

## مدل سازی و بهینه سازی جذب متیلن بلو از محیط‌های آبی توسط پامیس براساس روش‌های RSM-CCD و ANN-GA

قربان عسگری<sup>۱</sup>، محمد درویش متولی<sup>۲</sup>، علیرضا بهشتی<sup>۳</sup>، مهدی سالاری<sup>۳\*</sup>

<sup>۱</sup>گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران  
<sup>۲</sup>مرکز تحقیقات بهداشت، ایمنی و محیط (RCHSE)، دانشگاه علوم پزشکی البرز، کرج، ایران  
<sup>۳</sup>گروه بهداشت، ایمنی و محیط زیست (HSE)، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی زنجان، زنجان، ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۹/۰۵/۱۳؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۹/۰۹/۱۷

### چکیده

زمینه و هدف: تخلیه حجم بالایی از فاضلاب‌های رنگی به منابع آب پذیرنده سبب نگرانی‌های گسترده‌ای در سرتاسر جهان شده است. هدف این مطالعه، بررسی کارایی جاذب پامیس در حذف متیلن بلو (MB) از محلول‌های آبی می باشد. همچنین فرآیند جذب توسط روش‌های سطح پاسخ-طراحی مرکب مرکزی (RSM-CCD) و شبکه عصبی مصنوعی- الگوریتم ژنتیک (ANN-GA) مدل سازی و بهینه سازی شد.

روش کار: پارامترهای ورودی به مطالعه شامل pH (۳-۱۱)، زمان تماس (۱۰-۵۰ دقیقه)، دوز جاذب (۱-۰/۲ گرم در لیتر) و غلظت MB (۲۰-۱۰۰ میلی گرم در لیتر) بود. اثر این پارامترها بر کارایی پامیس در جذب MB توسط روش‌های RSM-CCD و ANN-GA مدل سازی و بهینه سازی شد. جهت سنجش غلظت باقی مانده MB در محلول از دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج ۶۲۰ نانومتر استفاده شد.

یافته‌ها: نتایج نشان داد که روش RSM-CCD قابلیت توسعه مدل چند جمله درجه دوم با اعتبار بالا ( $R^2 = 0/9997$ ) برای فرآیند جذب دارد. بطور مشابه روش ANN-GA به خوبی با دیتا آزمایشگاهی برای توسعه مدل با اعتبار بالا ( $R^2 = 0/9978$ ) فیت شد. نتایج بهینه سازی فرآیند توسط روش‌های RSM-CCD و ANN-GA، بالاترین راندمان جذب را در  $pH = 11$ ، زمان = ۵۰ دقیقه، دوز جاذب = ۱ گرم در لیتر و غلظت MB = ۲۰ میلی گرم در لیتر نشان داد. راندمان جذب با  $pH$ ، زمان تماس و دوز جاذب ارتباط مستقیم و با غلظت آلاینده رابطه عکس نشان داد. اثر خطی متغیرهای غلظت آلاینده و دوز جاذب بیشترین تاثیر را بر کارایی جذب داشتند.

نتیجه‌گیری: در این مطالعه مشاهده شد که پامیس بعنوان جاذب ارزان قیمت و در دسترس می تواند بعنوان گزینه مناسبی جهت جذب آلاینده‌های رنگی از محیط‌های آبی در نظر گرفته شود. همچنین می توان از دو روش RSM-CCD و ANN-GA جهت مدل سازی و بهینه سازی فرآیندهای جذب استفاده نمود.

کلمات کلیدی: متیلن بلو، پامیس، جذب، محیط‌های آبی

## مقدمه

تخلیه حجم بالایی از فاضلاب‌های رنگی به منابع آب پذیرنده سبب نگرانی‌های گسترده‌ای در سرتاسر جهان شده است.<sup>۱</sup> برای مثال، صنایع نساجی، تولید کاغذ، چرم، افزودنی‌های غذایی و آرایشی و بهداشتی سالانه حجم بالایی از فاضلاب‌های آلوده به انواع مختلفی از رنگ‌های مصنوعی را به محیط‌های آبی تخلیه می‌کنند. این رنگ‌ها حتی در غلظت‌های پایین برای انسان، جانوران و گیاهان سمی می‌باشند.<sup>۲</sup> اکثر این سموم ممکن است کارسینوژتیک باشند و سبب حساسیت‌های پوستی و آلرژیک بشوند.<sup>۳</sup> بنابراین کاربرد تصفیه موثر برای فاضلاب‌های رنگی قبل از تخلیه به منابع آبی امری بسیار ضروری می‌باشد. بدلیل خصوصیات زیست تجزیه پذیری پایین فاضلاب‌های رنگی، کاربرد فرآیندهای ترکیبی فیزیکی/شیمیایی همانند انعقاد و لخته سازی، فیلتراسیون، اکسیداسیون و روش‌های بیولوژیکی توسعه یافته است.<sup>۴</sup> روش‌های تصفیه بیولوژیکی بدلیل خصوصیات سمی فاضلاب‌های صنعتی ممکن است با مشکلات متعددی بخصوص افزایش در مرگ باکتری‌ها همراه شود.<sup>۵</sup> در روش‌های اکسیداسیون هوا با حرارت مرطوب برای فاضلاب‌های با مقادیر اکسیژن مورد نیاز شیمیایی بالاتر از ۱۰۰ گرم در لیتر منجر به تولید محصولات جانبی سمی (مانند دی اکسین و فوران) شوند.<sup>۶</sup> همچنین روش‌های با پایه ی فیزیکی یا شیمیایی مانند انعقاد و لخته سازی و اسمز معکوس که برای حذف و ممانعت از ورود آلاینده‌های به محیط زیست می‌شوند، دارای راندمان قابل قبولی می‌باشند اما نیاز به فرآیندهای پیش تصفیه می‌باشند.<sup>۷، ۸</sup> از طرفی روش‌های اکسیداسیون خطر تولید حد واسط‌های خطرناک را به همراه دارد. در میان روش‌های مختلف تصفیه، فرآیند جذب توجه زیادی را به منظور حذف آلاینده‌های آلی از محیط‌های آبی به خود جلب کرده‌اند. تکنولوژی ساده، توانایی احیاء مجدد مناسب و خصوصیات عملیاتی بدون لجن از جمله ویژگی‌های

کاربرد فرآیند جذب می‌باشد.<sup>۹، ۱۰</sup> جاذب‌های طبیعی از جمله خاک رس، خاک اره، سبوس برنج، پوست نارگیل، خاکستر و .... بدلیل ارزان قیمت و زیست تجزیه پذیر بودنشان امروزه مورد توجه محققین قرار گرفته‌اند چراکه دارای صرفه اقتصادی و راندمان قابل قبولی می‌باشند.<sup>۱۱-۱۳</sup> یکی از مواد معدنی که جهت انجام فرآیند جذب سطحی کارا به نظر می‌رسد پوکه معدنی یا پامیس می‌باشد. پامیس ماده‌ای است سبک (با چگالی برابر ۱-۰/۵ کیلوگرم در لیتر) و دارای خلل و فرج بالا (حجم منافذ خالی تا ۸۵٪ است). این نوع سنگ دارای ساختاری منفذ دار و نسبت سطح به حجم بزرگ می‌باشد. همین موضوع موجب شده است تا فرآیند جذب بر روی آن امکان پذیر شود.<sup>۱۴</sup> در مطالعات انجام شده پامیس در حذف و کاهش برخی آلاینده‌های آب (نظیر: مواد آلی طبیعی، رنگها، نیترات، فلوراید) بکار رفته و کارایی قابل ملاحظه‌ای داشته است.<sup>۱۴، ۱۵</sup> امروزه استفاده از روش‌های چند متغیره به جای تک متغیره در بررسی و مطالعه فرآیندهای تصفیه در حال گسترش می‌باشد. با استفاده از روش‌های بهینه سازی و مدل سازی چند متغیره، تعداد آزمایش‌های مورد نیاز و به تبع آن زمان و هزینه کاهش می‌یابد. از آنجا که ممکن است فرآیند تصفیه در محیط‌های آبی از روند غیرخطی تبعیت کنند، استفاده از مدل‌های غیرخطی برای بررسی رفتار فرآیند تصفیه امری ضروری می‌باشد. روش سطح پاسخ با طراحی مرکب مرکزی (RSM-CCD) و شبکه عصبی مصنوعی (ANN) ابزاری انعطاف پذیر برای تحلیل برازش‌های چند متغیره غیرخطی می‌باشند.<sup>۱۶، ۱۷</sup> با استفاده از این دور روش، با انجام تعداد محدودی آزمایش می‌توان رابطه غیرخطی بین متغیرها و پاسخ‌ها را تعیین نمود. پس از برازش مدل‌ها، تعیین نقاط بهینه به منظور تعیین بیشترین راندمان حذف از اهمیت بالایی برخوردار می‌باشند. در روش RSM-CCD، می‌توان بهینه سازی را براساس روش هدف مطلوب و در روش ANN براساس الگوریتم ژنتیک (GA) انجام داد. مطالعه حاضر

ساعت در ۱۰۰۰ mL محلول اسید کلریدریک ۱٪ قرار داده شد و سپس توسط آب دو بار تقطیر بطور کامل شستشو داده شد. در نهایت برای خشک سازی پودر پامیس از آن با دمای ۱۰۵ درجه سلسیوس و مدت زمان ۲۴ ساعت استفاده گردید<sup>۱۸</sup>.

