

بهینه‌سازی فرایند انعقاد در تصفیه آب آشامیدنی با استفاده از دانه بانه (*Pistacia atlantica*) به وسیله روش سطح پاسخ (RSM)

شهرام شریفی^{۱*}، مرتضی حسینی^۲ و حسن امینی‌راد^۳

چکیده

انعقاد یکی از مهم‌ترین فرایندها در تصفیه آب است. نگرانی روزافزون جهانی در مورد مسائل زیست‌محیطی، علاقه به تحقیق در مورد منعقدکننده‌های طبیعی را افزایش داده است. در حال حاضر ثابت شده است که منعقدکننده‌های طبیعی به دلیل در دسترس بودن، مقرون‌به‌صرفه بودن، ماهیت غیرسمی و زیست‌تخریب‌پذیر بودن، جایگزین خوبی برای منعقدکننده‌های شیمیایی هستند. در این مطالعه، پتانسیل، مناسب بودن، اثربخشی و کارایی دانه بانه به‌عنوان منعقدکننده طبیعی برای تصفیه آب با کدورت اولیه ۱۰۰ NTU بررسی شد. از طرف دیگر، روش سطح پاسخ (RSM) از نوع طراحی مرکب مرکزی (CCD) در ۵ سطح برای ارزیابی و بهینه‌سازی شرایط واکنش فرایند انعقاد-لخته‌سازی در تصفیه آب آشامیدنی به کار گرفته شد. از سه پارامتر غلظت منعقدکننده، pH و زمان تماس که از عوامل مهم و تأثیرگذار بر فرایند انعقاد-لخته‌سازی هستند، به‌عنوان متغیر در طراحی آزمایش استفاده شد. یک مدل چندجمله‌ای درجه دوم با مقدار $R^2=0/9654$ (ضریب تشخیص) به داده‌ها ارائه شد. آزمایش‌های صحت مدل، مطابقت خوب بین مقادیر واقعی و مقادیر پیش‌بینی شده را نشان داد. در تصفیه آب آشامیدنی حاصل از نتایج تجربی، کاهش قابل‌ملاحظه کدورت یعنی ۹۵/۱۳ درصد با غلظت ۹۰/۵۳ میلی‌گرم در لیتر، pH=۹/۹۷ و زمان تماس ۴۴/۸۶ دقیقه برای منعقدکننده بانه حاصل شد. با توجه به نتایج بهینه‌سازی، دانه بانه به‌عنوان منعقدکننده در تصفیه آب آشامیدنی پتانسیل بالایی را از خود به نمایش گذاشت.

واژه‌های کلیدی: منعقدکننده طبیعی، بانه، حذف کدورت، بهینه‌سازی، انعقاد، RSM.

ارجاع: شریفی ش. حسینی م. و امینی‌راد ح. ۱۴۰۰. بهینه‌سازی فرایند انعقاد در تصفیه آب آشامیدنی با استفاده از دانه بانه (*Pistacia atlantica*) به وسیله روش سطح پاسخ (RSM). مجله پژوهش آب ایران. ۴۳: ۴۴-۴۳.

۱- کارشناسی ارشد مهندسی شیمی، دانشگاه نوشیروانی بابل.

۲- دانشیار گروه مهندسی شیمی، دانشگاه نوشیروانی بابل.

۳- استادیار گروه مهندسی عمران، دانشگاه نوشیروانی بابل.

* نویسنده مسئول: shahram.shsh110@gmail.com

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۰۸/۰۲

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۱/۲۹

مقدمه

در سطح جهانی، آلودگی آب مسئله مهمی است که اثرات مضر آن بر محیط زیست و سلامت انسان نیاز به توجه جدی دارد (چنگ و همکاران، ۲۰۱۹؛ بلو و همکاران، ۲۰۱۷). در بسیاری از کشورهای در حال توسعه، دسترسی به آب تمیز و سالم یک مشکل اساسی است. طبق گزارش سازمان ملل، ۱/۱ میلیارد نفر هنوز منابع مناسب آب آشامیدنی در دسترس ندارند و این افراد در بین فقیرترین افراد جهان هستند. دلیل اصلی کیفیت پایین آب، معیشت ضعیف مردم و به تبع آن سلامتی ضعیف حاصل از آن است؛ زیرا ۸۰ درصد بیماری‌های کشورهای در حال توسعه مربوط به آب است (بود و همکاران، ۲۰۱۷). هم آب‌های سطحی و هم آب‌های زیرزمینی به‌طور مداوم میانگینی از منبع آب را برای تصفیه آب آشامیدنی فراهم می‌کنند (پرسیوال و همکاران، ۲۰۰۰). این منابع آب می‌توانند با میکروارگانیسم‌های بیماری‌زا، مواد جامد محلول و معلق، ذراتی که باعث تغییر در طعم، بو و رنگ آب می‌شوند و آب را برای مصرف مستقیم انسان ناامن می‌کنند، آلوده شوند. وجود چنین ناخالصی‌ها و آلودگی‌هایی باعث کاهش کیفیت آب می‌شود و باید به‌طور مؤثری از بین بروند (ندابیچنستر و نارسیا، ۱۹۹۸). انعقاد/لخته‌سازی به‌عنوان اولین مرحله در فرایندهای تصفیه آب، برای رفع کدورت آب که حاصل ذرات معلق و مواد کلوئیدی است، انجام می‌پذیرد. موادی که در این مرحله از تصفیه آب استفاده می‌شوند، می‌توانند منعقدکننده‌های غیرآلی، پلیمرهای آلی مصنوعی یا منعقدکننده‌هایی با منشأ طبیعی باشند. سولفات آلومینیوم (آلوم) یک ماده منعقدکننده رایج در سطح جهان است که در تصفیه آب مورد استفاده قرار می‌گیرد. علی‌رغم کارایی بالای آلوم در حذف کدورت، حجم لجن تولیدی آن پس از فرایند انعقاد زیاد است که همین مسئله باعث افزایش نگرانی‌ها نسبت به اثرات مضر زیست‌محیطی آن می‌شود. استفاده از پلیمرهای مصنوعی و وجود مونومرهای باقیمانده به دلیل مسمومیت عصبی و خاصیت سرطان‌زایی قوی، نامطلوب است (مالویاله و همکاران، ۱۹۸۴). با این حال، استفاده طولانی مدت از این مواد شیمیایی به‌عنوان منعقدکننده باعث آسیب جدی به سلامت انسان می‌شود؛ مانند آلوم که اختلالات سیستم عصبی خودمختار و مرکزی از جمله بیماری آلزایمر را سبب می‌شود (مارتین و همکاران، ۱۹۸۹). یکی از

