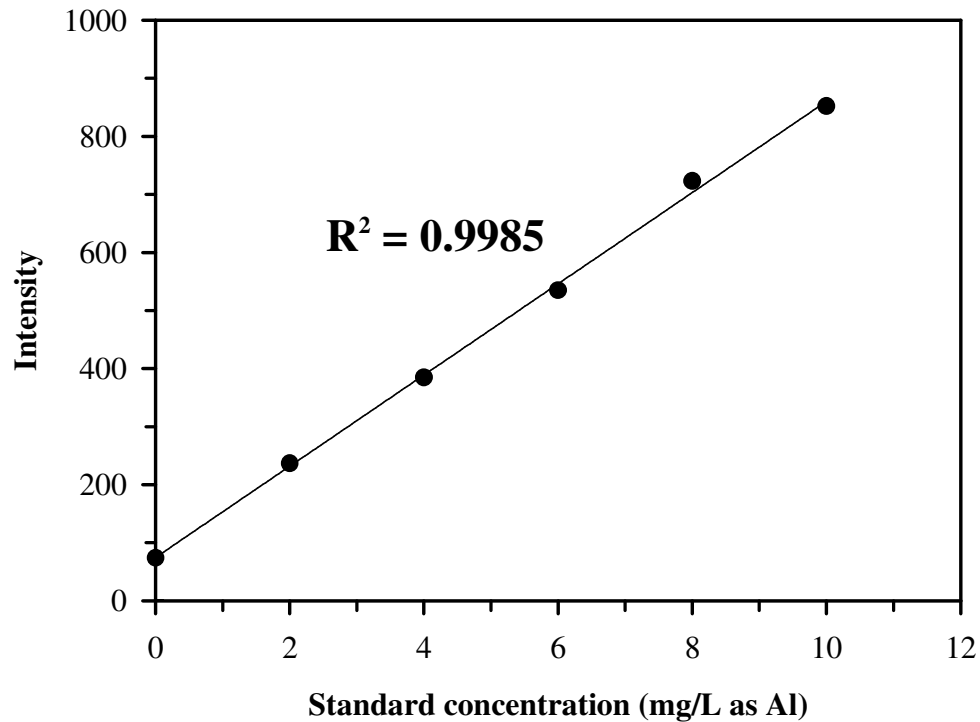


圖 A-2 ICP-OES 偵測上限為 10 mg/L as Al 的總鋁濃度檢量線

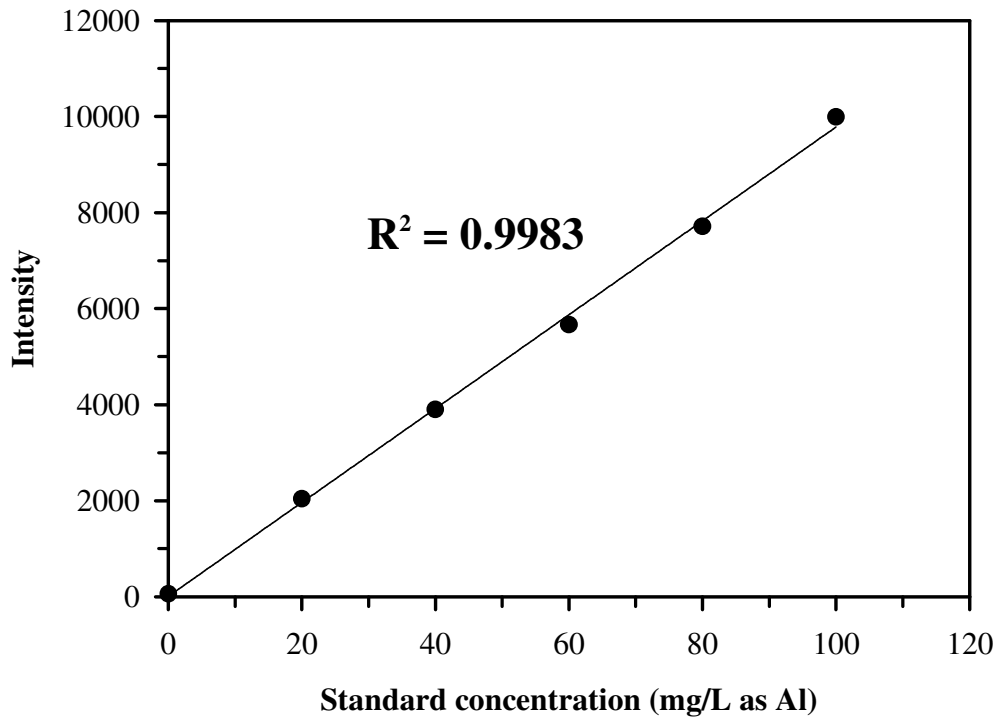


圖 A-3 ICP-OES 偵測上限為 100 mg/L as Al 的總鋁濃度檢量線

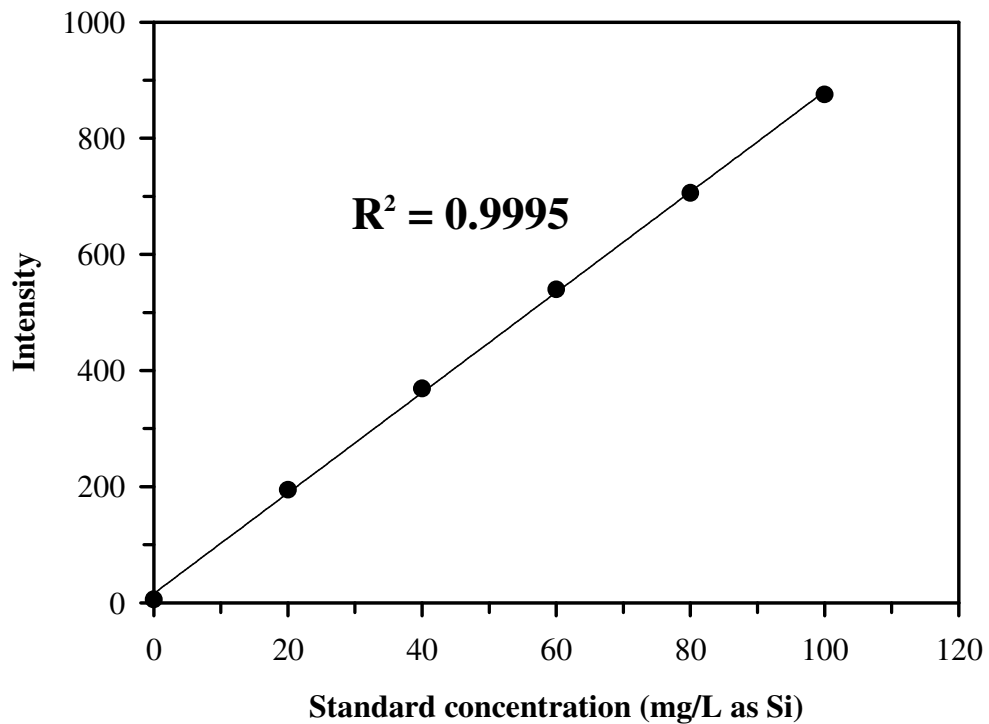


圖 A-4 ICP-OES 偵測上限為 100 mg/L as Si 的總矽濃度檢量線

附錄 B

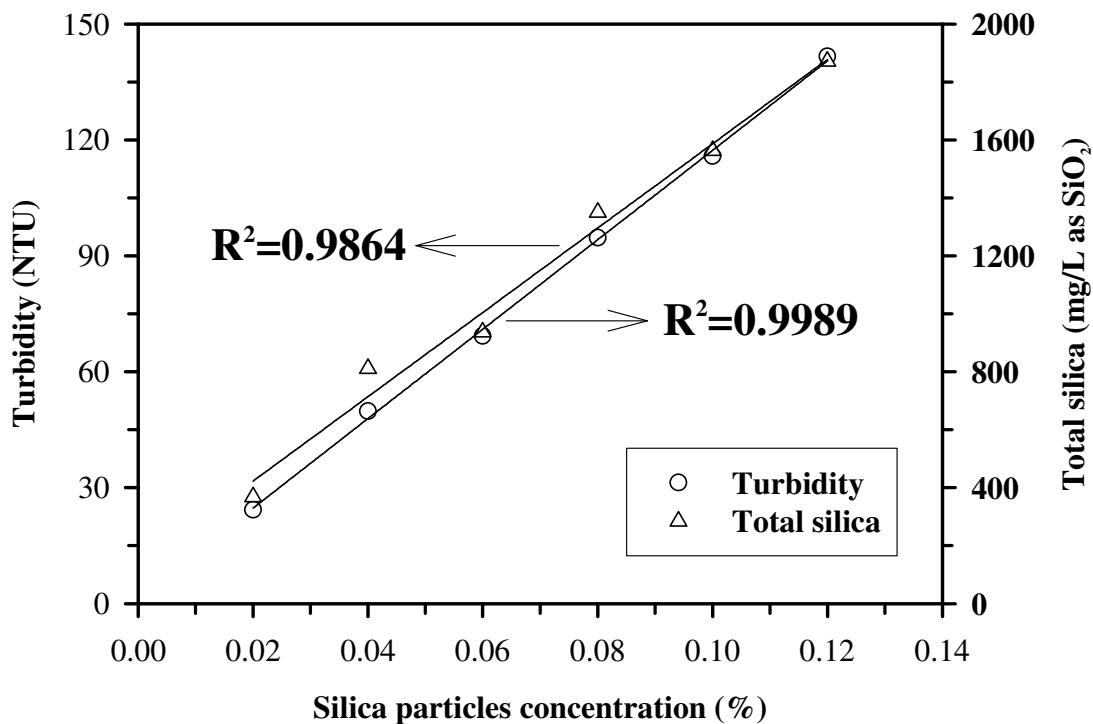