### آزمایش جذب

این پژوهش یک مطالعه بنیادی-کاربردی میباشد که در آزمایشگاه شیمی دانشگاه علوم پزشکی همدان انجام گردید. در این مطالعه، تمام آزمایشات در راکتور استوانه با جریان ناپیوسته انجام شد (شکل ۱). آزمایشات جذب در حجم محلول ۲۰۰ میلی لیتر انجام گرفت. برای تهیه غلظت‌های مورد نیاز MB، ابتدا محلول استوک MB با حل ۱ گرم این رنگ در یک لیتر آب مقطر تهیه گردید و غلظت مورد نظر با رقیق سازی از محلول استوک تهیه می شد. براساس روش طراحی مرکب مرکزی، ۴ متغیر مورد مطالعه که شامل pH، زمان تماس، دوز جاذب و غلظت MB می باشند در ۵ سطح مطابق جدول ۱ وارد طراحی شد و در نهایت ۳۰ آزمایش حاصل شد (جدول ۲). محدوده متغیرها براساس پیش آزمون تعیین شد. از این ۳۰ آزمایش، ۱۶ آزمایش مربوط به نقاط فاکتوریال ( $\alpha = \pm 1$ )، ۸ آزمایش مربوط به نقاط محوری ( $\alpha = \pm 2$ ) و ۶ آزمایش دیگر مربوط به تکرار آزمایشات در نقطه مرکزی ( $\alpha = 0$ ) می باشد.

کارایی پامیس در حذف رنگ متیلن بلو (MB) از محیط‌های آبی را بررسی می کند و اثر متغیرهای ورودی به فرآیند از جمله دوز جاذب، زمان تماس، غلظت جذب شونده و pH را با روش‌های RSM-CCD و ANN-GA مدل سازی و بهینه سازی می کند.

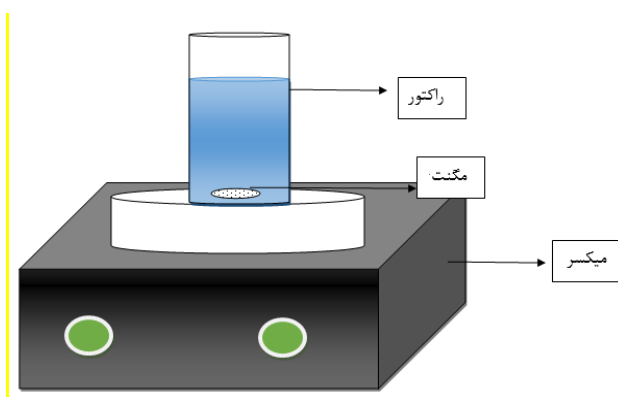
### مواد و روش کار

#### مواد

در این مطالعه، رنگ MB از شرکت رنگ الوان ثابت همدان تهیه شد. سنگ پامیس مورد استفاده در این مطالعه از معادن پوکه قروه واقع در شهرستان قروه، استان کردستان تهیه گردید. اسید کلریدریک (درجه خلوص ۳۸٪) و سود (۹۸٪) مورد استفاده در این مطالعه با خلوص آزمایشگاهی از شرکت مرک آلمان خریداری شد.

#### آماده سازی پامیس

سنگ پامیس ابتدا بطور کامل توسط هاون خرد گردید و توسط الک‌های استاندارد ASTM با مش ۲۰ و ۴۰ که به ترتیب دارای اندازه ذرات ۰/۸۵، ۰/۴۲۵ میلی متر می باشند، جداسازی شد. اندازه ذرات پامیس جدا شده بین ۰/۸۵ mm، ۰/۴۲۵ می باشد. سپس پودر پامیس تولید شده، به مدت ۴۸



شکل ۱: شماتیک راکتور آزمایشات جذب MB توسط پامیس

جدول ۱: متغیرهای مستقل و محدوده و مقادیر هر متغیر در آزمایشات

متغیر	نماد	-۲	-۱	۰	+۱	+۲
pH	A	۳	۵	۷	۹	۱۱
زمان تماس (دقیقه)	B	۱۰	۲۰	۳۰	۴۰	۵۰
دوز پامیس (گرم در لیتر)	C	۰/۲	۰/۴	۰/۶	۰/۸	۱
غلظت MB (میلی گرم در لیتر)	D	۲۰	۴۰	۶۰	۸۰	۱۰۰

نشان می‌دهد.  $a_i$ ،  $a_{ij}$  و ضرایب رگرسیون اثرات خطی، درجه دوم و تلفیقی را نشان می‌دهد.  $a_0$  شیب خط و  $n$  تعداد متغیرهای ورودی را نشان می‌دهد.  $\varepsilon$  خطای مدل را نشان می‌دهد.<sup>۱۹</sup>

(۲)

$$Y = a_0 + \sum_{i=1}^k a_i x_i + \sum_{i=1}^k a_{ii} x_i^2 + \sum_{i \neq j}^n a_{ij} x_i x_j + \varepsilon$$

بهینه‌سازی متغیرهای ورودی به مدل در روش RSM-CCD براساس هدف مطلوب می‌باشد. از آنجاییکه بالاترین راندمان حذف بعنوان هدف مطلوب تعیین می‌شود، معادله رگرسیون حاصل شده از روش RSM-CCD براساس بیشترین راندمان حذف بهینه می‌شود. بدین منظور، سطوح بالا و پایین متغیرهای ورودی به مدل را در محدوده  $\alpha = \pm 2$  قرار داده و پیش بینی راندمان را بر روی گزینه ماکزیمم قرار داد تا فرآیند بهینه‌سازی انجام شود.

### روش ANN-GA

در این مطالعه از روش شبکه‌ی عصبی مصنوعی نوع پرسپترون چندلایه (MLP) استفاده شده است. الگوریتم بازگشت به عقب (Backpropagation - feed-forward) بعنوان الگوریتم مورد استفاده در این مدل بود.<sup>۲۰</sup> در شبکه عصبی چندلایه، ارتباط بین عناصر ورودی در لایه ی اول ( $x_i$ ) و خروجی در لایه ی آخر ( $y$ )، به کمک وزنهای نرونی ( $W$ )، بایاس ( $b$ ) و تابع فعالیت  $f(x)$  در لایه (های) میانی است.