راه‌حل‌های ممکن برای کاهش مشکلات موجود، استفاده از منعقدکننده‌های طبیعی است که از نظر اقتصادی مقرون به‌صرفه و همچنین سازگار با محیط زیست هستند (اکودا و همکاران، ۲۰۰۱؛ کاماچو و همکاران، ۲۰۱۷). استفاده از منعقدکننده‌های طبیعی قدمت بسیار زیادی دارد. از پلیمرهای طبیعی بیش از ۲۰۰۰ سال پیش در هند، آفریقا و چین به‌عنوان منعقدکننده و کمک‌منعقدکننده در حذف کدورت‌های بالای آب استفاده شده است که این منعقدکننده‌ها ممکن است از دانه‌ها، برگ‌ها و ریشه‌های گیاهان تولید شوند (کاوامورا، ۱۹۹۱). با توجه به موارد ذکرشده، استفاده از منعقدکننده‌های طبیعی بیش از پیش مورد توجه قرار گرفت. از جمله ویژگی‌های منعقدکننده‌های طبیعی می‌توان به تجزیه بیولوژیک، ایمن بودن برای سلامتی انسان و تولید لجن کمتر که ۲۰ تا ۳۰ درصد کمتر از آلوم است، اشاره کرد. علاوه بر این، توسعه منعقدکننده‌ها به استفاده از منابع تجدیدپذیر که برای پایداری فناوری‌های تصفیه نسبتاً ارزان هستند، یک امر ضروری است. با این حال مناطق روستایی کشورهای در حال توسعه در نقاط مختلف جهان که فاقد فناوری‌های نوین در امر تصفیه هستند، از منعقدکننده‌های طبیعی با منشأ گیاهی به‌عنوان منعقدکننده در تصفیه آب استفاده می‌کنند (اسرافازمان، ۲۰۱۱؛ دی سوزا و همکاران، ۲۰۱۴). در این تحقیق از دانه بانه (پسته کوهی) به‌عنوان یک منعقدکننده طبیعی استفاده شد. دانه‌های پسته وحشی (*Pistacia atlantica*) از گونه پسته هستند. گونه پسته در خانواده پسته‌ایان (*Anacardiaceae*) طبقه‌بندی می‌شود. پسته وحشی شامل ۳ زیرگونه است: کابولیکا (*Cabulica*)، کوردیکا (*Kurdica*) و موتیکا (*Mutica*). پسته وحشی یکی از گونه‌های اصلی است که در منطقه زاگرس با گونه‌های مختلف بلوط (*Quercus*) رشد می‌کنند. پسته وحشی ۶۰۰ تا ۳۰۰۰ متر بالاتر از سطح دریا رشد می‌کند (ثابتی، ۱۹۹۴). دانه‌ها از درخت بانه در کوه‌های زاگرس محل سکونت (شهرستان لردگان منطقه ریگ) به‌دست آمدند.

اهداف این مطالعه:

- (۱) کاهش سطح کدورت آب با استفاده از منعقدکننده طبیعی موجود؛
- (۲) بهینه‌سازی فرایند به‌وسیله روش سطح پاسخ (RSM) از نوع طراحی مرکب مرکزی (CCD) است.

مواد و روش‌ها

مشخصات فیزیکی و شیمیایی آب با کدورت سنتز شده در جدول ۱ داده شده است.

فعال کردن عامل انعقادی دانه بانه

دانه‌های بانه که به صورت محلی به دست آمدند، به آزمایشگاه منتقل شدند. سپس به روش دستی پوسته بیرونی و سخت آن‌ها جدا شد و مغز دانه‌های جدا شده درون هاون چینی آسیاب شدند و پس از آن با استفاده از

همزن خانگی (Bosch) به طور یکدست و یکنواخت آسیاب شدند. ۵ گرم دانه آسیاب شده در ۱ لیتر NaCl ۰/۵ مولار ریخته شد. محلول با استفاده از همزن مکانیکی (ES Overhead Stirrer Velp) به مدت ۱۰ دقیقه با سرعت ۵۰۰ دور بر دقیقه برای به دست آوردن عصاره، هم زده شد و از عصاره فیلتر شده با کاغذ صافی ضخیم به عنوان منعقدکننده با غلظت‌های مختلف برای انجام آزمایش انعقاد استفاده شد.

جدول ۱- مشخصات فیزیکی و شیمیایی آب با کدورت سنتز شده

شماره	پارامترها	مقادیر	واحد	دستگاه اندازه‌گیری
۱	کدورت	۱۰۰	NTU	HANNA HI93703
۲	PH	۷/۳		HANNA pH meter 211
۳	دما	۲۴/۱-۲۵	°C	Tel-Tru Thermometer, Rochester, NY USA
۴	اکسیژن محلول	۶/۳	mg/l	HANNA HI-9142
۵	هدایت الکتریکی	۴۸۹	µs/cm	Hach HQ40D
۶	آهن	۰/۷۴	mg/l	HANNA HI83200
۷	فلوراید	۰/۴۵	mg/l	HANNA HI83200
۸	کلراید	۰/۴۲	mg/l	HANNA HI83200
۹	TSS	۱۳۴۹	mg/l	اندازه‌گیری با کاغذ صافی
۱۰	TDS	۲۳۱	mg/l	Hach HQ40D

تهیه فاضلاب سنتزی کائولین

در این مطالعه کدورت آب سنتزی با افزودن سوسپانسیون کائولین استوک به آب شیر برای تمام آزمایش‌های انعقادی تهیه شد. سوسپانسیون کائولین موجود با حل کردن ۱۰ گرم پودر کائولین در ۱ لیتر آب مقطر حاصل شد. سوسپانسیون به آرامی با سرعت ۲۰ دور در دقیقه به مدت ۱ ساعت هم زده شد تا پراکندگی یکنواخت ذرات کائولین ایجاد شود. سپس به مدت ۲۴ ساعت در دمای اتاق نگهداری شد تا هیدراسیون کامل کائولین حاصل شود. این سوسپانسیون به عنوان یک محلول استوک برای تهیه نمونه‌های آب با کدورت مورد نظر برای آزمایش‌های انعقادی استفاده شد. pH آب با کدورت سنتزی اولیه با NaOH ۱ مولار و HCl ۱ مولار تنظیم شد.

