



## بهینه‌سازی عوامل تاثیرگذار بر کارایی فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی / شناورسازی الکتروشیمیایی با الکترودهای ترکیبی (تیتانیوم-آلومینیم) در رنگبری رنگزای اسید سیاه ۱ از محیط‌های آبی

جمال مهرعلی پور<sup>۱</sup>، امیر شهبانلو<sup>۱</sup>، محمدرضا سمرقندی<sup>۲\*</sup>، حسن ذوالقدر<sup>۳</sup>

- ۱- دانشجوی کارشناسی ارشد، مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، ایران، صندوق پستی: ۴۱۷۱  
۲- دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط و عضو مرکز تحقیقات علوم بهداشتی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، ایران، صندوق پستی: ۴۱۷۱  
۳- کارشناسی مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، ایران، صندوق پستی: ۴۱۷۱  
تاریخ دریافت: ۹۲/۱۱/۲۰ تاریخ پذیرش: ۹۳/۴/۲۳ در دسترس به صورت الکترونیکی از: ۱۳۹۳/۱۲/۲۰

### چکیده

از روش‌های موفق در تصفیه پساب‌های رنگی می‌توان به فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی / شناورسازی الکتروشیمیایی اشاره نمود. این فرآیند با بهره‌گیری از جریان مستقیم الکتريکی (DC) و الکترودهای فلزی باعث حذف آلاینده‌ها می‌شود. هدف از این مطالعه بهینه‌سازی عوامل تاثیرگذار بر فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی / شناورسازی الکتروشیمیایی با الکترودهای ترکیبی تیتانیوم-آلومینیم در رنگبری رنگزای اسید سیاه ۱ از محیط‌های آبی بود. در این مطالعه از چهار الکتروده از جنس تیتانیوم و آلومینیم استفاده شد. با اعمال جریان الکتريکی در محدوده ۳۰-۱۰ ولت با کنترل آمپر، pH در محدوده ۵-۹ و غلظت اولیه رنگزا در محدوده ۵۰-۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر این مطالعه انجام گرفت. نتایج به دست آمده نشان داد بالاترین بازده حذف در pH برابر ۵، ولتاژ ۳۰ ولت و غلظت اولیه ۵۰ میلی‌گرم در لیتر رخ می‌دهد. بنابراین فرآیند مذکور توانایی بالایی برای حذف این رنگزا دارد. بازده فرآیند با تغییر پارامترهای مطالعه، کاهش پیدا می‌کند. واژه‌های کلیدی: بهینه‌سازی، فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی / شناورسازی الکتروشیمیایی، رنگزای اسید سیاه، حذف، محیط‌های آبی.

## Optimization of Affecting Parameters on Performance of the Electrocoagulation/Electroflotation Process by Combine Electrodes (Ti-Al) in Acid Black 1 Dye Decolonization in Aqueous

J. Mehralipour<sup>1</sup>, A. Shabanlo<sup>2</sup>, M. Samarghandi<sup>3</sup>, H. Zolghadr<sup>4</sup>

Department of Environmental Engineering, Hamadan University of Medical Sciences, P.O.Box: 4171, Hamadan, Iran  
Received: 09-02-2014 Accepted: 14-07-2014 Available online: 11-03-2015

### Abstract

The Electrocoagulation/Electroflotation process is one of the successful methods in dyes wastewater treatment. This process by direct current electrical and metal electrodes can be removal of contaminants. The aim of this study was optimization of affecting parameters in (EC/EFP) by titanium and aluminum electrodes for decolorization of Acid Black 1 (AB1) from aqueous. In this study was used of four titanium and aluminum electrodes. By applying an electric current in 10-30 V range with control of ampere, initial pH in 5- 9 range and initial concentration of dye in 50-500 mg/L range study was done. The results indicate when pH=5, voltage and initial concentration were 30 V and 50 mg/L respectively the high efficiency of decolorization by EC/EFP done. Therefor this process has a good ability in dye removal. Efficiency of process decreased by changing the parameters. Color Sci. Tech. 8(2015), 325-332©. Institute for Color Science and Technology.