圖 B-1 人工廢水中濁度及總矽濃度隨二氧化矽顆粒濃度增加的變化情形

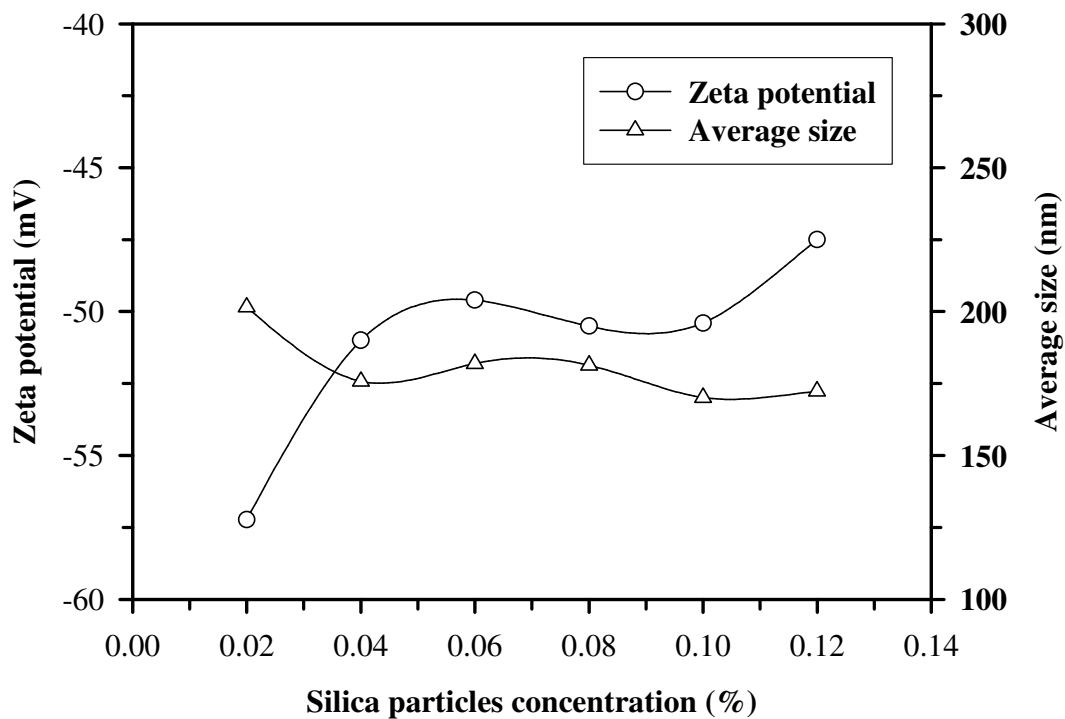


圖 B-2 人工廢水中界達電位及平均粒徑隨二氧化矽顆粒濃度增加的變化情形

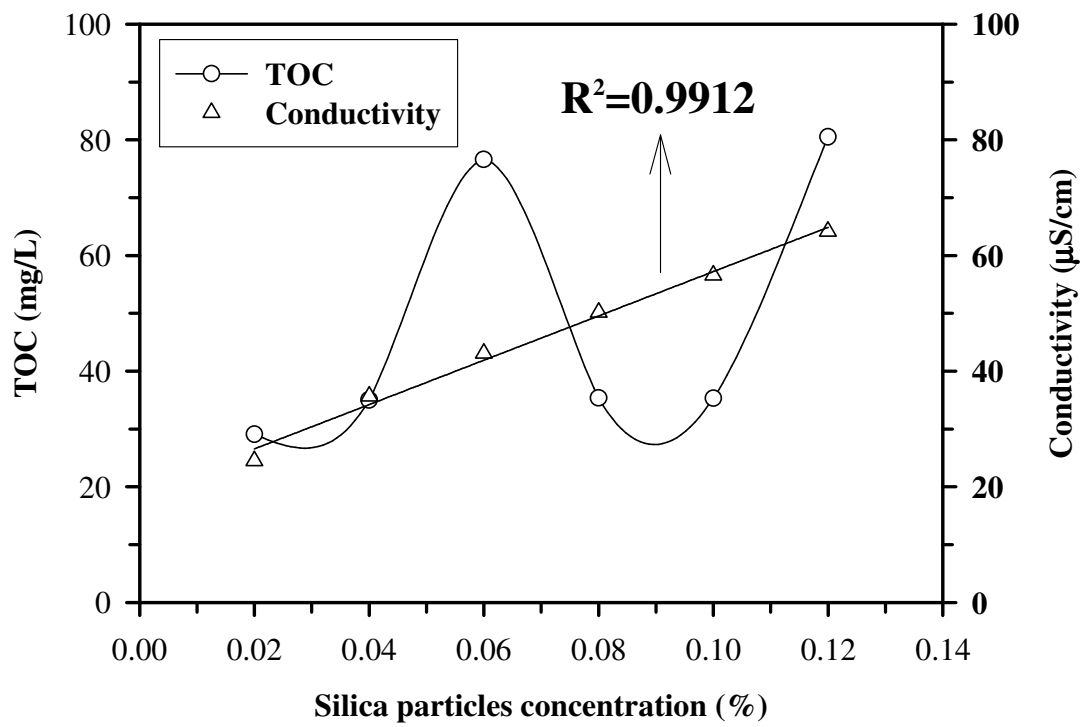


圖 B-3 人工廢水中總有機碳濃度及導電度隨二氧化矽顆粒濃度增加的變化情形



附錄 C

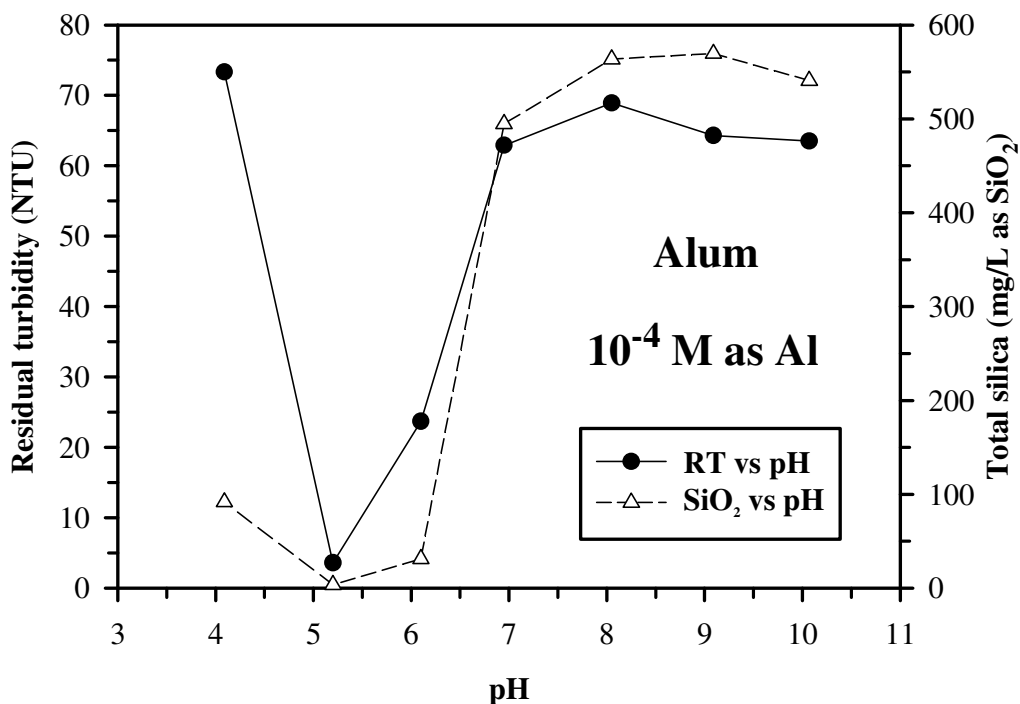


圖 C-1 不同 pH 值下 Alum 加藥量為 10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總矽濃度的變化情形