آزمایش انعقاد

آزمایش جار برای ارزیابی عملکرد عصاره بانه به عنوان ماده منعقدکننده بر اساس روش‌های استاندارد انجام شد. شش بشر ۶۰۰ میلی‌لیتری با ۳۰۰ میلی‌لیتر آب با کدورت

۱۰۰ NTU پر شدند و در مکان‌های مشخص از دستگاه جارتست (مدل JLT6 Velp) که هرکدام به یک روشن‌کننده مجهز بود، قرار داده شدند. غلظت‌های مختلفی از عصاره دانه‌ها به هر بشر اضافه شد و به مدت ۴ دقیقه با سرعت ۱۰۰ دور در دقیقه به منظور اختلاط سریع هم زده شدند. بعد از آن سرعت اختلاط به ۴۰ دور در دقیقه به مدت ۲۵ دقیقه کاهش یافت (اختلاط آرام). سپس همه بشرها به مدت ۳۰ دقیقه (مدت زمان استاندارد زمان ته‌نشینی) برای انجام فرایند ته‌نشینی لخته‌های تشکیل شده کنار گذاشته شدند. بعد از سپری شدن مدت زمان مذکور، نمونه‌های زلال و شفاف شده از بالای بشر (سوپرناتانت) به وسیله پی‌پت برداشته شد. سپس کدورت هر نمونه شفاف شده با استفاده از کدورت‌سنج HANNA HI93703 اندازه‌گیری شد. پارامترهای غلظت منعقدکننده، pH و زمان تماس (زمان اختلاط) به عنوان متغیر با مقادیر مختلف درجهت بهینه‌سازی آزمایش انتخاب شدند که برای این امر از نرم‌افزار Design Expert 11 (Stat soft, USA) روش سطح پاسخ (RSM) از نوع طراحی مرکب مرکزی (CCD) استفاده شد. همه

نتایج و بحث

بررسی حذف کدورت

ماتریس طراحی متغیرهای مستقل همراه با درصد حذف کدورت به دست آمده در جدول ۲ آمده است. با استفاده از آزمون F، عدم تطابق (پراکندگی داده‌ها) در اطراف مدل برازش شده مورد بررسی قرار گرفت.

آزمایشات حداقل دو بار برای اطمینان از صحت نتایج تکرار و به صورت میانگین بیان شدند. درصد حذف کدورت با استفاده از معادله زیر به دست آمد:

$$(1) \quad \text{درصد حذف کدورت} = \frac{\text{کدورت نهایی} - \text{کدورت اولیه}}{\text{کدورت اولیه}} \times 100$$

جدول ۲- مجموعه آزمایش‌های مختلف طراحی شده به وسیله CCD همراه با پاسخ حذف کدورت

آزمایش	متغیر ۱	متغیر ۲	متغیر ۳	حذف کدورت (%)	
				پیش‌بینی شده	باقی مانده
۱	غلظت A: (mg/l)	B: pH	زمان تماس C: (min)	۹۰/۵۳۹	۹۵/۱۳
۲	۹۰/۵۳۹	۴/۰۲۶	۱۵/۱۳۴	۷۲/۷۱	۷۳/۳۹
۳	۲۰/۴۶	۹/۹۷۳	۱۵/۱۳۴	۸۷/۴۱	۸۸/۴۵
۴	۱۵۰	۷	۳۰	۸۹/۰۳	۸۸/۶۷
۵	۲۵۰	۷	۳۰	۸۷/۳۱	۸۷/۹۸
۶	۹۰/۵۳۹	۴/۰۲۶۹	۴۴/۸۶۵	۷۰/۶۰	۶۹/۸۷
۷	۱۵۰	۲	۳۰	۷۰/۴۳	۷۰/۶۲
۸	۱۵۰	۷	۳۰	۸۹/۰۳	۸۶/۴۱
۹	۱۵۰	۱۲	۳۰	۹۴/۱۸	۹۳/۹۶
۱۰	۱۵۰	۷	۵	۸۵/۸۵	۸۴/۸۰
۱۱	۱۵۰	۷	۳۰	۸۹/۰۳	۹۱/۸۱
۱۲	۱۵۰	۷	۳۰	۸۹/۰۳	۹۱/۰۷
۱۳	۹۰/۵۳۹	۹/۹۷۳	۱۵/۱۳۴	۹۲/۹۹	۹۳/۸۲
۱۴	۱۵۰	۷	۳۰	۸۹/۰۳	۸۹/۸۶
۱۵	۲۰/۴۶	۴/۰۲۶	۴۴/۸۶۵	۸۴/۴۰	۸۴/۱۷
۱۶	۲۰/۴۶	۴/۰۲۶	۱۵/۱۳۴	۸۰/۹۵	۸۰/۱۵
۱۷	۱۵۰	۷	۵۵	۸۹/۳۸	۸۹/۵۵
۱۸	۵۰	۷	۳۰	۸۰/۱۵	۷۸/۶۴
۱۹	۱۵۰	۷	۳۰	۸۹/۰۳	۸۶/۵۲
۲۰	۲۰/۴۶	۹/۹۷۳	۴۴/۸۶۵	۹۳/۴۰	۹۲/۸۱

آنالیز ANOVA

است که بر روی پاسخ تأثیر قابل توجهی دارند. با توجه به مقدار p-value متغیرها در جدول می‌توان گفت که تأثیر دو متغیر pH و غلظت منعقدکننده بر روی فرایند انعقاد بیشتر از متغیر زمان تماس است.

برازش داده‌ها به مدل‌های مختلف و آنالیز ANOVA نشان داد که فرایند حذف کدورت با مناسب‌ترین مدل، یعنی چندجمله‌ای درجه دوم به خوبی توصیف شده است. معادله مدل از نظر فاکتورهای رمزگذاری شده به شرح زیر است:

$$(2) \quad \begin{aligned} \text{حذف کدورت} &= 89.03 + 2/13A + 7/46B \\ &- 1/04C - 3/59AB \\ &+ 1/32AC - 1/87A^2 \\ &- 2/33B^2 \end{aligned}$$

که در آن A غلظت منعقدکننده، B بیانگر pH و C زمان تماس است.

آنالیز ANOVA برای مدل در جدول ۳ نشان داده شده است. معنادار نبودن مقدار Lack of Fit (عدم تناسب)، مقدار F مدل (۳۱/۰۵)، مقدار P کمتر از ۰/۰۰۰۱ و ضریب تشخیص ($R^2=0.9654$) مناسب بودن و معنادار بودن مدل را برای بیان رابطه واقعی بین پارامترها نشان داد. بر اساس تعریف نرم‌افزار، مقدار p-value کمتر از ۰/۰۵ قابل قبول هستند. این مقدار برای تأثیرگذاری عامل بر روی پاسخ تا ۰/۱ قابل تحمل یا قابل اغماض است؛ به همین دلیل عامل BC و C^2 چون مقدار p-value آن‌ها از ۰/۱ بیشتر است، برای ادامه روند از مدل حذف شدند. p-value‌های هر کدام از متغیرها که کمتر از ۰/۰۵ و مقدار قابل تحمل است، نشان‌دهنده این