جهت تنظیم pH محلول، از محلول ۰/۱ نرمال NaOH و HCl استفاده شد و قرائت آن توسط دستگاه pH meter مدل Kent EIL7020 انجام پذیرفت. به منظور جداسازی جاذب، هر نمونه توسط دستگاه Heraeus Labofuge 200 در دور ۵۰۰۰rpm برای ۵ دقیقه سانتریفوژ شد. در نهایت غلظت باقیمانده MB توسط اسپکتروفتومتر DR ۵۰۰۰ در طول موج ۶۲۰ نانومتر تعیین شد. به منظور تعیین میزان حذف از رابطه ۱ استفاده شد. در این رابطه  $C_0$  غلظت اولیه MB (میلی گرم در لیتر) و  $C_e$  غلظت MB در زمان تعادل (میلی گرم در لیتر) را نشان می‌دهند.

$$\text{راندمان حذف (\%)} = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

### طراحی آزمایشات، مدلینگ و بهینه سازی

#### روش RSM-CCD

روش RSM-CCD بعنوان یک رویکرد آماری-ریاضی جهت مطالعه ارتباط متغیرهای ورودی با راندمان حذف و همچنین مدل سازی و بهینه‌سازی استفاده شد (نرم افزار Desing-Expert، نسخه ۱۱). در این روش، تعداد و مقدار سطوح براساس جدول ۱ ارائه شد. بنابراین، اثر pH، زمان تماس، دوز جاذب و غلظت MB بصورت سیستماتیک بر روی کارایی فرآیند جذب مورد مطالعه قرار گرفت. در روش RSM-CCD، کورولیشن بین راندمان حذف و متغیرهای ورودی توسط معادله چندجمله درجه دوم تعیین می‌شود (رابطه ۲). در این رابطه  $Y$  راندمان حذف پیش بینی شده را

## نتایج

### آنالیز آماری و برازش مدل

#### روش RSM-CCD

مقادیر آزمایشگاهی و پیش بینی شده جذب MB توسط پامیس براساس روش RSM-CCD در جدول ۲ گزارش شده است. جدول ۳ نتایج آنالیز واریانس برای مدل حاصل شده به روش RSM-CCD را نشان می دهد. همچنین شکل ۲ (الف) و (ب) بیانگر توزیع مقادیر باقی مانده (اختلاف راندمان حذف آزمایشگاهی و پیش بینی شده توسط مدل) می باشد. براساس نتایج بدست آمده و رگرسیون بین متغیرهای مستقل با میزان حذف MB، مدل تجربی (رابطه ۶) حاصل گشت که میزان ارتباط بین متغیرهای مستقل و میزان پاسخ را براساس مقادیر واقعی متغیرها نشان می دهد.

(۶)

$$\begin{aligned} \text{حذف} = & 20.461 + 2.092 A + 0.201 B + 33.844 C \\ & - 0.429 D + 0.039 AB + 0.344 AC + 0.005 AD + 0.238 \\ & BC + 0.001 BD + 0.063 CD - 0.041 A^2 - 0.004 B^2 - 5 C^2 \\ & - 0.001 D^2 \end{aligned}$$

همچنین نمودار پارتو به منظور مقایسه میزان اثر متغیرهای مورد مطالعه و محاسبه درصد اثر هر فاکتور بر پاسخ در شکل ۳ نشان داده شد که توسط رابطه ۷ محاسبه شد.

$$P_i (\%) = \left[ \frac{a_i}{\sum a_i} \right] \times 100 \quad (7)$$

در این رابط  $a_i$  ضریب رگرسیون هر ترم را براساس مقادیر کد شده نشان می دهد. در میان اثرات خطی (A, B, C و D)، بالاترین اثر خطی مربوط به C (دوز پامیس) و D (غلظت آلاینده) و در میان اثرات تلفیقی (AB, AC, AD, BC, BD و CD)، بالاترین اثر تلفیقی مربوط به AB (اثر تلفیقی pH و زمان تماس) و BC (اثر تلفیقی زمان تماس و دوز پامیس) می باشد. همچنین در میان اثرات درجه دوم ( $A^2, B^2, C^2$  و  $D^2$ )، بالاترین اثر مربوط به  $B^2$  (اثر درجه دوم زمان تماس) و  $D^2$  (اثر درجه دوم غلظت آلاینده) می باشد.

طراحی شبکه براساس ترکیبی از اطلاعات پارامترهای تاثیر گذار در راندمان حذف، در قالب ساختارهای متفاوت از اطلاعات در لایه ی ورودی انجام شده است. در هر یک از ساختارها، اطلاعات ورودی پس از پردازش، از راه خروجی نرون های لایه ی اول، به نرون های لایه (های) بعدی و در نهایت، در صورت قابل قبول بودن به خروجی شبکه منتقل می شود. در غیر این صورت با انتشار خطای محاسباتی به لایه های پیش، محاسبه ها دوباره تکرار می شوند. تعداد نرون بهینه در لایه اول و نهایی به ترتیب برابر با تعداد متغیرهای ورودی و خروجی می باشد. درحالیکه تعداد نرون های لایه میانه براساس کمترین میانگین مربعات خطا (MSE) (رابطه ۳) و بالاترین ضریب تبیین ( $R^2$ ) (رابطه ۴) انتخاب شد. تابع انتقال در لایه میانی تابع سیگموئید و لایه خروجی تابع انتقال خطی بود. در این مطالعه، ماتریکس دیتا جدول ۲ بعنوان دیتا ورودی به شبکه عصبی می باشد. بدلیل متفاوت بودن مقادیر متغیرهای ورودی و جلوگیری از خطاهای محاسباتی، قبل ورود دیتا به نرم افزار، مقادیر تمام متغیرها براساس رابطه ۵ بین ۰/۱ و ۰/۹ نرمال شد.

$$MSE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (y_{p,i} - y_{exp,i})^2 \quad (3)$$

$$R^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (y_{p,i} - y_{exp,i})}{\sum_{i=1}^N (y_{p,i} - y_{av})} \quad (4)$$

$$y_i = 0.1 + 0.8 \times \frac{x_i - x_{min}}{x_{max} - x_{min}} \quad (5)$$

بهینه سازی در روش ANN-GA براساس رویکرد GA اتفاق افتاد. در این روش یک جمعیت با ایجاد راه حل هایی منجر به تولید جمعیت های جدید می شود. این عمل به منظور رسیدن به بهترین جواب تکرار می شود تا زمانی که جمعیت های جدید تاثیر در بهبود جواب نداشته باشند و تابع برازش ثابت شود. به منظور بهینه سازی، مدل بدست آمده از روش ANN در ابزار GA تعریف می شود و سطوح متغیرها در محدوده  $\alpha = \pm 2$  تعریف شدند.