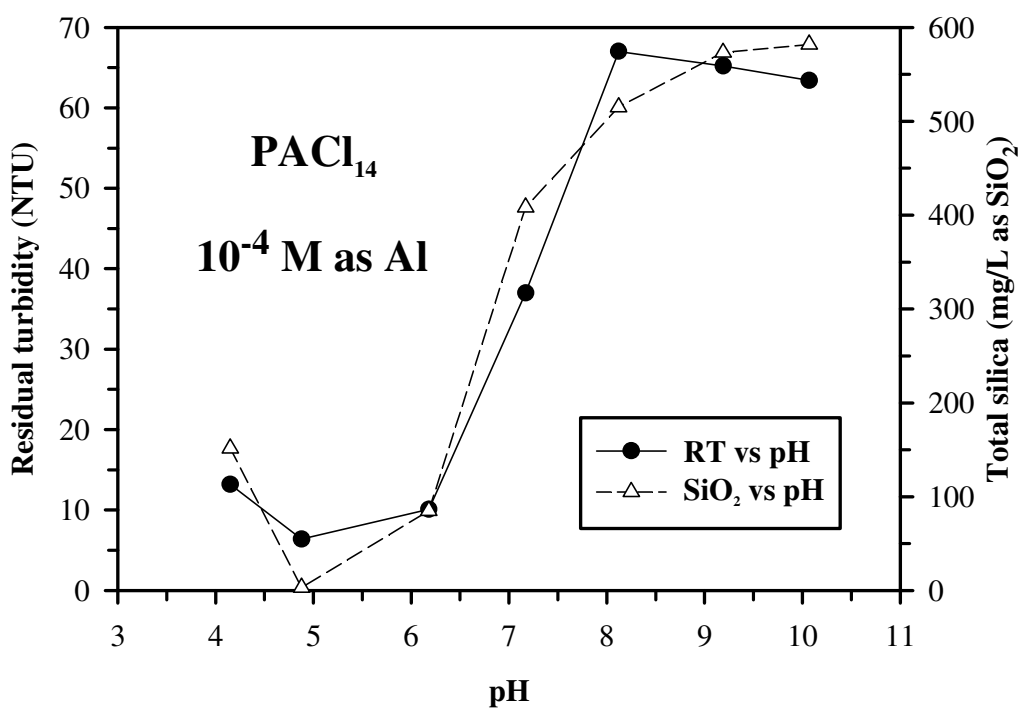


圖 C-2 不同 pH 值下 PACl₁₄ 加藥量為 10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總矽濃度的變化情形