جدول ۳- نتایج ANOVA برای مدل حذف کدورت توسط فرایند انعقاد-لخته‌سازی

منبع	مجموع مربعات	درجه آزادی	میانگین مربعات	مقدار F	مقدار P
مدل	۱۰۶۹/۰۹	۹	۱۱۸/۷۹	۳۱/۰۵	< ۰/۰۰۰۱
غلظت A-	۶۱/۹۱	۱	۶۱/۹۱	۱۶/۱۹	۰/۰۰۲۴
B-pH	۷۶۰/۰۷	۱	۷۶۰/۰۷	۱۹۸/۷۱	< ۰/۰۰۰۱
زمان تماس C-	۱۴/۶۸	۱	۱۴/۶۸	۳/۸۴	۰/۰۷۸۶
AB	۱۰۳/۳۲	۱	۱۰۳/۳۲	۲۷/۰۱	< ۰/۰۰۰۴
AC	۱۴/۰۲	۱	۱۴/۰۲	۳/۶۶	۰/۰۸۴۶
BC	۳/۳۴	۱	۳/۳۴	۰/۸۷۳۵	۰/۳۷۲۰
A ²	۵۰/۵۱	۱	۵۰/۵۱	۱۳/۲۰	۰/۰۰۴۶
B ²	۷۱/۸۴	۱	۷۱/۸۴	۱۸/۷۸	۰/۰۰۱۵
C ²	۳/۶۸	۱	۳/۶۸	۰/۹۶۳۲	۰/۳۴۹۵
باقی‌مانده	۳۸/۲۵	۱۰	۳/۸۳		
عدم‌برازش	۱۲/۳۸	۵	۲/۴۸	۰/۴۷۸۷	۰/۷۸۱۰
خطای خام	۲۵/۸۷	۵	۵/۱۷		
کل	۱۱۰۷/۳۵	۱۹			

منعقدکننده‌های آلی، چگالی بار گالاکتورونیک اسید که دارای گروه کربوکسیلیک اسید ضعیفی است و به زنجیره پلیمری متصل است، وابسته به pH است (بولتو و گرگوری، ۲۰۰۷). گروه کربوکسیل موسیلاژ آنیونی با افزایش pH مستعد یونیزاسیون است. در نتیجه واپیچی و کشش زنجیره پلیمری به دلیل افزایش دافعه‌های الکترواستاتیک درون مولکولی ناشی از یونیزاسیون گروه اسیدی افزایش می‌یابد (یو و سوماسوداران، ۱۹۹۶). در pH بالاتر از ۹، موسیلاژ آنیونی دانه گیاه بامیه بیشتر از هم جدا می‌شوند تا به شکل مسطح و آویزان درآیند که این امر برای افزایش انعقاد مفید است. دلیل آن است که مقدار بیشتری از فضاهای خالی در زنجیره پلیمری برای بهبود پل‌زدن ذرات کلئیدی در دسترس قرار می‌گیرد (وولف و همکاران، ۱۹۷۷). همان‌طور که در شکل ۱ ملاحظه می‌شود، نمودار سه‌بعدی تأثیر متقابل غلظت منعقدکننده و pH نشان می‌دهد که با افزایش pH، مقدار حذف کدورت افزایش پیدا می‌کند و متناسب با افزایش pH با افزایش مقدار غلظت منعقدکننده مقدار حذف کدورت نیز افزایش می‌یابد. با افزایش دوز از ۱۵۰ به ۲۵۰ میلی‌گرم بر لیتر در pH برابر ۷ مقدار حذف کدورت از ۹۱/۸۱ به ۸۷/۹۸ کاهش یافت. مقادیر بیش از حد غلظت به دلیل برگشت بار می‌تواند کدورت را تثبیت کند؛ بنابراین تعیین دوز بهینه علاوه بر افزایش مقدار حذف می‌تواند باعث کم‌شدن هزینه و کاهش حجم لجن در فرایند تصفیه شود (جنگ کورن، ۲۰۱۱).

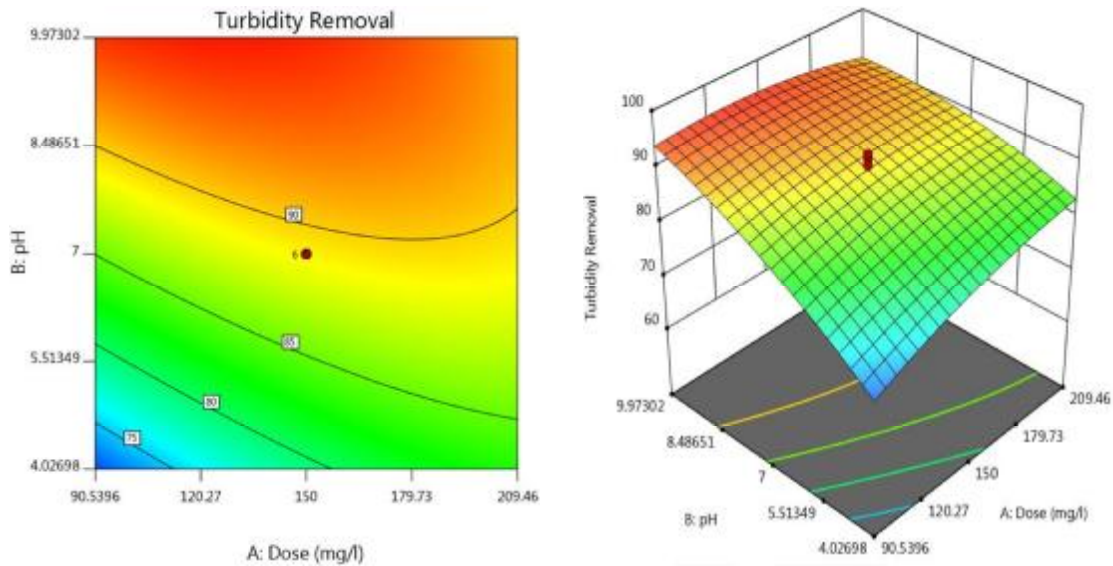
تأثیر متقابل متغیرها در فرایند حذف کدورت

کارایی حذف کدورت به‌عنوان پاسخ، سطوح پاسخ مدل درجه دوم با یک متغیر که در سطح مطلوب (مقدار بهینه) نگه داشته می‌شود و دو متغیر دیگر با مقادیر و محدوده تعیین شده برای طراحی آزمایش هستند در شکل ۱ و ۲ نشان داده شده است. به‌وضوح پیداست که آنچه در سطوح پاسخ نشان داده شده است، بیان‌کننده این موضوع است که شرایط بهینه دقیقاً در محدوده مقادیر متغیرهای طراحی آزمایش قرار داشت؛ به‌عبارت‌دیگر، اثرات متقابل مهمی بر روی کدورت بین غلظت منعقدکننده، pH و همچنین زمان تماس و غلظت منعقدکننده وجود دارد.