**Keywords:** Optimization, Electrocoagulation/electroflotation process, Acid black, Removal, Aqueous.

## ۱- مقدمه

مطالعه بر روی روش‌های جدید و موثر بر تجزیه و حذف رنگ‌ها از پساب صنایع طی دو دهه اخیر به صورت چشمگیری افزایش یافته است. از این روش‌ها می‌توان به فرآیندهای فیزیکوشیمیایی، شیمیایی، فرآیند اکسیداسیون پیشرفته، تصفیه الکتروشیمیایی و تجزیه آنزیمی اشاره نمود [۱۶، ۱۵]. در زمینه فرآیندهای الکتروشیمیایی طی دهه اخیر مطالعات گسترده‌ای صورت گرفته است که شروع آن را می‌توان از سال ۲۰۰۲ دانست [۹، ۱۰]. تصفیه فیزیکی و شیمیایی به روش‌هایی همچون جذب، انعقاد با نمک‌های آهن و آلومینیم، جداسازی و تعویض یون اشاره نمود که از محدودیت‌های این روش‌ها می‌توان به دفع لجن در حجم زیاد و یا احیای جاذب و هزینه بالا اشاره نمود [۱۱]. از روش‌های شیمیایی قدرتمند می‌توان به ازن‌زنی ساده و کاتالیزوری، اکسیداسیون با یون هیپوکلریت، فرآیند معرف فنتون و مشتقات آن و سیستم‌های فوتوکاتالیزی اشاره نمود که عمده‌ترین محدودیت استفاده از این روش‌ها هزینه بالای راه‌اندازی و بهره‌برداری این سیستم‌ها می‌باشند [۱۸، ۱۷]. فرآیند الکتروکواگولاسیون<sup>۱۱</sup> (EC) به همراه فرآیند الکتروفلوتاسیون<sup>۱۲</sup> (EF) یکی از روش‌های الکتروشیمیایی پرکاربرد می‌باشند [۱۹]. این فرآیند بدون افزودن ماده منعقدکننده به محیط آبی، طی ۳ مرحله متوالی باعث حذف آلاینده می‌گردد: مرحله اول: تولید ماده منعقدکننده از طریق اکسیداسیون در آند فداشونده (که معمولاً از جنس آلومینیم یا آهن است)؛ مرحله دوم: ناپایداری سازی آلاینده‌ها؛ مرحله سوم: متراکم کردن فاز ناپایدار شده و تولید لخته [۲۰]. همچنین در این فرآیند در هر دو الکتروکواگولاسیون تولید می‌شود که سبب شناورسازی آلاینده‌های قابل شناورسازی (الکتروفلوتاسیون) می‌گردد و از این طریق میزان حذف بیشتری از آلاینده‌ها اتفاق می‌افتد [۲۱]. واکنش‌های اصلی این فرآیند در آند با الکترودهای آلومینیمی و کاتد با الکتروکواگولاسیون به شرح زیر است، واکنش ۱ و ۲ در آند، واکنش ۳ در کاتد و واکنش ۴ در راکتور EC رخ خواهد داد [۲۲]. ماده منعقدکننده آزاد شده در این فرآیند با حرف Al نمایش داده شده است.



فرآیند EC/EF مزایای خاصی دارد که عبارتست از: بازده بالا، شرایط بهره‌برداری وسیع و راحت، زمان راه‌اندازی سریع، اندازه کوچک تجهیزات، تولید لجن کم، عدم نیاز به افزودن ماده شیمیایی، آلودگی ثانویه کم، شناورسازی آلاینده‌ها با وزن مولکولی پایین و تحت تاثیر pH محیط نیست مگر در شرایط خیلی اسیدی یا خیلی قلیایی [۲۳].