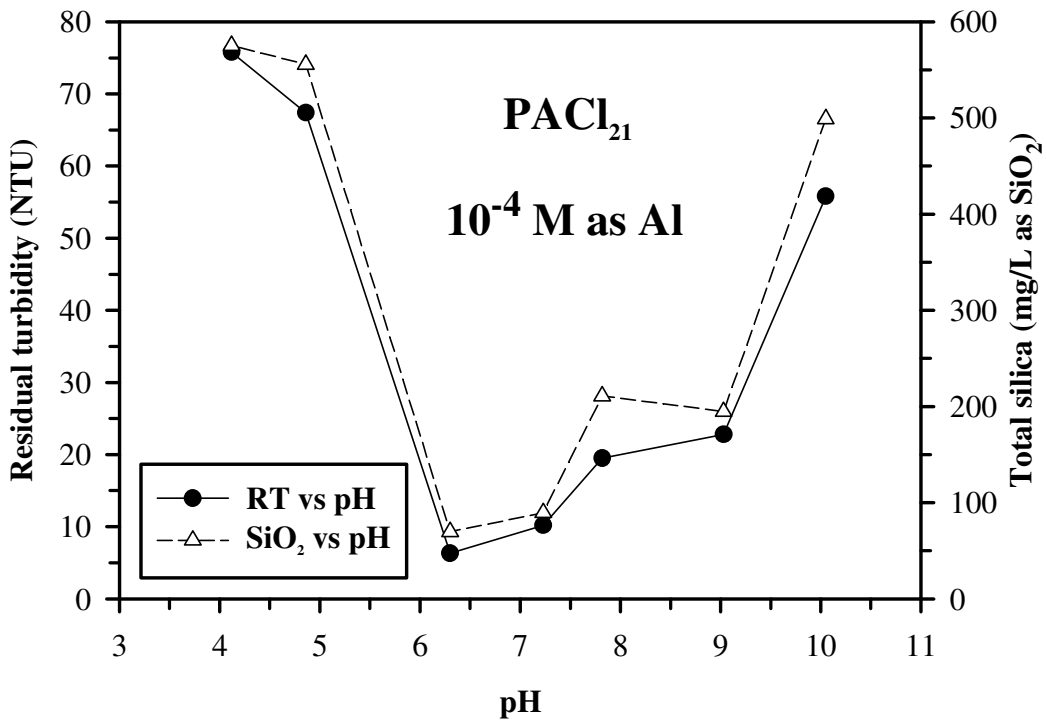


圖 C-3 不同 pH 值下 PACl₂₁ 加藥量為 10⁻⁴ M as Al 時上澄液殘餘濁度與總矽濃度的變化情形

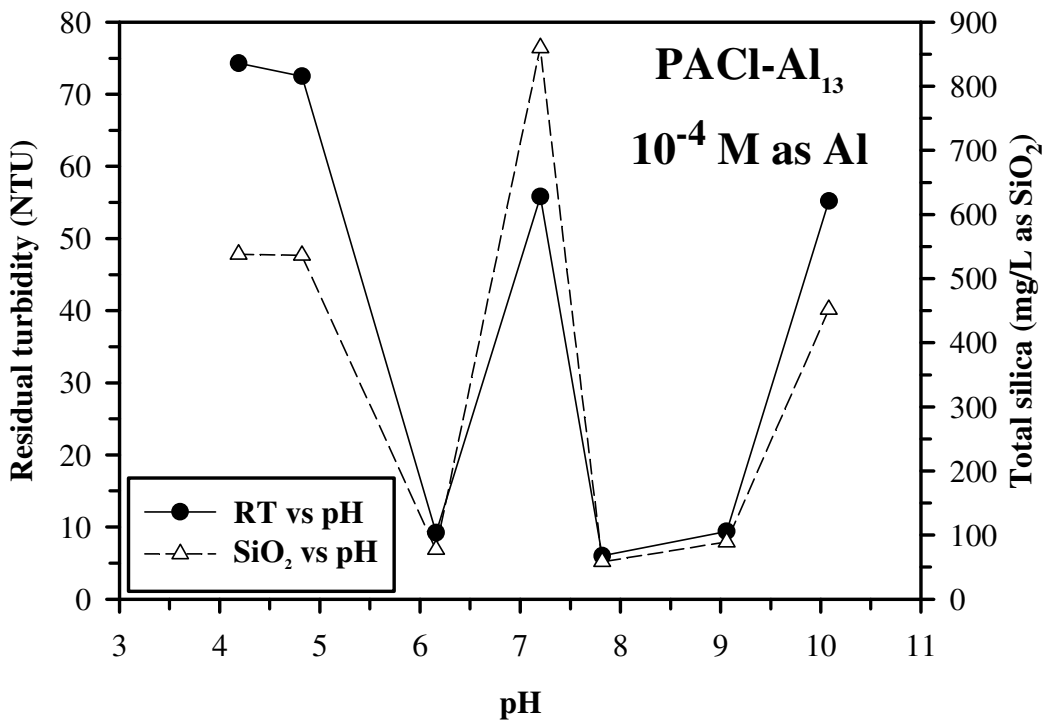


圖 C-4 不同 pH 值下 PACl-Al₁₃ 加藥量為 10⁻⁴ M as Al 時上澄液殘餘濁度與總矽濃度的變化情形

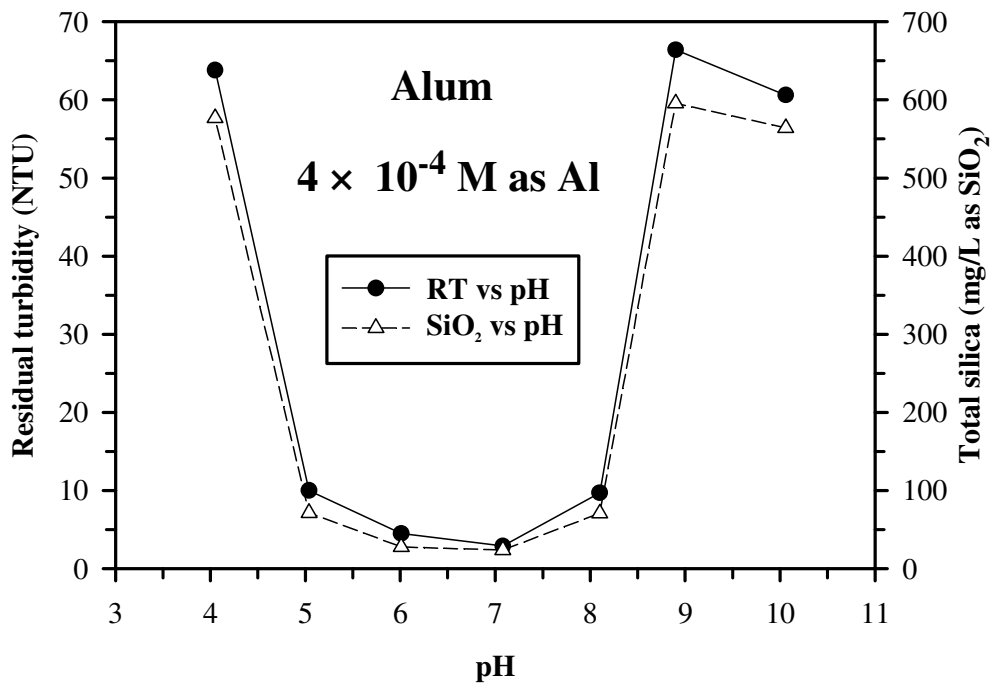


圖 C-5 不同 pH 值下 Alum 加藥量為 4×10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總矽濃度的變化情形

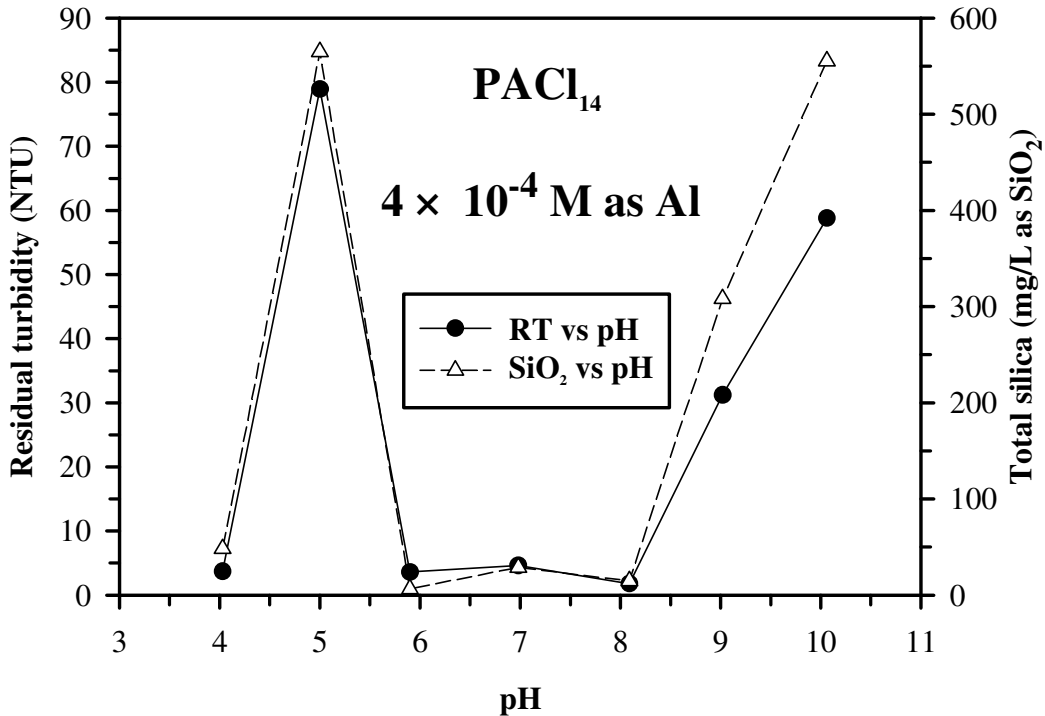


圖 C-6 不同 pH 值下 PACl₁₄ 加藥量為 4×10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總矽濃度的變化情形

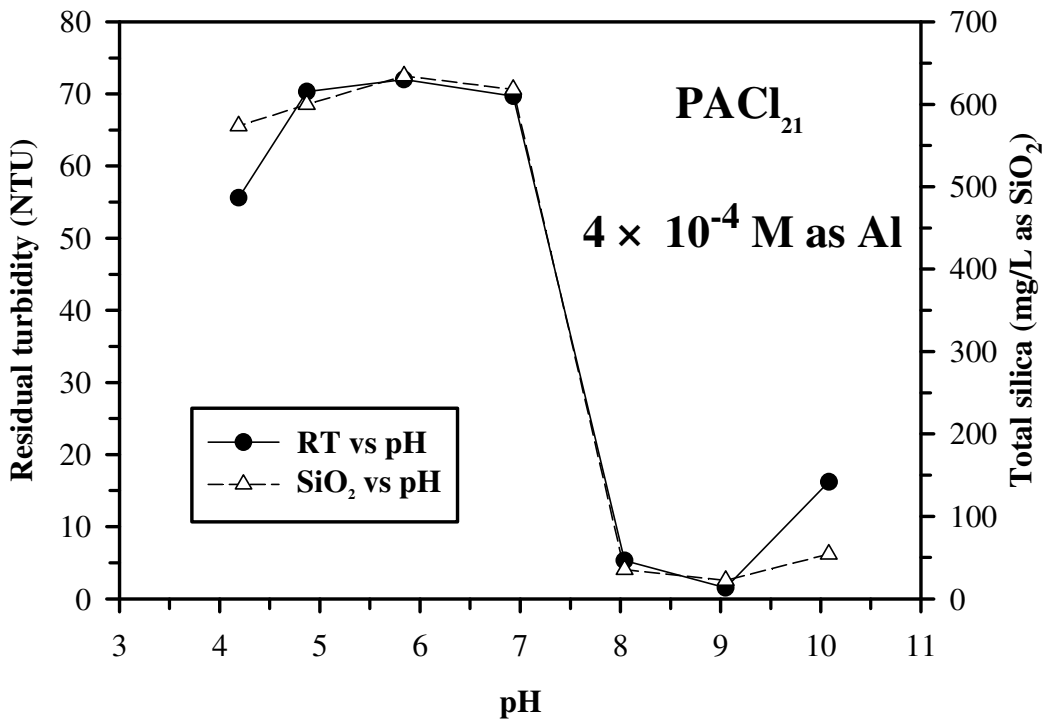


圖 C-7 不同 pH 值下 PACl₂₁ 加藥量為 4×10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總矽濃度的變化情形

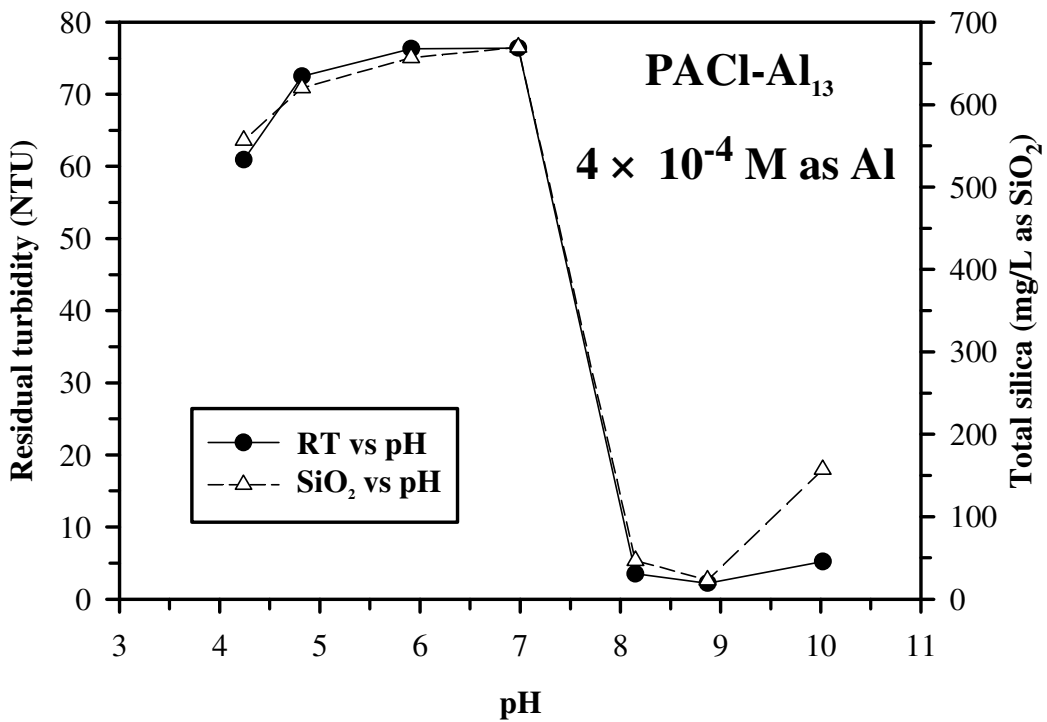


圖 C-8 不同 pH 值下 PACl-Al₁₃ 加藥量為 4×10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總矽濃度的變化情形