تأثیر متقابل دو متغیر غلظت منعقدکننده و pH

بررسی حذف کدورت

غلظت منعقدکننده و pH دو فاکتور مهم در مکانیسم انعقاد هستند. pH می‌تواند به‌طور قابل‌توجهی کارایی فرایند انعقاد را افزایش دهد، زیرا pH ماهیت الکتروشیمیایی حلال و پلیمرهای یونی مورد استفاده را تغییر می‌دهد (سوماسوداران و همکاران، ۲۰۰۵). منعقدکننده‌هایی که باز مصرف می‌کنند، ممکن است شروع به کاهش قلیائیت و مقدار pH کنند (مانند منعقدکننده‌های مبتنی بر آهن و آلومینیوم)، حاصل، بستگی به دوز ماده منعقدکننده دارد؛ بنابراین این مقدار pH باید برای هر دوز منعقدکننده مورد آزمایش قرار گیرد (ناسرادسکا و همکاران، ۲۰۱۹). در برخی از

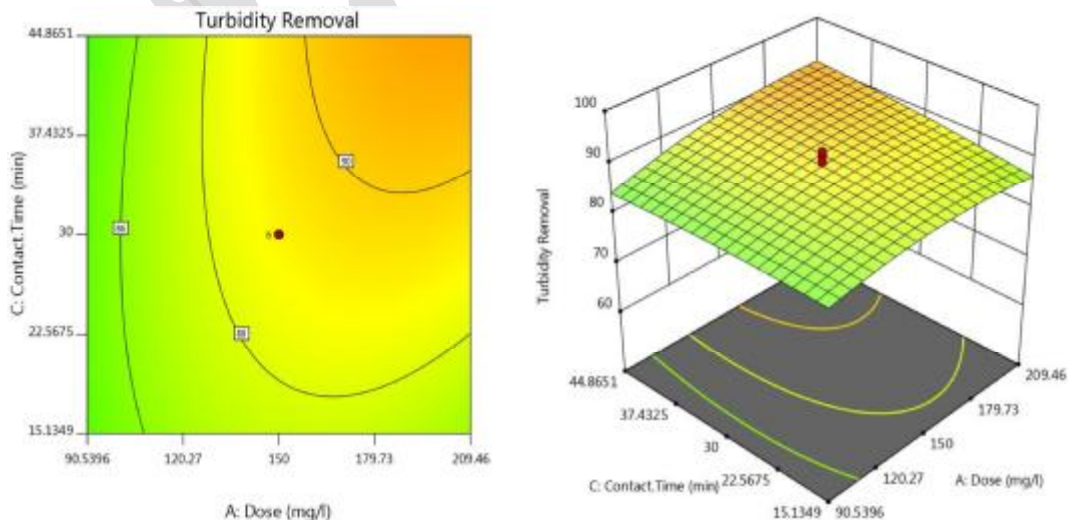


شکل ۱- نمودار کانتور و سه‌بعدی تأثیر متقابل متغیرهای غلظت منعقدکننده و pH بر روی پاسخ حذف کدورت

داشت تا اینکه به مقدار بهینه غلظت برسد. افزایش مقدار منعقدکننده بالاتر از ۲۱۰ میلی‌گرم بر لیتر در زمان‌های مختلف تأثیر چشمگیری بر حذف کدورت نداشت؛ بنابراین انتخاب مقدار کم ماده منعقدکننده (۹۰ تا ۱۵۰ میلی‌گرم در لیتر) و در نتیجه حذف درصد بالای کدورت، ترجیح داده می‌شود. غلظت مورد نیاز منعقدکننده به غلظت اولیه کدورت بستگی دارد. از مصرف بیش از حد ماده منعقدکننده باید اجتناب شود، زیرا باعث می‌شود ذرات تجمع پیدا کرده مجدداً پراکنده شوند و ته‌نشینی ذرات را مختل کند (میشر و باجپای، ۲۰۰۵).

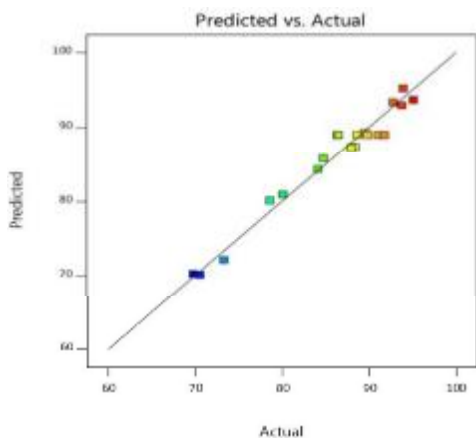
تأثیر متقابل دو متغیر غلظت منعقدکننده و زمان تماس بر روی حذف کدورت

همان‌طور که در شکل ۲ نشان داده شده است، در pH برابر ۷ و غلظت ثابت ۱۵۰ میلی‌گرم بر لیتر با افزایش زمان تماس از ۵ دقیقه به ۳۰ دقیقه مقدار حذف کدورت به ترتیب زمان تماس ۸۴/۸۰ و ۸۶/۴۱ به دست آمد که بیان‌کننده این مطلب است که تغییر در مقدار زمان تماس در مقایسه با غلظت منعقدکننده و pH تأثیر قابل توجهی بر حذف کدورت آب نمی‌گذارد؛ همان‌گونه که در بررسی آنالیز ANOVA مشخص شد (روی و داود، ۲۰۱۲)؛ اما با افزایش مقدار غلظت منعقدکننده، مقدار حذف نیز افزایش

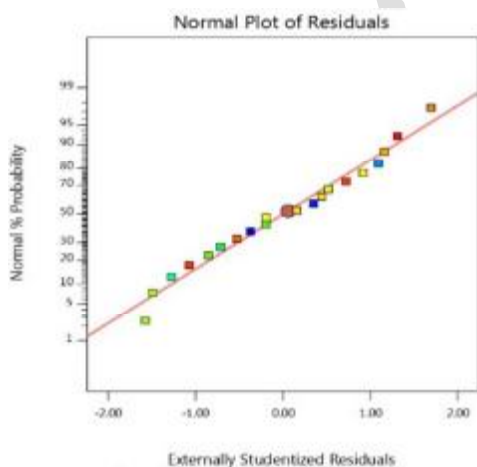


شکل ۲- نمودار کانتور و سه‌بعدی تأثیر متقابل متغیرهای pH و زمان تماس بر روی پاسخ حذف کدورت

پل زدن بین ذرات در آب باعث ایجاد لخته می‌شوند. عصاره دانه نیرمالی حاوی گروه‌های OH - و COOH - آزاد هستند که باعث افزایش کارایی انعقاد می‌شوند (تریپاتی و همکاران، ۱۹۷۶).