**جدول ۲:** طراحی آزمایش و راندمان حذف آزمایشگاهی و پیش بینی شده MB توسط پامیس

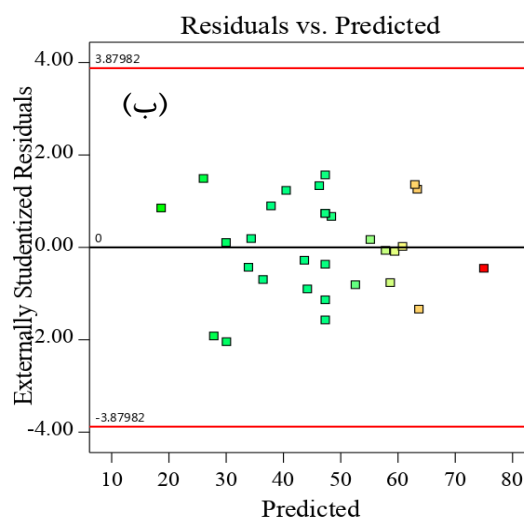
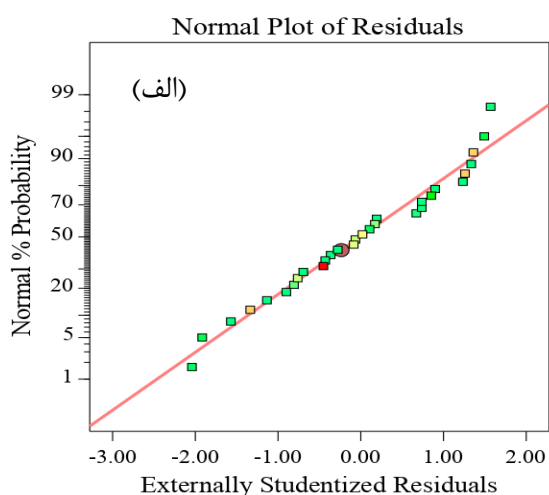
شماره آزمایش	pH	زمان تماس (دقیقه)	دوز پامیس (گرم در لیتر)	غلظت آلاینده (میلی گرم در لیتر)	راندمان آزمایشگاهی (%)	راندمان پیش بینی شده (RSM-CCD) (%)	راندمان پیش بینی شده (ANN) (%)
۱	۷	۳۰	۰/۶	۶۰	۴۵/۲	۴۵/۳۰	۴۵/۴۷
۲	۵	۲۰	۰/۸	۸۰	۳۲/۴	۳۲/۳۶	۳۰/۸۰
۳	۵	۴۰	۰/۴	۴۰	۴۲	۴۲/۱	۴۲/۰۰
۴	۵	۲۰	۰/۴	۴۰	۳۶	۳۵/۸۳	۳۶/۰۰
۵	۵	۲۰	۰/۴	۸۰	۱۶/۸	۱۶/۶۴	۱۶/۸۰
۶	۵	۲۰	۰/۸	۴۰	۵۰/۴	۵۰/۵۵	۵۱/۲۴
۷	۹	۴۰	۰/۸	۸۰	۵۶/۵	۵۶/۶۵	۵۶/۵۰
۸	۷	۵۰	۰/۶	۶۰	۵۳/۲	۵۳/۱۷	۵۳/۲۰
۹	۹	۲۰	۰/۸	۸۰	۴۴/۵	۴۴/۲۵	۴۴/۵۰
۱۰	۷	۳۰	۰/۲	۶۰	۲۷/۷	۲۸/۰۵	۲۷/۷۰
۱۱	۹	۴۰	۰/۴	۴۰	۵۵/۸	۵۵/۸۱	۵۵/۵۶
۱۲	۷	۱۰	۰/۶	۶۰	۳۴/۳	۳۴/۴۳	۳۴/۳۰
۱۳	۱۱	۳۰	۰/۶	۶۰	۵۷/۴	۵۷/۴۲	۵۹/۱۴
۱۴	۹	۴۰	۰/۴	۸۰	۳۸/۷	۳۸/۴۷	۳۸/۷۰
۱۵	۷	۳۰	۰/۶	۶۰	۴۴/۹	۴۵/۳۰	۴۵/۴۷
۱۶	۹	۲۰	۰/۴	۴۰	۴۶/۵	۴۶/۳۷	۴۶/۵۰
۱۷	۷	۳۰	۰/۶	۲۰	۶۱/۶	۶۱/۳۷	۶۱/۶۰
۱۸	۷	۳۰	۱	۶۰	۶۱/۲	۶۰/۹۵	۶۰/۲۰
۱۹	۷	۳۰	۰/۶	۱۰۰	۲۵/۵	۲۵/۸۳	۲۵/۵۰
۲۰	۹	۲۰	۰/۸	۴۰	۶۱/۴	۶۱/۶۵	۶۱/۴۰
۲۱	۳	۳۰	۰/۶	۶۰	۳۱/۸	۳۱/۸۸	۳۱/۸۰
۲۲	۹	۲۰	۰/۴	۸۰	۲۸	۲۷/۹۸	۲۸/۰۰
۲۳	۷	۳۰	۰/۶	۶۰	۴۵/۵	۴۵/۳۰	۴۵/۴۷
۲۴	۹	۴۰	۰/۸	۴۰	۷۲/۹	۷۲/۹۹	۷۲/۹۰
۲۵	۵	۴۰	۰/۸	۸۰	۴۱/۶	۴۱/۶۵	۴۰/۸۸
۲۶	۵	۴۰	۰/۸	۴۰	۵۸/۸	۵۸/۸۰	۶۰/۱۲
۲۷	۵	۴۰	۰/۴	۸۰	۲۴/۳	۲۴/۰۳	۲۸/۴۹
۲۸	۷	۳۰	۰/۶	۶۰	۴۵/۷	۴۵/۳۰	۴۵/۴۷
۲۹	۷	۳۰	۰/۶	۶۰	۴۵/۵	۴۵/۳۰	۴۵/۴۷
۳۰	۷	۳۰	۰/۶	۶۰	۴۵	۴۵/۳۰	۴۵/۴۷

جدول ۳: نتایج آنالیز واریانس مدل چند جمله ای درجه دوم پیش بینی حذف MB توسط پامیس (RSM-CCD)

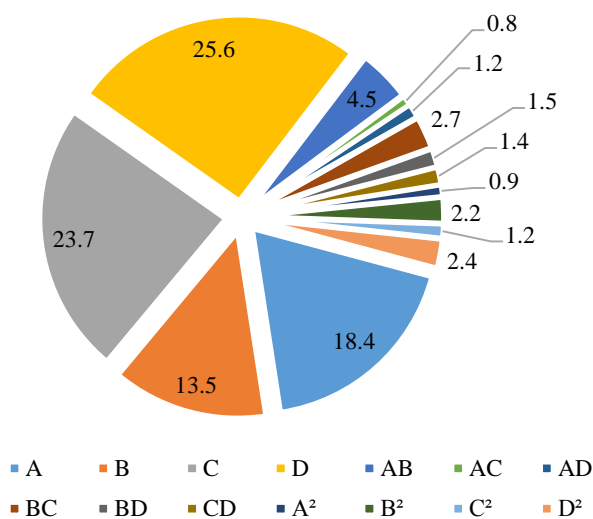
پارامتر	مجموع مربعات	F-value	p-value
مدل	۵۰۴۶۲	۴۲۱۵/۷	۰/۰۵ >
A-pH	۹۷۷/۹	۱۱۴۳۷/۷	۰/۰۵ >
B-زمان تماس	۵۳۶/۴	۶۱۵۶/۸	۰/۰۵ >
C-دوز پامیس	۱۶۲۳/۶	۱۸۹۸۹/۶	۰/۰۵ >
D-غلظت آلاینده	۱۸۹۳/۹	۲۲۱۵۱/۲	۰/۰۵ >
AB	۹/۶	۱۱۲/۴	۰/۰۵ >
AC	۰/۳	۳/۵	۰/۰۵ >
AD	۰/۶	۷/۵	۰/۰۵ >
BC	۳/۶	۴۲/۲	۰/۰۵ >
BD	۱/۱	۱۲/۹	۰/۰۵ >
CD	۱/۰	۱۱/۷	۰/۰۵ >
A <sup>2</sup>	۰/۷	۸/۵	۰/۰۵ >
B <sup>2</sup>	۳/۹	۴۵/۱	۰/۰۵ >
C <sup>2</sup>	۱/۱	۱۲/۸	۰/۰۵ >
D <sup>2</sup>	۵/۰	۵۷/۹	۰/۰۵ >
باقی مانده	۱/۳		
فقدان برازش شدن	۰/۸	۰/۸	۰/۶۵۴
خطای مطلق	۰/۵		

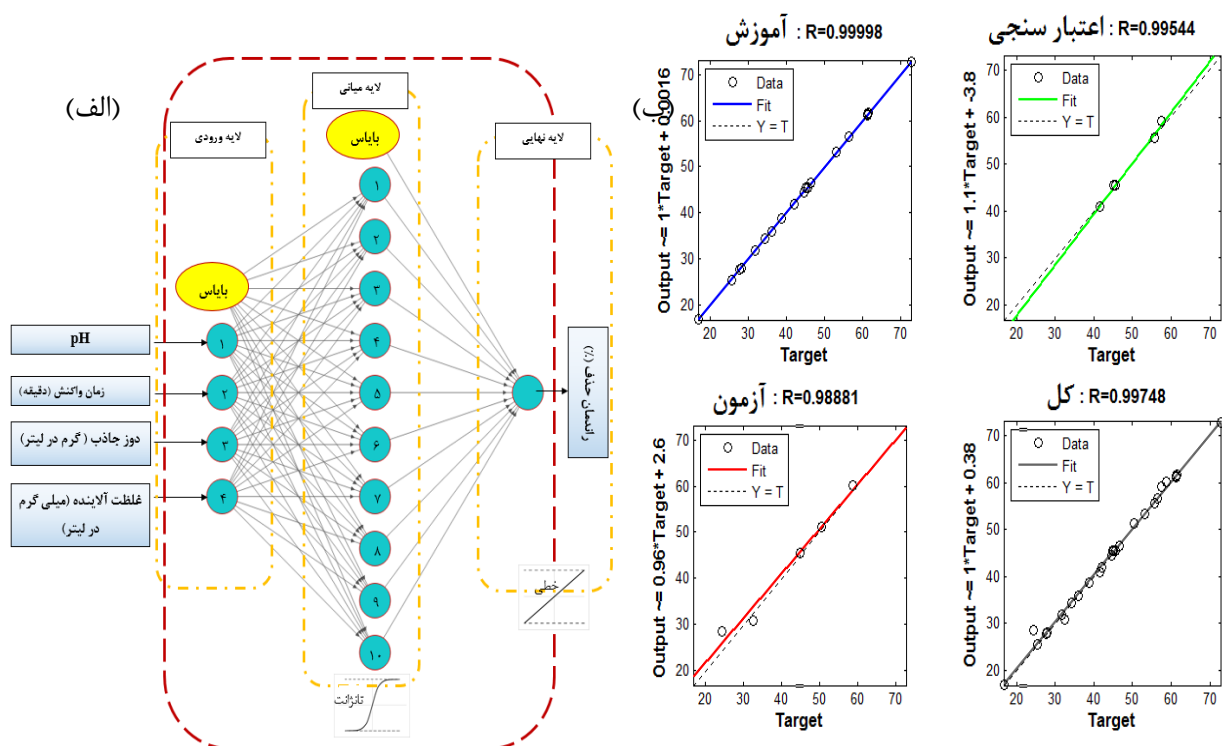
$R^2=۰/۹۹۹۷$	$R^2=۰/۹۹۹۵$ -تعدیل شده	$R^2=۰/۹۹۹$ پیش بینی کننده
۰/۲۹۲۴ = انحراف معیار	۴۴/۳۷ = میانگین	۰/۶۵۹۰ = C.V.%