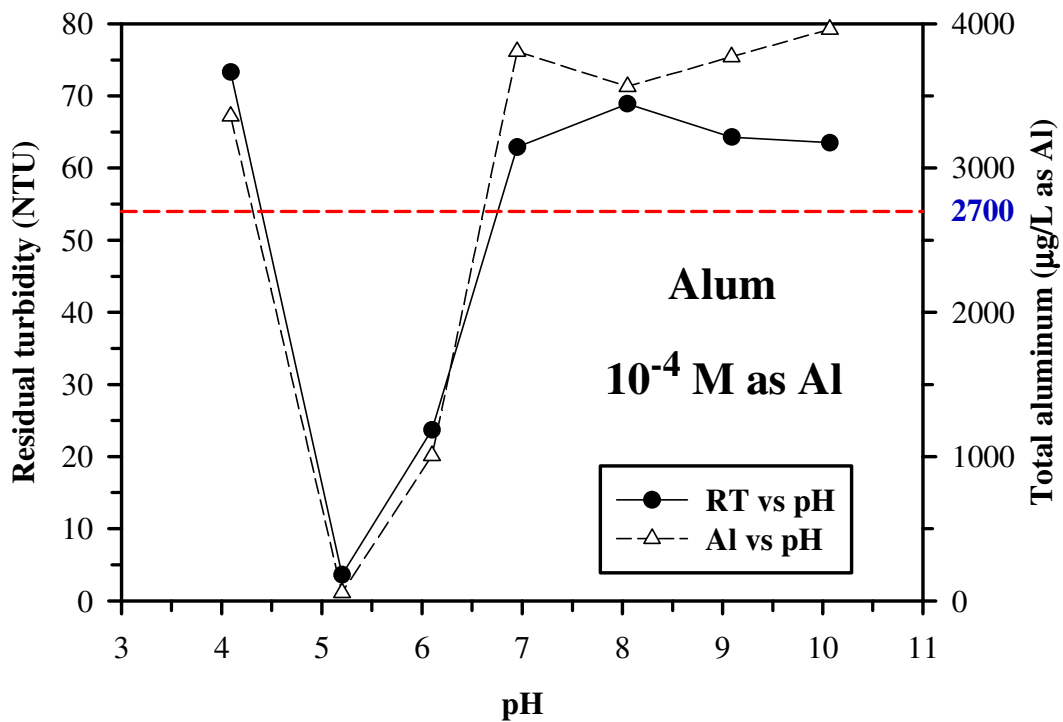


圖 C-9 不同 pH 值下 Alum 加藥量為 10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總鋁濃度的變化情形

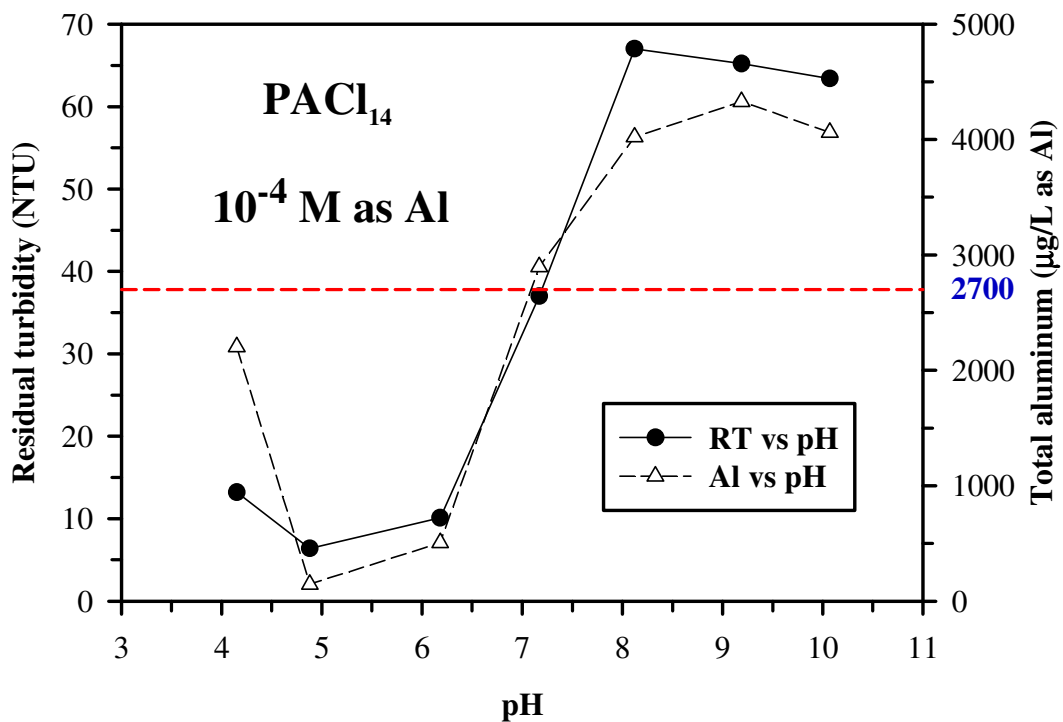


圖 C-10 不同 pH 值下 PACl₁₄ 加藥量為 10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總鋁濃度的變化情形