شکل ۳- نمودار پراکندگی مقادیر واقعی به مقادیر پیش‌بینی شده برای پاسخ حذف کدورت



شکل ۴- پراکندگی نرمال باقی‌مانده داده‌ها برای پاسخ حذف کدورت

بنه سرشار از پروتئین و از آمینواسیدهای بالایی برخوردار است (وانگ و همکاران، ۲۰۰۰). طیف FTIR عصاره بنه در شکل ۵ نشان داده شده است. جایی که پیک‌های شدید در 1702 ، 1622 ، و 1446 مشاهده شد. در پیک 3421 cm^{-1} می‌توان تشخیص داد که تغییرات گروه COOH^- برای OH^- ، یعنی گروه هیدروکسیل است. پیک موجود در طول موج 1384 cm^{-1} مربوط به کشش C-N گروه آمین است (نارایانان و همکاران، ۲۰۰۸). باند 1702 cm^{-1} حاوی پیوند یگانه C-C است. پیک جذب در 1702

شکل ۳ نشان‌دهنده پراکندگی مقدار واقعی به مقادیر پیش‌بینی شده است که مقدار ضریب تشخیص $(R^2=0.9654)$ به دست آمده برازش مناسب مدل را نشان می‌دهد که دلالت بر تأثیرپذیری بالای مدل است (یعنی تأثیرگذاری ۹۶ درصدی عوامل مستقل به متغیر وابسته (پاسخ)) و فقط کمتر از ۴ درصد از تغییرات کلی نمی‌تواند توسط مدل توضیح داده شوند. در شکل ۴ پراکندگی نرمال باقی‌مانده نمایش داده شده است که نشان می‌دهد مدل فقط ۲ انحراف از حالت عادی دارد که بیان‌کننده مناسب بودن مدل است. مقدار عدم تناسب بیشتر از 0.05 معنادار نیست که نشان می‌دهد مدل معنادار است؛ بنابراین مدل به دست آمده می‌تواند در پیش‌بینی نظری متغیر وابسته (پاسخ) استفاده شود. هرچه داده‌ها خطی‌تر باشند، نشان‌دهنده نرمال بودن داده‌هاست. به طور کلی هرچه داده‌ها غیرخطی باشند، یعنی به صورت S شکل یا عمودی باشند، نیاز به تغییر تابع توانی (Transform) یا آزمایش مجدد دارند. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، داده‌ها برای پاسخ کدورت حول خط داخل نمودار به صورت خطی هستند که نشان از پراکندگی مناسب و نرمال دارند (بتیکو و آدسینا، ۲۰۱۳).

آنالیز FTIR

به طور کلی اکثر منعقدکننده‌های طبیعی براساس ترکیبات اصلی بر پایه فعالیت انعقادی به دو گروه پلی‌ساکاریدها و پروتئین‌ها تقسیم می‌شوند. پلی‌ساکاریدها مانند کیتوزان، نشاسته و موسیلاژ هستند؛ درحالی‌که برای منعقدکننده‌های طبیعی بر پایه پروتئین، معمولاً از گیاهان (مورینگا و...) استفاده می‌شود (چوی و همکاران، ۲۰۱۴؛ شمس‌نجاتی و همکاران، ۲۰۱۵). حضور گروه‌های عاملی هیدروکسیل و آمینو در این ترکیبات به قابلیت انعقاد کمک می‌کند. تعاملات باردار از جمله فعل و انفعالاتی است که بین پلیمر و حلال رخ می‌دهد این فعل و انفعالات در یک محیط محلول تا حدی به گروه‌های OH - متصل به زنجیره پلیمر وابسته است. این منعقدکننده‌ها معمولاً با دو مکانیسم جذب و خنثی‌سازی بار و فشردن لایه دابل باعث ایجاد انعقاد می‌شوند (آنگ و محمد، ۲۰۲۰؛ ویجیاقاوان، ۲۰۱۱).

بعضی منعقدکننده‌های طبیعی مانند دانه نیرمالی آنیون‌های پلی‌الکترولیتی هستند که با استفاده از مکانیسم

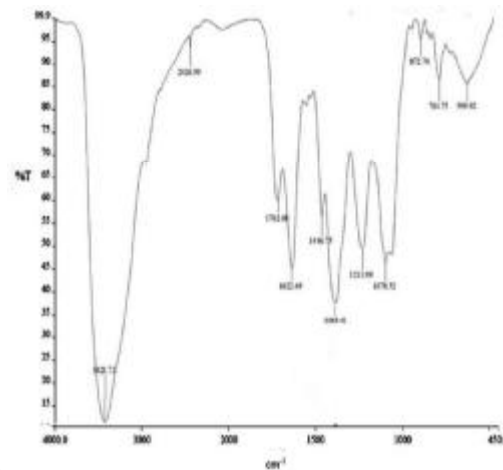
بهینه‌سازی

برای بهینه‌سازی، مقادیر هدف برای متغیرها و پاسخ (حذف کدورت) تعیین شد. به‌منظور بهینه‌یابی حذف کدورت، با توجه به هدف شرایطی تعیین کردیم، یعنی برای متغیرها همان مقدار تعیین‌شده برای طراحی آزمایش (in range) و برای پاسخ آزمایش به‌دلیل اینکه به‌دنبال بیشترین حذف بودیم، مقدار بیشینه (maximize) انتخاب شد که برحسب آن حد بالا و پایین و مطلوب هر یک از ویژگی‌ها، وزن و اهمیت آن‌ها تعیین شد (جدول ۴).

سپس با توجه به بهترین پاسخ پیشنهادشده مقادیر بهینه متغیرها مشخص شد (جدول ۵).

که با توجه به مقادیر بهینه متغیرها یعنی $pH=9/97302$ ، مقدار غلظت $147/561$ میلی‌گرم بر لیتر و زمان تماس $44/865$ دقیقه مقدار حذف کدورت با ۹۵ درصد تخمین و با میانگین ۳ بار تکرار آزمایش $96/24$ درصد حذف کدورت به‌دست آمد.

۳۴۲۱ مشاهده شده در عصاره، ناشی از ارتعاش کشش OH است. این پیک موجود در عصاره به گروه N-H از پروتئین اختصاص داده شد. باندهای IR در 1702 cm^{-1} و 1622 cm^{-1} مشخصه آمید نوع اول هستند، درحالی‌که نوار در 1515 cm^{-1} به مشخصه آمید نوع دوم است (شنی و همکاران، ۲۰۱۲).