شکل ۲: آنالیز تاییدی مدل برازش شده براساس RSM-CCD برای حذف MB توسط پامپس



شکل ۳: اثر هر پارامتر بر راندمان حذف بر مبنای مدل RSM-CCD



شکل ۴: ساختار و توپولوژی (الف) و عملکرد مدل ANN (ب) در برازش با دیتا آموزش، اعتبار سنجی، آزمون و کل



جدول ۴: وزن و بایاس‌های بهینه برای مدل ANN

متغیر ورودی (۵) - لایه میانی (۱۰)				لایه میانی (۱۰) و نهایی (۱)		
وزن		بایاس		وزن	بایاس	
۱/۵۳۴۳	-۱/۵۷۱۹	۰/۵۴۳۵۷	۰/۹۳۷۸۴	-۲/۴۷۵۵	۰/۰۸۱۲۰۲	
۰/۶۵۱۵۹	۱/۲۱۱۵	-۱/۳۶۸۹	-۱/۵۶۵۷	-۱/۸۷۶۵	-۰/۲۹۸۳۸	
-۱/۱۹۲۷	۱/۱۱۳۶	۱/۹۱۳۵	-۱/۰۹۱۷	۱/۱۷۳۲	۰/۱۲۶۴۸	
۰/۷۴۲۷۸	-۰/۳۰۹۳۳	۰/۲۹۰۳۱	۰/۷۶۱۶۵	۰/۰۴۱۶۴۷	۰/۷۰۶۴۱	
۰/۵۶۲۰۷	۱/۷۳۷۲	۰/۲۸۸۶۶	-۰/۹۵۲۴۳	-۰/۶۹۴۹۳	۰/۴۲۱۶۹	
-۱/۲۹۴۶	-۱/۳۳۲۵	۰/۹۶۴۲۹	۱/۲۷۵۱	-۰/۶۶۵۱۴	۰/۰۱۲۵۱	
-۰/۶۸۶۱۳	-۰/۸۲۱۵۴	۱/۹۷۸۱	۰/۸۰۷۲۸	-۱/۰۸۰۱	۰/۱۵۳۷۹	
۰/۰۲۸۶۸۱	۲/۱۵۱	-۰/۱۱۷	-۰/۹۶۷۱۶	۱/۵۲۲۵	۰/۳۱۴۳۱	
۱/۲۹۶	۰/۸۴۹۸۸	۰/۷۷۶۹۱	۱/۶۳	۲/۲۵۶۶	۰/۱۰۴۷۷	
۱/۳۳۸۳	۱/۵۴۰۷	-۰/۵۷۵۱۲	-۱/۰۷۱۹	۲/۷۴۸۸	۰/۰۶۲۸۳	-۰/۳۸۴۲۴

### روش ANN

در این روش تعداد نرون بهینه در لایه میانی با سعی و خطا بدست آمد، بطوریکه کمترین مقدار MSE و بالاترین  $R^2$  برای مدلی با تعداد نرون ۱۰ حاصل شد. شکل ۴ (الف) نشان دهنده توپولوژی و ساختار شبکه عصبی و همچنین شکل ۴ (ب) برازش مدل شبکه عصبی با دیتا آموزش، اعتباربخشی، آزمون و کل نشان می دهد. جدول ۴ مقادیر وزن‌ها و بایس‌های ورودی به نرون‌ها در لایه میانی و نهایی را نشان می دهد.

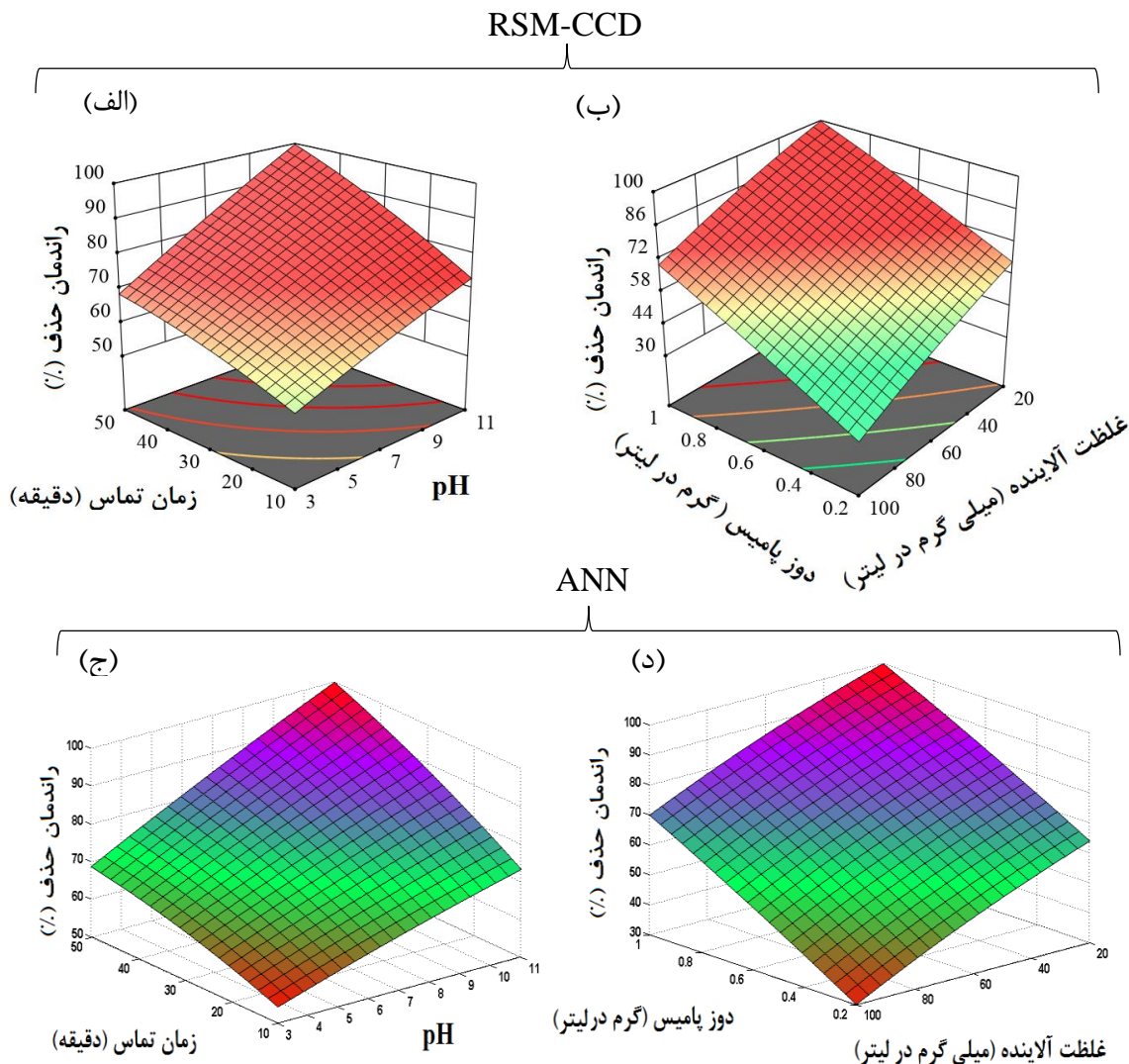
### اثر متغیرهای ورودی بر کارایی جذب و بهینه سازی