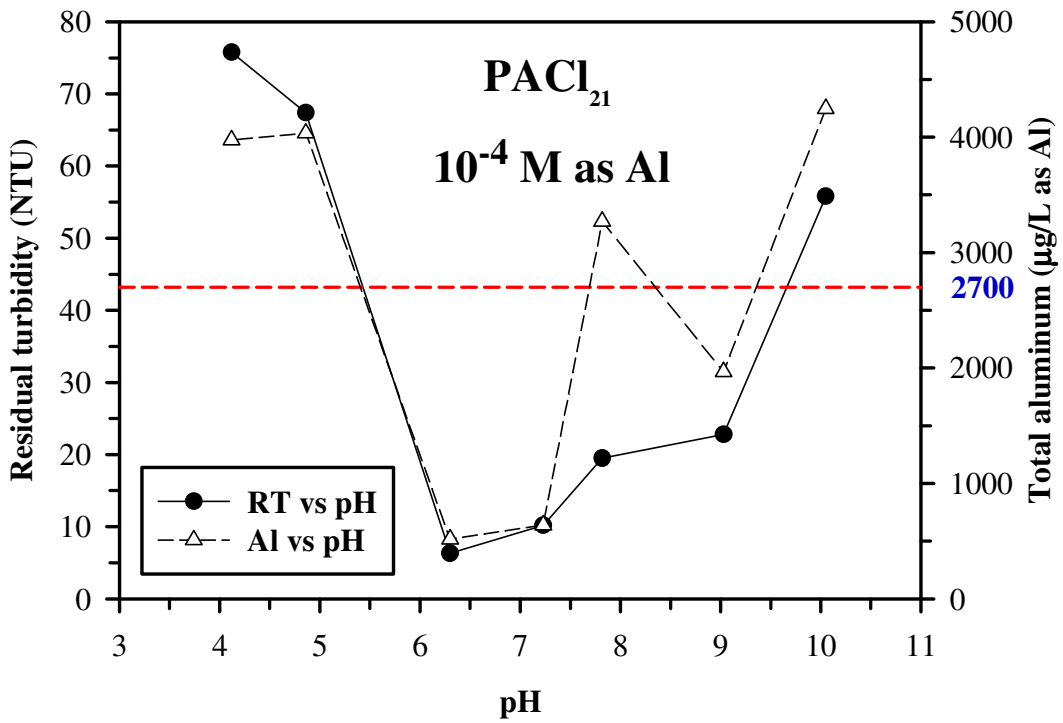


圖 C-11 不同 pH 值下 PACl₂₁ 加藥量為 10⁻⁴ M as Al 時上澄液殘餘濁度與總鋁濃度的變化情形

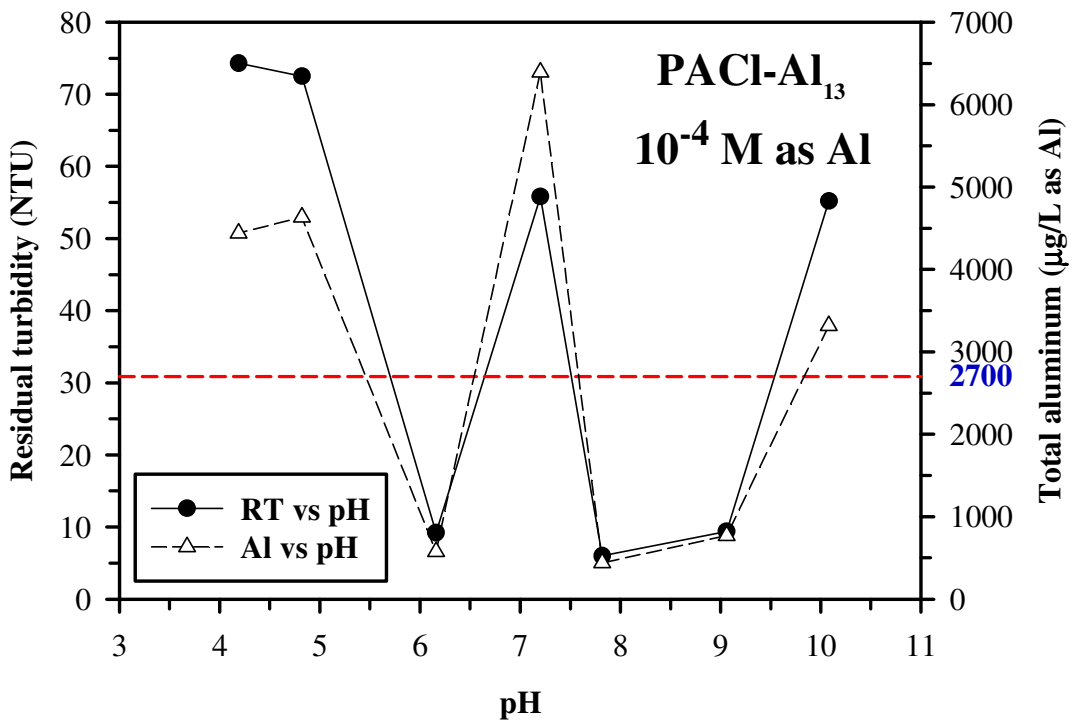


圖 C-12 不同 pH 值下 PACl-Al₁₃ 加藥量為 10⁻⁴ M as Al 時上澄液殘餘濁度與總鋁濃度的變化情形

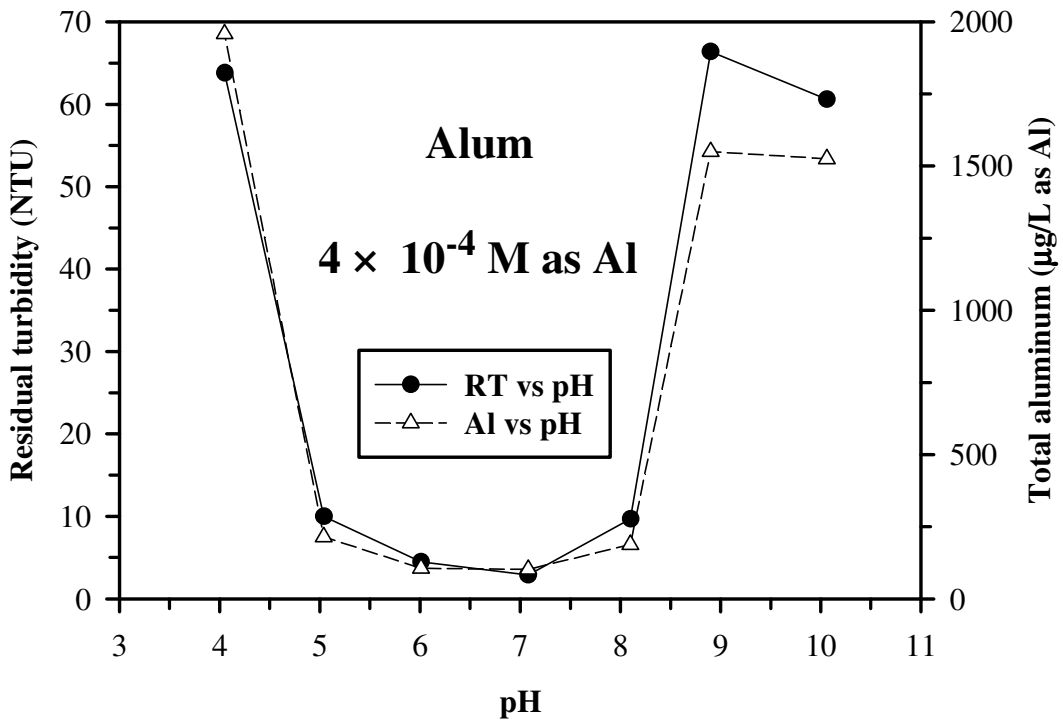


圖 C-13 不同 pH 值下 Alum 加藥量為 4×10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總鋁濃度的變化情形

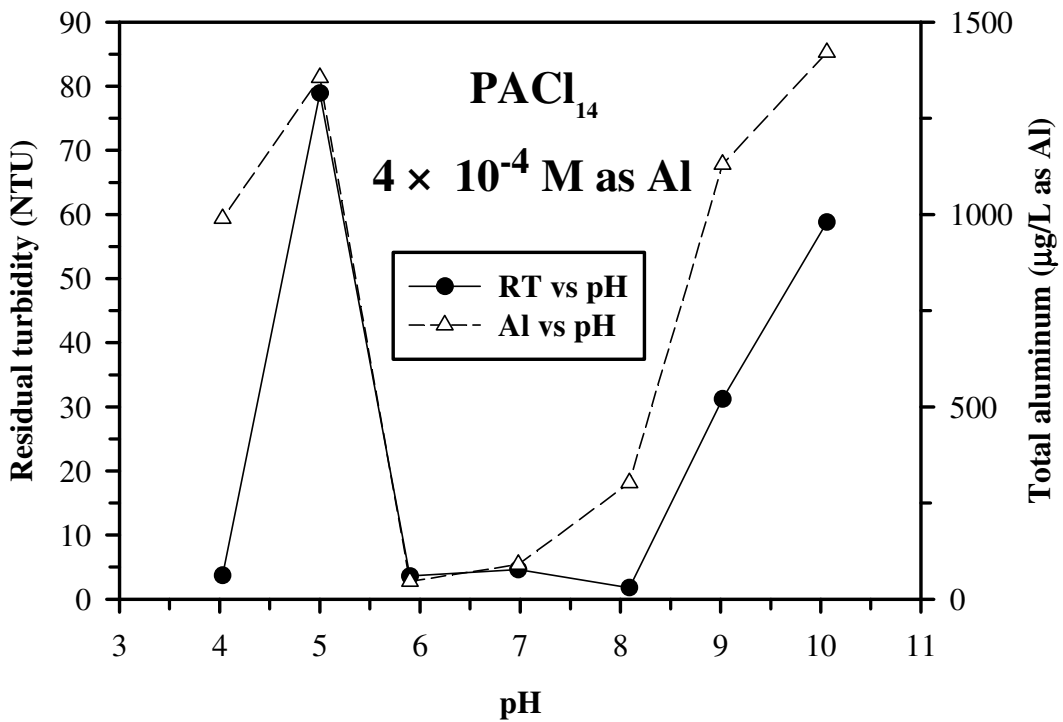


圖 C-14 不同 pH 值下 PACl₁₄ 加藥量為 4×10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總鋁濃度的變化情形