11- Electrocoagulation (EC)

12- Electroflotation

آمار دقیقی از رنگ‌های آلی تولیدی در دنیا مشخص نیست با این حال آمارهای اقتصادی در سال ۲۰۰۸، میزان رنگ‌های تولیدی در جهان را  $2 \times 10^7$  تن و به ارزش ۱۱ میلیارد دلار برآورد نموده‌اند [۱]. مقدار زیادی از رنگ‌های تولیدی، در صنایع مختلف از جمله نساجی [۳، ۲]، صنایع غذایی [۴]، صنایع تولید کاغذ [۵]، محصولات کشاورزی [۶] سلول‌های فوتو الکتروشیمی [۷] و رنگ مو [۸] به کار برده می‌شوند همچنین در برخی موارد از رنگ‌های سنتتیک در تعیین میزان کارایی تصفیه خانه‌های پساب استفاده می‌شود [۹]. رنگ‌ها معمولاً براساس گروه کروموفور<sup>۱</sup> طبقه‌بندی می‌شوند. بزرگ‌ترین گروه رنگ‌ها که در کارهای صنعتی کاربرد بیشتری دارند شامل رنگ‌های آزو با فرمول  $(-N=N-)$  می‌باشند. در حالی که مشتقات آنتراکونین<sup>۲</sup>، ایندوگوئید<sup>۳</sup>، تری فنیل متیلن<sup>۴</sup>، زانین<sup>۵</sup>، سولفور<sup>۶</sup>، فتالوسینین<sup>۷</sup> نیز مورد استفاده قرار می‌گیرند [۱۰]. رنگ‌هایی که دارای واژه اسید هستند دارای بار منفی می‌باشند. رنگ‌ها با واژه پایه<sup>۸</sup> دارای بار مثبت هستند. رنگ‌های راکتیو، رنگ‌های آنیونیک هستند که بیشتر در صنایع نساجی کاربرد بیشتری دارند. دندانها<sup>۹</sup> دارای یون‌های فلزی هستند که در رنگ‌زنی انتخابی مورد استفاده قرار می‌گیرند. رنگ‌های خمی<sup>۱۰</sup> از رنگ‌های نیلی طبیعی مشتق شده‌اند. رنگ‌های دسپرس، رنگ‌های غیریونی هستند که در محلول‌های آبی به کار می‌روند [۱۱]. بسیاری از رنگ‌های سنتتیک مورد استفاده در صنایع مختلف وارد صنایع می‌شوند [۸]. حضور این آلاینده در آب می‌تواند به راحتی باعث ظاهر و خصوصیات فیزیکی و شیمیایی آب را تغییر دهند. به دلیل تولید رنگ‌ها در مقیاس وسیع و کاربرد گسترده رنگ‌های صنعتی که می‌توانند باعث ایجاد آلودگی در رنج گسترده و ایجاد خطر جدی برای سلامتی باشد. بنابراین توجه به محیط زیست در توسعه صنایع و ایجاد صنایع سازگار با محیط زیست است و کاهش مصرف آب و به تبع آن کاهش تخلیه پساب به محیط زیست امری بدیهی به نظر می‌رسد [۱۳]. [۱۲]. تخلیه بی‌رویه پساب‌های حاوی مقادیر زیادی از رنگ‌های صنعتی به محیط زیست باعث ایجاد نگرانی‌های عمومی و مشکلات قانونی باعث ایجاد چالش‌های جدی در بحث علم محیط زیست شده است تاثیرگذاری و سمیت این آلاینده‌ها در محیط زیست به صورت گسترده‌ای مطالعه شده است [۱۴]. با این وجود مطالعات بر روی اثر سرطان‌زایی، جهش‌زایی و سایر اثرات رنگ‌ها در حال بررسی است [۱۱].