از نمودارهای سطح پاسخ به منظور مشاهده اثرات تغییرات همزمان دو فاکتور بر روی پاسخ پیش بینی شده توسط دو مدل RSM-CCD و ANN استفاده شد. نتایج دو مدل بسیار بهم نزدیک می باشد و روند اثر پارامترهای ورودی بر کارایی حذف در هر دو مدل مشابه می باشد. شکل ۵ (الف) و (ج)

کارایی فرآیند جذب در طی تغییر pH و زمان تماس را نشان می دهد ( غلظت MB ۲۰ میلی گرم در لیتر و مقدار جاذب ۱ گرم در لیتر). همانطور که در نمودار مشخص می باشد با افزایش pH، راندمان حذف افزایش می یابد بطوریکه در زمان ۵۰ دقیقه، افزایش pH محلول از ۳ به ۱۱ سبب تغییر راندمان از حدود ۷۰٪ به ۱۰۰٪ می شود. بطور مشابه ارتباط بین زمان با راندمان حذف مستقیم بدست آمد بطوریکه با افزایش زمان تماس، راندمان حذف افزایش یافت. نتایج نشان داد که در pH برابر با ۱۱، افزایش زمان تماس از ۱۰ به ۵۰ دقیقه سبب افزایش راندمان حذف از ۷۲٪ به ۱۰۰٪ می شود. شکل ۵ (ب) و (د) ارتباط بین راندمان حذف با پارامترهای غلظت اولیه MB و دوز جاذب را براساس دو مدل RSM-CCD و ANN نشان می دهند. همانطور که در نمودار مشخص می باشد با افزایش غلظت اولیه MB، راندمان حذف کاهش می یابد بطوریکه در دوز جاذب ۱ گرم در لیتر، افزایش غلظت اولیه MB از ۲۰ به ۱۰۰ میلی گرم در لیتر سبب کاهش راندمان حذف از حدود ۷۰٪ به ۱۰۰٪ می شود. در ادامه مشاهده شد

از ۷۴٪ به ۱۰۰٪ می‌شود.

که در غلظت اولیه ۲۰ میلی گرم در لیتر MB، افزایش دوز جذب از ۰/۲ به ۱ گرم در لیتر، سبب افزایش راندمان حذف



**شکل ۵:** اثر متغیرهای pH و زمان تماس (الف) و (ج) (دوز پامیس = ۱ گرم در لیتر و غلظت آلاینده = ۲۰ میلی گرم در لیتر) و غلظت آلاینده و دوز پامیس بر کارایی فرآیند (ب) و (د) (pH = ۱۱ و زمان تماس = ۵۰ دقیقه)

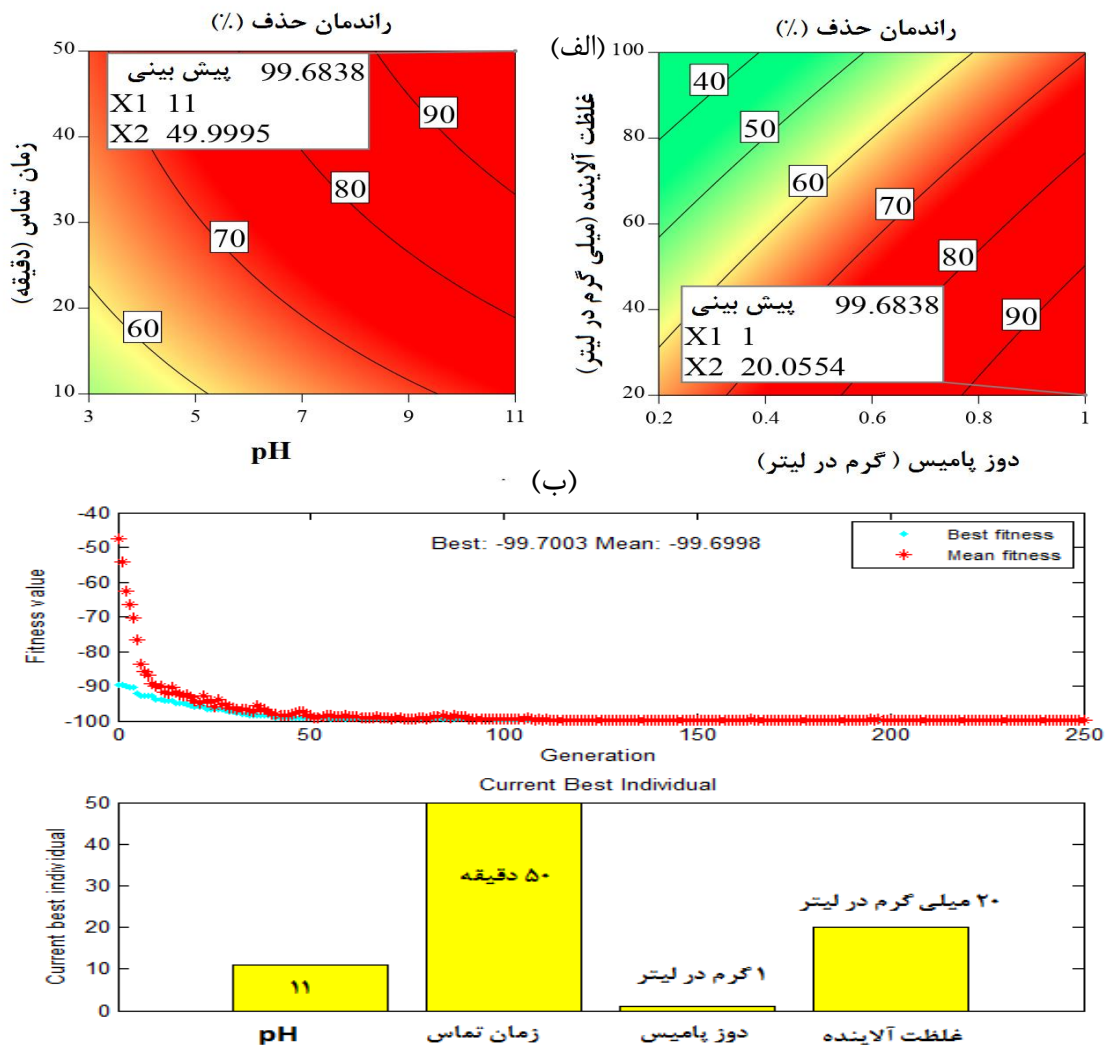
منظور دستیابی به بالاترین راندمان حذف را براساس دو روش RSM-CCD و ANN-GA نشان می‌دهد. هر دو روش مقادیر

### بهینه‌سازی فرآیند

شکل ۶ (الف) و (ب) مقادیر بهینه از متغیرهای ورودی به

دهد. در شرایط بهینه از متغیرها، راندمان حذف ۱۰۰٪ بدست آمده است.

بهینه pH = ۱۱، زمان تماس = ۵۰ دقیقه، دوز پامیس = ۱ گرم در لیتر و غلظت MB = ۲۰ میلی گرم در لیتر را نشان می



شکل ۶: مقادیر بهینه متغیرهای مورد مطالعه براساس روش‌های RSM-CCD (الف) و ANN-GA (ب)

## بحث

### مدل سازی و بهینه سازی براساس روش‌های

#### ANN-GA و RSM-CCD

نتایج نشان داد که مقادیر پیش بینی شده توسط روش RSM-CCD از مدل چند جمله ای درجه دوم تبعیت می کند که این مدل در آزمون آنالیز واریانس دارای آماره‌های معناداری

است. مقادیر F-value و p-value برای این مدل به ترتیب ۴۲۱۵/۷ و  $p < ۰/۰۵$  حاصل شد. همچنین اثر تمام متغیرهای ورودی به مدل از نظر آماری معنا دار بودند. مدل مورد نظر دارای  $R^2 = ۰/۹۹۹۷$  بود که بیانگر قدرت بالایی پیش بینی مدل می باشد بطوری که ۹۹/۹۷٪ از تغییرات حذف MB توسط این مدل قابلیت پیش بینی دارد. همچنین مقدار  $-R^2 = ۰/۹۹۹۵$

## پامیس

### اثر pH

نتایج نشان داد که با افزایش pH کارایی فرآیند افزایش می‌یابد و یک ارتباط مستقیمی بین این دو پارامتر می‌باشد. pH محلول در بار سطحی جاذب و یونیزه شدن ترکیب آلاینده موثر می‌باشد. با افزایش pH محلول، سطح جاذب بدلیل  $pH_{zpc}$  دارای بار منفی می‌شود. از طرفی رنگ MB کاتیونی می‌باشد که دارای بار مثبت می‌باشد. تفاوت بار جاذب و آلاینده سبب ایجاد نیروی جاذبه الکترواستاتیکی می‌شود. این نیروی جاذبه سبب افزایش راندمان حذف در pH های بازی می‌شود. نتایج مشابهی در مطالعه Qada و همکاران (۲۰۰۵) که به بررسی جذب MB توسط کربن فعال پرداختند، مشاهده شد<sup>۲۱</sup>.