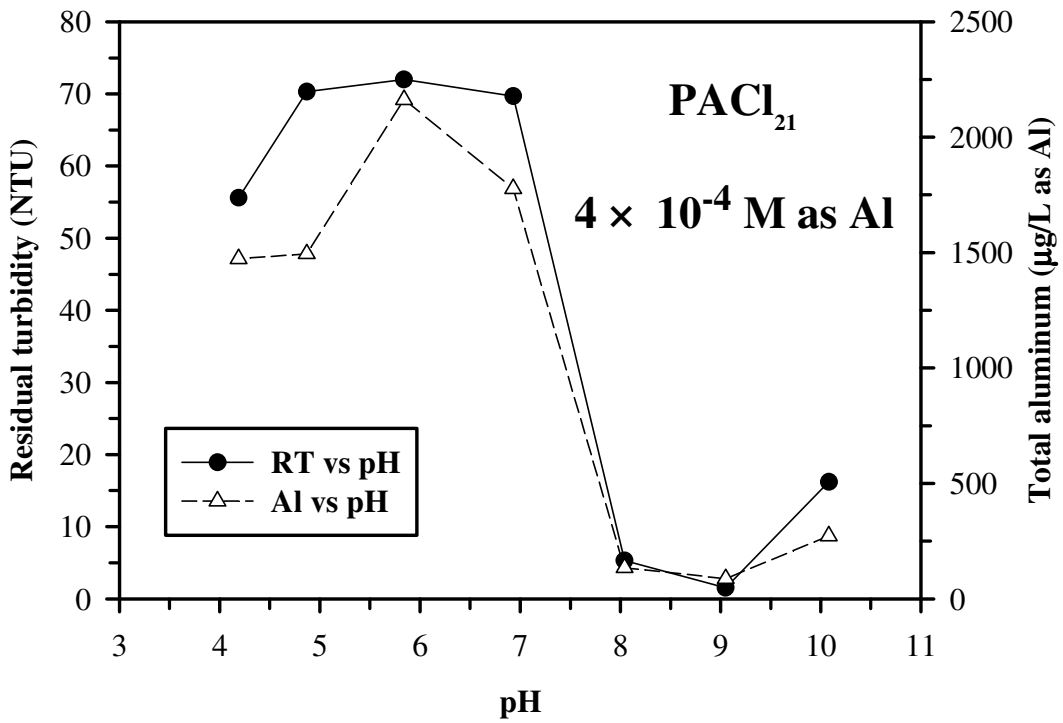


圖 C-15 不同 pH 值下 PACl₂₁ 加藥量為 4×10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總鋁濃度的變化情形

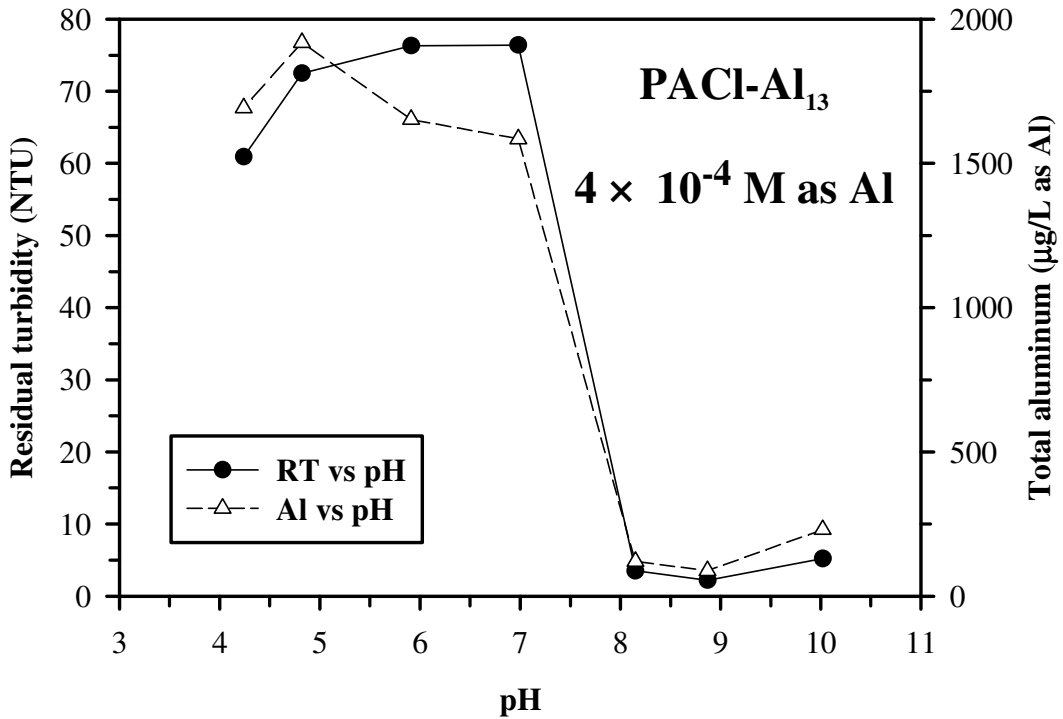


圖 C-16 不同 pH 值下 PACl-Al₁₃ 加藥量為 4×10^{-4} M as Al 時上澄液殘餘濁度與總鋁濃度的變化情形

附錄 D

以鎂鹽污泥重複混凝移除水中之矽酸

1. 前言及實驗目的

對於含有大量二氧化矽顆粒的廢水而言，在 25 °C 且為中性 pH 值的水溶液中，二氧化矽的溶解度為 100 ~ 120 mg/L as SiO₂^[Faust and Aly, 1999]。而在混凝過程中，誠如 Duan and Gregory (1996, 1998a, 1998b) 的研究所述，水中的矽酸會對鋁鹽混凝劑處理含矽廢水的效果產生影響。

林氏 (2005) 的研究中指出，利用鎂鹽可有效移除水中的矽酸並可減緩薄膜積垢的程度，而且矽酸並不會造成鎂鹽產生如 Al₁₃ 聚合鋁會發生解聚的現象而影響混凝的效果，所以本文以矽酸鈉及市售 RO 水依一定比例混合配製為人工矽酸廢水，搭配氯化鎂為混凝劑，探討鎂鹽吸附矽酸後所產生的污泥是否可重複利用於水中矽酸的移除。

2. 實驗部份

2-1 實驗材料

(1) 矽酸鈉

使用藥理化學生產之矽酸鈉 (Na₂SiO₃ · 9H₂O)，於實驗中配製成所需之人工矽酸廢水，其儲備溶液中的總矽濃度為 1,000 mg/L as SiO₂，pH 為 12.31。

(2) 氯化鎂

使用島久藥品 (SHIMAKYU'S PURE CHEMICALS) 所生產之氯化鎂 (MgCl₂ · 6H₂O)，於實驗中配製 1,000 mg/L as Mg 的儲備溶液以作為混凝劑使用，其 pH 值為 8.44。

(3) 氫氧化鈉

使用 Panreac 所生產的氫氧化鈉，配製成高濃度的儲備溶液，用以調整人工矽酸廢水的酸鹼度至約 pH 11。

(4) 鹽酸

使用和光純藥所生產的鹽酸，將濃度配製成 0.05 M 的鹽酸儲備溶液作為凝實實驗的酸鹼調整劑，使人工廢水的 pH 值約為 11。

(5) 鉬酸鉍藥包—鉬酸鉍 $[(\text{NH}_4)_6\text{MoO}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}]$ 、酸性試劑及檸檬酸

使用 HACH 公司生產之矽酸量測藥包（編號 24296-00），水中的 monosilicic acid 與鉬酸鉍反應變色後以分光光度計 (HACH DR/4000) 測定，此藥包內含鉬酸鉍、酸劑及檸檬酸此三種試劑。

2-2 實驗設備及分析儀器

(1) pH 計(pH meter)

為 WTW 公司製造、型號為 InoLab Multi Level 1 的水質分析儀器，pH 計於每次使用前均以上泰公司出品的酸鹼度標準液 (pH 為 4.01、7.0 及 10.0，25 °C) 及儀器內建的 RSY 模式進行校正。

(2) 濁度計 (Turbidimeter)

使用 WTW 公司生產、型號為 Turb 555 的濁度計，該濁度計是以鎢絲燈管做為光源，量測水中顆粒對光線的散射程度以求得濁度值，其適用的濁度偵測範圍為 0.02 ~ 1,750 NTU。

(3) 瓶杯試驗機 (Jar tester)

為美國 Phipps & Birds 公司製造、型號 PB-700 的瓶杯試驗機，其最大轉速可至 400 rpm，槳葉長 7.6 cm、寬 1.7 cm。每批次可同時操作六杯水樣，每批次實驗使用 1 L 圓形玻璃燒杯。

(4) 雷射奈米顆粒/界達電位及分子量量測儀 (Zetasizer nano series)

為英國 Malvern 公司製造、型號 Zetasizer nano ZS 的顆粒粒徑/界達電位及分子量量測儀，主要用以量測水中顆粒的界達電位及粒徑分佈情形，

此量測儀適用於顆粒濃度較低的水樣，可偵測的顆粒粒徑範圍為 0.6 nm ~ 6 μm，而界達電位所能分析的粒徑範圍介於 3 nm ~ 10 μm。

(5) 分光光度計 (UV-VIS spectrophotometer)

為美國 HACH 公司製造、型號 DR/4000 之分光光度計，內建之 Program 3350 可量測水中的矽酸濃度，偵測波長為 452 nm 且可偵測之矽酸濃度最大上限值為 100 mg /L as SiO₂。