شکل ۵- FTIR عصاره دانه بانه (صادقی و همکاران، ۲۰۱۵)

جدول ۴- پارامترهای بهینه‌یابی در حذف کدورت

نام	هدف	حد پایین	حد بالا	وزن	اهمیت
غلظت	در محدوده	۹۰/۵۳۹۶	۲۰۹/۴۶	۱	۳
pH	در محدوده	۴/۰۲۶۹۸	۹/۹۷۳۰۲	۱	۳
زمان تماس	در محدوده	۱۵/۱۳۴۹	۴۴/۸۶۵۱	۱	۳
حذف کدورت	بیشینه	۸۰	۱۰۰	۱	۳

جدول ۵- مقادیر بهینه به‌دست آمده برای متغیرها

زمان تماس	pH	غلظت منعقد کننده
۴۴/۸۶۵	۹/۹۷۳۰۲	۱۴۷/۵۶۱

نتیجه‌گیری

در این مطالعه اثر پارامترهای مختلف مانند pH و غلظت منعقدکننده و زمان تماس به‌عنوان متغیر برای بهینه‌سازی آزمایش به روش RSM از نوع CCD مورد بررسی قرار گرفت. مشاهده شد که متغیرهای pH و غلظت منعقدکننده تأثیر قابل‌توجهی بر روی فرایند انعقاد و لخته‌سازی دارند؛ درحالی‌که متغیر زمان تماس اثر کمتری بر روی حذف کدورت و روند آزمایش انعقاد داشت. همچنین مشاهده شد که استفاده از منعقدکننده طبیعی

بانه در حذف کدورت به‌وسیله فرایند انعقاد و لخته‌سازی بسیار مؤثر است؛ به‌طوری‌که در شرایط بهینه، یعنی $pH=9/97302$ ، مقدار غلظت $147/561$ میلی‌گرم بر لیتر و زمان تماس $44/865$ دقیقه، مقدار حذف کدورت $96/24$ درصد به‌دست آمد که مقدار قابل‌ملاحظه‌ای است. بدین ترتیب و با توجه به نتایج به‌دست‌آمده منعقدکننده طبیعی دانه بانه قابلیت رقابت با منعقدکننده‌های شیمیایی در جهت حذف کدورت از آب به‌وسیله فرایند انعقاد را دارا است.

منابع

- Cheng R. Kang M. Zhuang S. Wang S. Zheng X. Pan X. and Wang J. 2019. Removal of

13. Sabeti H. 1994. Forest, trees, and shrubs of Iran. 2nd edition, Iran University of Science and Technology Press. 514-579.
14. Somasundaran P. Runkana V. and Kapur P. 2005. Flocculation and dispersion of colloidal suspensions by polymers and surfactants: experimental and modeling studies. *Coagulation and flocculation*. 126: 767-803.
15. Naceradska J. Pivokonska L. and Pivokonsky M. 2019. On the importance of pH value in coagulation. *Journal of Water Supply: Research and Technology-Aqua*. 68(3): 222-230.
16. Bolto B. and Gregory J. 2007. Organic polyelectrolytes in water treatment. *Water research*. 41(11): 2301-2324.
17. Yu X. and Somasundaran P. 1996. Role of polymer conformation in interparticle-bridging dominated flocculation. *Journal of Colloid and Interface Science*. 177(2): 283-287.
18. Woolfe M. L. Chaplin M. F. and Otchere G. 1977. Studies on the mucilages extracted from okra fruits (*Hibiscus esculentus* L.) and baobab leaves (*Adansonia digitata* L.). *Journal of the Science of Food and Agriculture*. 28(6): 519-529.
19. Jangkorn S. Kuhakaew S. Theantanoo S. Klinla-Or H. and Sriwiriyarat T. 2011. Evaluation of reusing alum sludge for the coagulation of industrial wastewater containing mixed anionic surfactants. *Journal of Environmental Sciences*. 23(4): 587-594.
20. Rui, L.M. and Z. Daud, Coagulation-flocculation in leachate treatment using combination of pac with cationic and anionic polymers. 2012.
21. Mishra A. and Bajpai M. 2005. Flocculation behaviour of model textile wastewater treated with a food grade polysaccharide. *Journal of Hazardous Materials*. 118(1-3): 213-217.
22. Betiku E. and Adesina O. A. 2013. Statistical approach to the optimization of citric acid production using filamentous fungus *Aspergillus niger* grown on sweet potato starch hydrolyzate. *Biomass and Bioenergy*. 55: 350-354.
23. Choy S. Y. Prasad K. M. N. Wu T. Y. Raghunandan M. E. and Ramanan R. N. 2014. Utilization of plant-based natural coagulants as future alternatives towards sustainable water clarification. *Journal of Environmental Sciences*. 26(11): 2178-2189.
24. Shamsnejati S. Chaibakhsh N. Pendashteh A. R. and Hayeripour S. 2015. Mucilaginous seed of *Ocimum basilicum* as a natural bacteriophage f2 in water by Fe/Ni nanoparticles: Optimization of Fe/Ni ratio and influencing factors. *Science of the Total Environment*. 649: 995-1003.
2. Bello O. S. Lasisi B. M. Adigun O. J. and Ephraim V. 2017. Scavenging Rhodamine B dye using *Moringa oleifera* seed pod. *Chemical Speciation & Bioavailability*. 29(1): 120-134.
3. Abood, M.M., N.N.B. Azhari, and A.O. Abdelmoneim, The Use of Peanut and Sesame Seeds as Natural Coagulant in the Water Treatment. *Infrastructure University Kuala Lumpur Research Journal*, 2017. 5(1): p. 1-10.
4. Percival, S.L., J.T. Walker, and P.R. Hunter, Microbiological aspects of biofilms and drinking water. 2000: CRC press.
5. Ndabigengesere A. and Narasiah K. S. 1998. Quality of water treated by coagulation using *Moringa oleifera* seeds. *Water research*. 32(3): 781-791.
6. Mallevalle J. Bruchet A. and Fiessinger F. 1984. How safe are organic polymers in water treatment? *Journal-American Water Works Association*. 76(6): 87-93.
7. Martyn C. Osmond C. Edwardson J. Barker D. Harris E. and Lacey R. 1989. Geographical relation between Alzheimer's disease and aluminium in drinking water. *The Lancet*. 333(8629): 59-62.
8. Okuda T. Baes A. U. Nishijima W. and Okada M. 2001. Isolation and characterization of coagulant extracted from *Moringa oleifera* seed by salt solution. *Water research*. 35(2): 405-410
9. Camacho F. P. Sousa V. S. Bergamasco R. and Teixeira M. R. 2017. The use of *Moringa oleifera* as a natural coagulant in surface water treatment. *Chemical Engineering Journal*. 313: 226-237.
10. Kawamura S. 1991. Effectiveness of natural polyelectrolytes in water treatment. *Journal-American Water Works Association*. 83(10): 88-91.
11. Asrafuzzaman, M., A. Fakhruddin, and M. Hossain, Reduction of turbidity of water using locally available natural coagulants. *International Scholarly Research Notices*, 2011. 2011.
12. Souza M. T. F. Ambrosio E. de Almeida C. A. de Souza Freitas T. K. F. Santos L. B. de Cinque Almeida V. and Garcia J.C. 2014. The use of a natural coagulant (*Opuntia ficus-indica*) in the removal for organic materials of textile effluents. *Environmental monitoring and assessment*. 186(8): 5261-5271.