### اثر زمان تماس

نتایج نشان داد که با افزایش زمان تماس، راندمان حذف افزایش می‌یابد. یکی از پارامترهای مهم در فرآیند جذب، تعیین زمان تعادل می‌باشد که بررسی آن در مطالعات مربوط به جذب حائز اهمیت می‌باشد. فراوانی دسترسی به سطوح و مکانهای جذب فراوان در زمان ابتدایی جذب بر روی جاذب MB را می‌توان دلیل اصلی افزایش راندمان جذب با افزایش زمان دانست. با گذشت زمان و اشباع شدن سطح جاذب بوسیله پامیس، سطح و تهیگاهها جاذب کاهش می‌یابد و در نتیجه سرعت جذب کاهش پیدا می‌کند و در نهایت میزان جذب ثابت می‌گردد. از طرفی کاهش غلظت آلاینده و در نتیجه کاهش احتمال برخورد با جاذب در زمانهای بالاتر را می‌توان بعنوان یکی دیگر از عوامل کاهش سرعت جذب در زمانهای بالاتر دانست. نتایج مشابهی در مطالعه Derakhshan و همکاران (۲۰۱۳) گزارش شد<sup>۲۲</sup>.

### اثر دوز جاذب

تعدیل شده بدست آمد که بسیار نزدیک به  $R^2$  می‌باشد که گویای فیت شدن بسیار خوب مدل می‌باشد. پارامتر فقدان فیت شدن از نظر آماری با  $p\text{-value} = 0/654$  معنادار بدست نیامد که شرط اول عدم فیت شدن مدل رد می‌شود و نشان می‌دهد که مدل به خوبی فیت شده است. تست کفایت مدل برازش شده همچنین از طریق نمودارهای توزیع مقادیر باقی مانده مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که مقادیر باقی مانده بر روی خط و یا در نزدیکی خط قرار گرفته اند و با نزدیک شدن به قسمت مرکزی خط درصد مقادیر باقی مانده افزایش می‌یابد. این نوع پراکنندگی گویای توزیع نرمال مقادیر باقی مانده می‌باشد. نتایج مقادیر باقی مانده را در برابر مقادیر پیش بینی شده نشان می‌دهد. همانطور که مشاهده می‌شود تقریباً نیمی از باقی مانده‌ها بالا و نیمی دیگر در پایین خط قرار دارند. این توزیع نشان می‌دهد که میانگین این مقادیر نزدیک به صفر می‌باشد و تغییرات مقادیر باقی مانده از روند خاصی پیروی نمی‌کند و کفایت مدل را تایید می‌کند. نتایج برازش مدل ANN بر دیتا آزمایشگاهی نشان داد که این مدل به خوبی بر دیتا آموزش ( $R^2 = 0/9999$ )، اعتبار سنجی ( $R^2 = 0/9954$ )، آزمون ( $R^2 = 0/9888$ )، و کل ( $R^2 = 0/9974$ )، فیت می‌شود. مقدار MSE برای مدل  $0/0083$  بدست آمد که نشان دهنده خطای بسیار کم و اعتبار مدل می‌باشد. مقایسه مقادیر  $R^2$  نشان می‌دهد که دو مدل ANN و RSM-CCD دارای دقت و اعتبار بسیار بالایی در مدل سازی و تعیین ارتباط متغیرهای ورودی و راندمان حذف می‌باشند. بهینه سازی متغیرهای ورودی با استفاده از دو روش RSM-CCD و ANN-GA نتایج مشابهی را نشان داد. این نتایج دقت هر دو روش را در بهینه سازی فرآیندهای تصفیه نشان می‌دهد. بنابراین می‌توان این روش‌ها را جهت بهینه سازی فرآیندهای تصفیه آب و فاضلاب گسترش داد.

### اثر متغیرهای ورودی به کارایی حذف MB توسط

که با افزایش غلظت آلاینده راندمان حذف کاهش و ظرفیت جذب افزایش می یابد<sup>۲۵</sup>.

### نتیجه گیری

در این مطالعه به بررسی کارایی پامیس در جذب MB از محلول آبی پرداخته شد. از روش های RSM-CCD و ANN-GA به منظور مطالعه، مدل سازی و بهینه سازی فرآیند جذب استفاده شد. نتایج نشان داد که هر دو روش مدل سازی دارای اعتبار و صحت بالایی در تعیین ارتباطات بین متغیرهای ورودی و راندمان حذف و دارای قابلیت بالای در پیش بینی مقادیر جذب می باشند. نتایج نشان داد که راندمان حذف با افزایش pH، افزایش می یابد. همچنین راندمان حذف با زمان تماس و دوز جذب دارای ارتباط مستقیم می باشند. در مقابل افزایش غلظت آلاینده سبب کاهش راندمان حذف می شود. شرایط بهینه پیش بینی شده در این فرآیند به منظور دستیابی به بالاترین راندمان حذف در  $pH = 11$ ، زمان تماس = ۵۰ دقیقه، دوز جذب = ۱ گرم در لیتر و غلظت آلاینده = ۲۰ میلی گرم در لیتر بدست آمد. در نهایت می توان نتیجه گیری کرد که دو روش RSM-CCD و ANN-GA دارای قابلیت بالایی در تعیین ارتباطات و مدل سازی اثر پارامترهای ورودی بر کارایی جذب می باشند. همچنین می توان از پامیس بعنوان جاذب ارزان قیمت و در دسترس جهت استفاده در فرآیندهای جذب بهره برد.

### سپاسگزاری

بدینوسیله از آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشگاه علوم پزشکی همدان تشکر و قدردانی بعمل می آید.

### References

1. Sharifpour E, Ghaedi M, Nasiri Azad F, et al. Zinc oxide nanorod-loaded activated carbon for ultrasound-assisted

نتایج نشان داد که ارتباط مستقیمی بین دوز جاذب و راندمان حذف وجود دارد بطوریکه با افزایش دوز جاذب، راندمان حذف افزایش یافت. این نتایج را می توان به این شکل تفسیر کرد که در غلظت های بالای جاذب، بدلیل افزایش سطح قابل دسترس برای جذب، راندمان جذب افزایش پیدا می کند درحالی که در غلظت های پایین، سطح جاذب بسرعت با مولکول های آلاینده اشباع میشود و باعث کاهش میزان جذب می گردد. این در حالیست که میزان ظرفیت جذب نسبت به واحد جرم جاذب در غلظت های پایین نسبت به غلظت های بالاتر افزایش پیدا می کند که می توان این افزایش را به افزایش احتمال تعداد برخورد آلاینده به ازای واحد جرم جاذب در دوزهای پایین جاذب نسبت داد<sup>۳۳</sup>.

### اثر غلظت آلاینده

نتایج نشان داد که با افزایش غلظت آلاینده راندمان افزایش و ظرفیت جذب کاهش می یابد. این نتیجه پر واضح می باشد چراکه با ثابت بودن جاذب و افزایش غلظت آلاینده، سطح در دسترس کاهش می یابد و منجر به کاهش راندمان حذف می گردد. این درحالیست که بعلاوه افزایش احتمال برخورد آلاینده در غلظت های بالا با سطح جاذب میزان ظرفیت جذب افزایش پیدا می کند. این واقعیت بدین صورت قابل تفسیر است که با افزایش غلظت MB، نیروی محرک انتقال جرم و بنابراین سرعت عبور مولکول های MB از محلول به طرف لایه مایع احاطه کننده جاذب و نهایتاً به طرف سطح ذرات جاذب افزایش میابد. بنابراین با افزایش غلظت آلاینده مقدار جذب به ازای واحد جرم جاذب روند افزایشی دارد<sup>۲۴</sup>. در مطالعه ای که Wu و همکاران در خصوص حذف ۲ و ۴ دی کلروفلنل توسط بیومس قارچ کرایزوسپوریوم انجام دادند، مشاهده شد

adsorption of saffranin O: Central composite design and genetic algorithm optimization. Appl Organomet Chem 2018;32(2):4099.