此實驗中矽酸濃度的量測為根據環檢所公告檢測方法中之水中矽酸鹽檢測方法—鉬矽酸鹽比色法 (NIEA W450.50B)來測定，其反應式如下：



當 pH 值接近 1.2 時，鉬酸鉍會與水中的矽、磷反應而呈現黃色，另外加入草酸或檸檬酸以去除磷鉬酸的干擾，避免影響鉬酸鉍與矽酸之間的反應，而會與鉬酸鉍產生反應的矽酸只有單矽酸 [monosilicic acid, Si(OH)₄]，所形成的矽鉬酸(silicomolybdic acid)呈黃色。



2-3 實驗方法

(1) 人工矽酸廢水的配製

以市售 RO 水搭配 1,000 mg/L as SiO₂ 的矽酸儲備溶液進行人工矽酸廢水的配製。於 1 L 的燒杯中，先加入約 300 mL 的市售 RO 水後，再加入 50 mL 的矽酸儲備溶液後，以酸鹼劑將 pH 值調整至約略高於 11 的條件並定量至 450 mL，使鎂鹽加入後的酸鹼值可維持在 pH 11。

(2) 混凝實驗

本實驗中，由於實驗方法為採鎂鹽污泥進行重複混凝的程序，所以必須以第一杯的水樣製造出污泥後，才能繼續後面的實驗流程，於此處先說明第一杯的實驗方法後，再接續說明第二杯以後的瓶杯實驗。

A. 第一杯瓶杯實驗

- a. 於所配製好、體積約為 450 mL 左右的人工水樣中投入 45 mL、1,000 mg/L as Mg 的鎂鹽使加藥量為 90 mg/L as Mg 後，以 200 rpm 的槳葉轉速進行為時 1 分鐘的快混程序，在時間達 1 分鐘時於液面下約 3 公分處採樣進行顆粒界達電位的分析，接續以 40 rpm 的轉速進行 15 分鐘的慢混程序，於慢混完成後停止攪拌，使溶液進入沉澱程序，時間為 15 分鐘，同時置入 pH 計以監測 pH 值。
- b. 完成上述 a. 的步驟後，於液面下 3 公分處採樣測定上澄液的殘餘濁度值，記錄該濁度值及此刻的 pH 值後即完成第一杯的瓶杯實驗。
- c. 將杯內大部份的上澄液倒出並小心避免底部污泥的揚起，以 200 mL 的燒杯收集剩餘的鎂鹽污泥後，加入些許的去離子水使整體體積維持 50 mL，此時即完成第二杯污泥重複混凝實驗所需的污泥樣品。

B. 第二至第六杯瓶杯實驗

實驗步驟如同上述第一杯的操作方式，唯此處所使用的混凝劑為上述 A 中步驟 c 所製備的污泥樣品，於完成第二杯的混凝實驗後，同上述步驟 c 進行下一杯的污泥製備，重複進行同樣的步驟直至完成第六杯的實驗。

3. 結果與討論

鎂鹽污泥重複混凝處理人工廢水的實驗結果如圖 D-1 所示，根據分光光度計分析初始人工廢水中矽酸含量的結果，為 110 mg/L as SiO₂ 的飽和溶解度情形，顯示本實驗中配製之人工廢水能符合實驗目的之需求。

觀察圖 D-1 中矽酸濃度、殘餘濁度與顆粒界達電位隨污泥利用次數增加的變化可發現，在鎂鹽加藥量為 90 mg/L as Mg 的情況下，第一杯的矽酸去除率可達 70%，而到了第二杯時其去除率降至只有 15%，後續三至六杯中的鎂鹽均無法移除水中的矽酸，去除率均為 0%。殘餘濁度的表現則是隨著污泥利用次數的增加而呈現上揚的趨勢，而快混後的界達電位則表現出

越趨負電荷的情況。因此，由殘餘矽酸濃度、殘餘濁度及界達電位的變化情況可知，以鎂鹽污泥進行水中矽酸移除的重複混凝次數而言，第二次以後均無處理效果，而初始投藥的處理效果可達 70 % 的矽酸去除率。

與林氏 (2005) 的研究結果相比較可發現，在相同加藥量及操作條件的情況下，本實驗中鎂鹽對矽酸的去除率只達 70 % 而該學者則可達約 90 %，其原因可能為初始矽酸濃度的不同所造成 (本實驗為 110 mg/L as SiO₂，該學者則為 72.8 mg/L as SiO₂)。但與該學者的研究結果相對照，在 pH 值為 11 的操作條件下，鎂鹽的確有助於水中矽酸的移除。

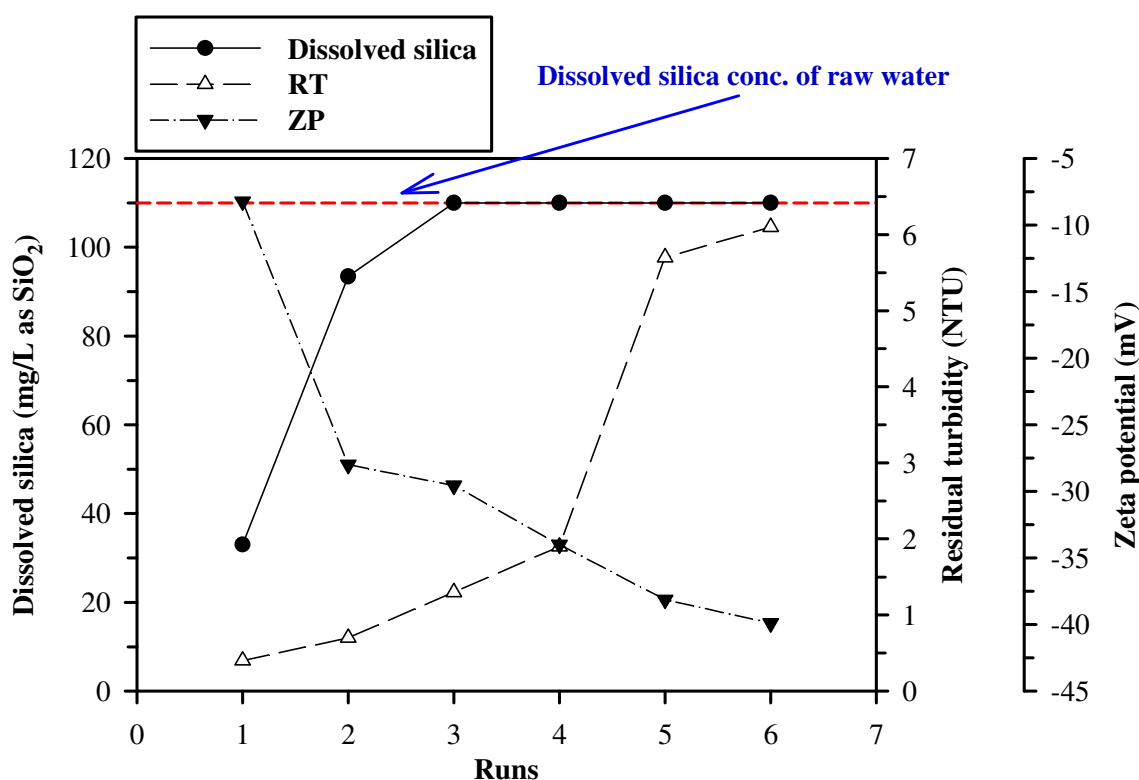


圖 D-1 以鎂鹽污泥重覆混凝移除水中矽酸其上澄液殘餘矽酸、殘餘濁度及界達電位與污泥利用次數的關係

4. 小結

由本實驗的結果顯示，在加藥量為 90 mg/L as Mg 的情況下，鎂鹽污泥可重複利用於水中矽酸移除的次數僅為兩次。因此，建議於後續相關的研究中提高鎂鹽的加藥量，進一步探討增加用藥量是否有助於提高鎂鹽污泥

可重複利用的次數。

5. 參考文獻

Duau, J. and Gregory, J. (1996). Influence of soluble silica on coagulation by aluminum sulphate. *Colloids Surf. A- Physicochem. Eng. Asp.*, Vol.107, pp.309-319

Duau, J. and Gregory, J. (1998b). The influence of silicic acid on aluminum hydroxide precipitation and flocculation by aluminum salts. *J. Inorg. Biochem.*, Vol.69, pp.193-201

Faust, S. D. and Aly, O. M. (1999). *Chemistry of Water Treatment 2nd Edition.*

Gregory, J. and Duau, J. (1998a). The effect of dissolved silica on the action of hydrolyzing metal coagulants. *Water Sci. Technol.*, Vol.38, No.6, pp.113-120

林欣慧，利用 UF 配合鎂鹽前處理移除 CMP 廢水中矽酸之研究，國立交通

大學環境工程研究