1- Chromophore

2- Anthraquinone

3- Indigoide

4- Triphenylmethyl

5- Xanthene

6- Sulphur

7- Phthalocyanine

8- Basic

9- Mordant

10- Vat

زودی<sup>۱</sup> و همکارانش طی مطالعه‌ای که به بررسی قابلیت فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف رنگزای مستقیم آبی ۸۱ پرداخته‌اند به کارایی بالای این فرآیند در رنگبری اشاره نموده‌اند که حدود ۹۰ درصد گزارش شده است [۲۴]. همچنین وی<sup>۲</sup> و همکارانش طی مطالعه‌ای کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در تصفیه پساب نساجی پرداخته‌اند که در نهایت نتایج بیانگر کارایی بالای این فرآیند در حذف رنگزاهای موجود در پساب و حذف میزان بالایی از COD پساب می‌باشد [۲۵]. با توجه به سازوکار این فرآیندها در حذف آلاینده‌ها، هدف از این مطالعه بهبودی عوامل تاثیر گذار بر فرآیند الکتروکواگولاسیون / الکتروفلوکولاسیون با الکترودهای ترکیبی تیتانیم به عنوان الکتروکاتد و آلومینیم به عنوان الکتروآند در حذف رنگزای اسید سیاه ۱ از محیط‌های آبی بود. عوامل موثر در فرآیند، نظیر pH، ولتاژ، غلظت ورودی رنگزا و سینتیک واکنش، میزان انرژی مصرفی در شرایط بهینه بود. همچنین تاثیر این فرآیند در کاهش COD در شرایط بهینه و اسکن طول موج رنگزای اسید سیاه ۱ نیز مورد مطالعه قرار گرفت.

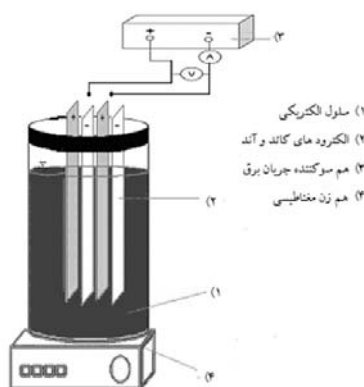
**۲- بخش تجربی**

**۲-۱- مواد**

در این مطالعه از ماده رنگزای تهیه شده از شرکت الوان رنگ همدان استفاده شد. همچنین سایر مواد مورد استفاده مانند اسید سولفوریک، هیدروکسید سدیم و سولفات سدیم از شرکت مرک و سیگما آلدريج آلمان تهیه و مورد استفاده قرار گرفت.

**۲-۲- روش کار**

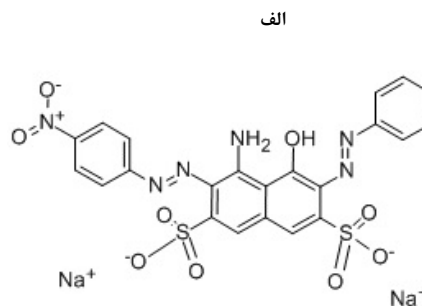
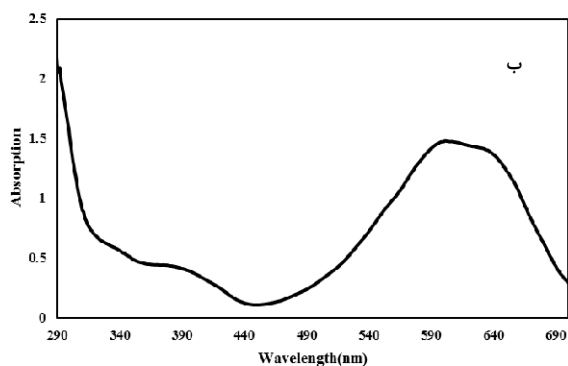
این مطالعه تجربی در یک محفظه واکنش ناپیوسته به حجم مفید ۱ لیتر در آزمایشگاه تحقیقاتی شیمی محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی همدان در سال ۱۳۹۲ انجام شد. جهت انجام مطالعه ابتدا رنگزای اسید سیاه ۱ با غلظت ۱۰۰۰ میلی گرم در لیتر به عنوان محلول مادر تهیه گردید. محلول‌های رنگی در غلظت‌های مورد نیاز (۵۰-۵۰۰ میلی گرم در لیتر) از محلول مادر تهیه شد. راکتور جریان ناپیوسته، شامل یک سلول الکتروشیمیایی به حجم ۱۲۵۰ میلی لیتر بود، که حجم نمونه مورد مطالعه در هر مرحله ۱۰۰۰ میلی لیتر بود. ۴ الکتروکاتد و ۲ الکتروآند به عنوان آند (آلومینیم) و ۲ الکتروکاتد (تیتانیم)، با آرایش یک در میان با فاصله ۲۰ میلی متر از هم به صورت عمودی و اتصال مونوپلار داخل راکتور تعبیه شد. ابعاد هر ۴ الکتروکاتد با هم مساوی و برابر ۲۰×۲۰×۲ میلی متر بود که مساحت کل الکتروکاتدها برابر با ۳۲ سانتی مترمربع بود. هر ۴ الکتروکاتد توسط سیم‌های رابط به دستگاه