- coagulant for textile wastewater treatment. *Industrial Crops and Products*. 69: 40-47.
25. Ang W. L. and Mohammad A. W. 2020. State of the art and sustainability of natural coagulants in water and wastewater treatment. *Journal of Cleaner Production*: 121267.
26. Vijayaraghavan G. Sivakumar T. and Kumar A.V. 2011. Application of plant based coagulants for waste water treatment. *International Journal of Advanced Engineering Research and Studies*. 1(1): 88-92.
27. Tripathi, P., M. Chaudhuri, and S. Bokil, Nirmali seed--a naturally occurring coagulant. *Indian Journal of Environmental Health*, 1976. 18(4).
28. Wang X. and Bunkers G. J. 2000. Potent heterologous antifungal proteins from cheeseweed (*Malva parviflora*). *Biochemical and biophysical research communications*. 279(2): 669-673.
29. Narayanan K. B. and Sakthivel N. 2008. Coriander leaf mediated biosynthesis of gold nanoparticles. *Materials Letters*. 62(30): 4588-4590.
30. Shen D. Philip D. and Mathew J. 2012. Rapid green synthesis of palladium nanoparticles using the dried leaf of *Anacardium occidentale*. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*. 91: 35-38.
31. Sadeghi B. Rostami A. and Momeni S. 2015. Facile green synthesis of silver nanoparticles using seed aqueous extract of *Pistacia atlantica* and its antibacterial activity. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*. 134: 326-332.

Research paper

Optimization of coagulation process in drinking water treatment using *Pistacia atlantica* by response surface methodology (RSM)SH. Sharifi^{1*}, M. Hosseini² and H. Amini-Rad³**Extended Abstract**

Coagulation is one of the most important processes in water treatment. Water sources can be contaminated with pathogenic microorganisms, soluble and suspended solids, particles that change the taste, odor and color of water and make water unsafe for human consumption. Such impurities and contaminants which reduce water quality must be effectively removed. Coagulation- flocculation is performed as the first step in water treatment processes to remove turbidity from suspended solids and colloidal particles. The materials used in this stage of water treatment can be inorganic coagulants, synthetic organic polymers or coagulants of natural origin. Aluminum sulfate (alum) is a common coagulant used worldwide in water treatment. Despite the high efficiency of alum in removing turbidity, the volume of sludge produced after the coagulation process is high, that raises concerns about its harmful environmental effects. Apply of synthetic polymers and the presence of residual monomers is undesirable due to nerve toxicity and strong carcinogenicity. Therefore, the use of natural coagulants received more attention. In contrast to chemical coagulants, natural coagulants are safe, eco-friendly and generally toxic free. Natural coagulants have been found to generate not only a much smaller sludge volume (up to five times lower), but also a higher nutritional sludge value. As such, lower costs of sludge treatment and handling can make it a more sustainable. The raw plant extracts are often available locally and hence, a low cost alternative to chemical coagulants. Since natural coagulants do not consume alkalinity unlike alum, pH adjustments can be omitted that provides extra cost savings. Natural coagulants are also non-corrosive. In this study, *Pistacia atlantica* seeds were used as a natural coagulant. The seeds were obtained from coriander tree in the Zagros Mountains (Rig region, Lordegan province, Iran). Husks of the seeds were removed manually. This biomass was made coarse grind using a hand mill. Then, it came to fine grind by a Bosch electric mill. Afterward, 5 g/l of fine milled seeds was mixed with distilled water and stirred at 500 rpm, using electric stirrer for 10 min at room temperature. The filtered extract containing the active coagulant was then used in the coagulation process. Synthetic turbid water was prepared by adding kaolin to distilled water to gain a stock kaolin suspension for all coagulation experiments. The stock kaolin suspension was prepared by dissolving 10 g of kaolin powder in 1 L of distilled water. The suspension was stirred at 20 rpm for 1 h to achieve uniform dispersion of the kaolin particles. The suspension was then permitted to stand for 24 h to achieve a complete hydration of the kaolin. This suspension was used as a stock solution for the preparation of water samples of varying turbidity for the coagulations tests. Then, one molar solution of HCl and NaOH were added into the synthetic turbid water to adjust the pH value. The coagulation activity of *Pistacia*

1- Master of Chemical Engineering_ Biotechnology, Noshirvani University of Technology, Babol, Iran.

2- Associate Professor, Department of Chemical Engineering, Noshirvani University of Technology, Babol, Iran.

3- Assistant Professor of Chemical Engineering, Noshirvani University of Technology, Babol, Iran.

* Corresponding Author: shahram.shsh110@gmail.com

Received: 2021/04/18

Accepted: 2021/10/24

atlantica extract was determined by Jar test, during which 300 ml of Synthetic turbid water of different initial turbidities was poured into 600 ml beakers. *Pistacia atlantica* extracts with variable doses and densities were added to these beakers and mixed at 100 rpm for 4 min for rapid mixing using mechanical stirrer. The mixing speed was reduced to 40 rpm for another 25 min. The suspensions were then allowed to settle down. After 30 min of sedimentation, clarified samples from beakers were collected and their residual turbidities were measured using turbidity meter. The initial turbidity was studied 100 NTU and the solvent with 0.5 M NaCl were employed. All the experiments were repeated at least twice for consistency and results average. Moreover, the response surface methodology (RSM) of central composite design (CCD) was used at 5 levels to evaluate and optimize the reaction conditions of the coagulation-flocculation process in drinking water treatment. Three parameters of dose, pH and contact time, which are important and influential factors on the coagulation-flocculation process, were used as variables in the experimental design. A quadratic polynomials model with a value of $R^2 = 0.9654$ (correlation coefficient) was presented to the data. Model accuracy tests showed a good correlation between actual and predicted values. In the treatment of drinking water obtained from experimental results, a significant reduction in turbidity was obtained for *Pistacia atlantica* coagulant, i.e. 95.13% with the dose of 90.53 mg/l, pH = 9.97 and a contact time of 44.86 minutes. Consequently, *Pistacia atlantica* seed had high potential as a coagulant in drinking water treatment.

Keywords: coagulation, natural coagulant, optimization, *Pistacia atlantica*, RSM, turbidity removal.

Citation: Sharifi SH. Hosseini M. and Amini-Rad H. 2022. Optimization of coagulation process in drinking water treatment using *Pistacia atlantica* by response surface methodology (RSM). Iranian Water Research Journal.