2. Huang T, Yan M, He K, et al. Efficient removal of methylene blue from aqueous solutions using magnetic graphene oxide modified zeolite. *J Colloid Interface Sci* 2019;543:43-51.
3. Gao H, Zhao S, Cheng X, et al. Removal of anionic azo dyes from aqueous solution using magnetic polymer multi-wall carbon nanotube nanocomposite as adsorbent. *Chem Eng J* 2013;223:84-90.
4. Mikac L, Marić I, Štefanić G, et al. Radiolytic synthesis of manganese oxides and their ability to decolorize methylene blue in aqueous solutions. *Appl Surf Sci* 2019;476:1086-95.
5. Chan YJ, Chong MF, Law CL, et al. A review on anaerobic-aerobic treatment of industrial and municipal wastewater. *Chem Eng J* 2009;155(1-2):1-18.
6. Tuppurainen K, Asikainen A, Ruokojärvi P, et al. Perspectives on the formation of polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans during municipal solid waste (MSW) incineration and other combustion processes. *Acc Chem Res* 2003;36(9):652-8.
7. Daneshvar N, Khataee A. Removal of azo dye CI acid red 14 from contaminated water using Fenton, UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/Fe (II), UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/Fe (III) and UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/Fe (III)/oxalate processes: a comparative study. *J Environ Sci Heal A* 2006;41(3):315-28.
8. Tyagi VK, Lo S-L. Application of physico-chemical pretreatment methods to enhance the sludge disintegration and subsequent anaerobic digestion: an up to date review. *Rev Environ Sci Biotechnol* 2011;10(3):215.
9. Ranjan D, Talat M, Hasan S. Biosorption of arsenic from aqueous solution using agricultural residue 'rice polish'. *J Hazard Mater* 2009;166(2-3):1050-9.
10. Sulaymon AH, Mohammed AA, Al-Musawi TJ. Removal of lead, cadmium, copper, and arsenic ions using biosorption: equilibrium and kinetic studies. *Desalin Water Treat* 2013;51(22-24):4424-34.
11. Sepehr MN, Allani F, Zarrabi M, et al. Dataset for adsorptive removal of tetracycline (TC) from aqueous solution via natural light weight expanded clay aggregate (LECA) and LECA coated with manganese oxide nanoparticles in the presence of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. *Data Brief* 2019;22:676-86.
12. Mansourian N, Javedan G, Darvishmotevalli M, et al. Efficiency evaluation of zeolite powder, as an adsorbent for the removal of nickel and chromium from aqueous solution: isotherm and kinetic study. *J Chem Technol Biotechnol* 2016;8(2):13891-907.
13. Zazouli MA, Balarak D, Mahdavi Y, et al. Adsorption rate of 198 reactive red dye from aqueous solutions by using activated red mud. *Iran J Med Sci* 2013;1(1):36-43 [In persian].
14. Samarghandi MR, Tarlaniazar M, Mehranpoor R, et al. Survey the Efficiency of Iron-Coated pumice in Fluoride Removal from Aqueous Solutions. *J Environ Health Sci* 2015;2(2):128-40 [In persian].
15. Kitis M, Kaplan S, Karakaya E, et al. Adsorption of natural organic matter from waters by iron coated pumice. *Chemosphere* 2007;66(1):130-8.
16. Mohammadi H, Alinejad A, Khajeh M, et al. Optimization of the 3D electro-Fenton process in removal of acid orange 10 from aqueous solutions by response surface methodology. *J Chem Technol Biotechnol* 2019;94(10):3158-71.
17. Osouledini N, Heydari M, Motevalli MD, et al. Application of artificial neural networks and response surface methodology for analysis of malachite green removal from aqueous solution using phosphoric acid-modified pumice powder: kinetic and isotherm studies. *Desalin Water Treat* 2020;178:296-311.
18. Shokoohi R, Salari M, Safari R, et al. Modelling and optimisation of catalytic ozonation process assisted by ZrO<sub>2</sub>-pumice/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> in the degradation of Rhodamine B dye from aqueous environment. *Int J Environ Anal Chem* 2020:1-25.
19. Darvishmotevallia M, Salarib M, Moradniaa M, et al. Evaluation of magnetic ZSM-5 composite performance in 2, 4 dichlorophenol removal from synthetic solutions: response surface method (RSM) modeling and isotherm, kinetic and thermodynamic studies. *Desalin Water Treat* 2019;164:249-62.
20. Asgari G, Shabanloo A, Salari M, et al. Sonophotocatalytic treatment of AB113 dye and real textile wastewater using ZnO/persulfate: Modeling by response surface methodology and artificial neural network. *Environ Res* 2020:109367.
21. El Qada EN, Allen SJ, Walker GM. Adsorption of methylene blue onto activated carbon produced from steam activated bituminous coal: a study of equilibrium adsorption isotherm. *Chem Eng J* 2006;124(3):103-10.
22. Derakhshan Z, Baghapour MA, Ranjbar M, et al. Adsorption of methylene blue dye from aqueous solutions by modified pumice stone: kinetics and equilibrium studies. *Health Scope* 2013;2(3):136-44.
23. Sari A, Tuzen M. Equilibrium, thermodynamic and kinetic studies on aluminum biosorption from aqueous solution by brown algae (*Padina pavonica*) biomass. *J Hazard Mater* 2009;171(1-3):973-9.

24. Qadri S, Ganoë A, Haik Y. Removal and recovery of acridine orange from solutions by use of magnetic nanoparticles. *J Hazard Mater* 2009;169(13):318-23.
25. Wu J, Yu H-Q. Biosorption of 2, 4-dichlorophenol from aqueous solution by *Phanerochaete chrysosporium* biomass: Isotherms, kinetics and thermodynamics. *J Hazard Mater* 2006;137(1):498-508.

## Modeling and Optimization of Methylene Blue Adsorption from Aqueous Solution by Pumice Based on RSM-CCD and ANN-GA Methods

Ghorban Asgari<sup>1</sup>, Mohammad Darvishmotevalli<sup>2</sup>, Alireza Beheshti<sup>3</sup>, Mehdi Salari<sup>1\*</sup>

1. Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

2. Research Center for Health, Safety and Environment (RCHSE), Alborz University of Medical Sciences, Karaj, Iran

3. Department of Health, Safety and Environment (HSE), School of Public Health, Zanjan University of Medical Sciences, Zanjan, Iran

\*E-mail: msalari\_22@yahoo.com

Received: 3 Aug. 2020; Accepted: 7 Dec. 2020

### ABSTRACT

**Background:** The discharge of a large volume of colored wastewater into receiving water sources has caused widespread concern around the world. The aim of this study was to investigate the efficiency of pumice as an adsorbent in removing methylene blue (MB) from aqueous solution. The adsorption process was also modeled and optimized by the methods as follows: central composite design-central composite design (RSM-CCD) and artificial neural network-genetic algorithm (ANN-GA).

**Methods and Materials:** The independent variables in the study were included pH (3-11), contact time (10-50 minutes), adsorbent dose (0.1-2 g/L), and MB concentration (20-100 mg/l). The effect of these parameters on the efficiency of pumice in MB uptake was modeled and optimized by RSM-CCD and ANN-GA methods. A spectrophotometer at 620 nm was used to measure the residual MB concentration in solution.

**Results:** The results showed that the RSM-CCD method has the ability to develop a quadratic polynomial model with high validity ( $R^2 = 0.9997$ ) for the adsorption process. Similarly, the ANN-GA method fitted well with experimental data to develop a model with high validity ( $R^2 = 0.9978$ ). The results of optimization process by RSM-CCD and ANN-GA methods obtained the highest adsorption efficiency at pH = 11, contact time = 50 minutes, adsorbent dose = 1 g/L, and concentration MB = 20 mg/L. Adsorption efficiency shows a direct relationship with pH, contact time and adsorbent dose and inversely with contaminant concentration. The linear effect of pollutant concentration and adsorbent dose variables had the greatest effect on adsorption efficiency.

**Conclusion:** In this study, it was observed that pumice as a cheap and available adsorbent can be considered as a suitable choice for absorbing dye pollutants from aqueous media. RSM-CCD and ANN-GA methods can also be used to model and optimize adsorption processes.

**Keywords:** Methylene blue, Pumice, Adsorption, Aqueous solution