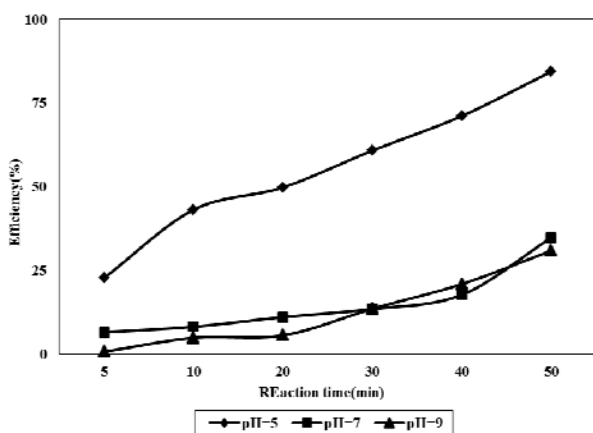
شکل ۱: شمای راکتور مورد مطالعه در فرآیند الکتروکواگولاسیون / الکتروفلوکولاسیون.

3- DC Power Supply  
4- Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater

1- Zodi  
2- Wei



شکل ۲: الف. ساختار شیمیایی رنگزای اسید سیاه ۱، ب. نتیجه آزمون اسکن انتخاب طول موج بهینه.



شکل ۳: تعیین تاثیر pH محیط بر کارایی فرآیند

الکتروکواگولاسیون/الکتروکواگولاسیون در حذف رنگزای اسید سیاه ۱ (ولتاژ: ۲۰ ولت، غلظت اولیه رنگزای ۵۰ میلی گرم در لیتر).

، $(Al(OH)_3)$ ،  $(Al(OH)_2^+)$ ،  $(Al(OH)(H_2O)_5^{2+})$ ،  $(Al(H_2O)_6^{3+})$ ،  $(Al(OH)_4^-)$  و  $(Al(OH)_5^{2-})$  و حتی پلیمرهای هیدروکسلی مانند  $(Al_13(OH)_32^{7+})$  آزاد می شود. در کل در این محدوده pH مقادیر زیادی از کمپلکس آلومینیم به عنوان کواگلانت تولید می شود. در نهایت منجر به تولید فلوکهای  $Al_3(OH)_3$  می شوند که از طریق سازوکار ترسیب و پلیمریزاسیون تغییر شکل می دهند و مولکولهای بزرگ رنگزای را از طریق کمپلکس سازی و جاذبه الکترواستاتیکی حذف می کند [۲۹]. این لخته های تولید شده دارای مساحت سطحی بالایی می باشند که جهت جذب آلاینده بسیار ایده آل می باشند [۳۰]. بنابراین انتظار می رفت که بالاترین کارایی حذف رنگزای اسید سیاه ۱ در این محدوده pH باشد که این گونه بود. نتایج مطالعه حاضر با نتایج مطالعه دانشور و همکارانش هم خوانی دارد که کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون را در حذف رنگزاهای C. I. Basic Red 46 و C. I. Basic Blue 3 در محدوده pH ۵،۵ تا ۷ تعیین نموده اند [۳۱].

در نهایت میزان کارایی فرآیند با استفاده از رابطه ۱ به دست خواهد آمد.

$$E = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

$C_0$ : غلظت اولیه رنگزای اسید سیاه ۱ (mg/l)

$C_e$ : غلظت باقی مانده رنگزای اسید سیاه ۱ (mg/l)

E: کارایی حذف رنگزای اسید سیاه ۱ (%)

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- بررسی تاثیر pH محیط و تعیین pH بهینه

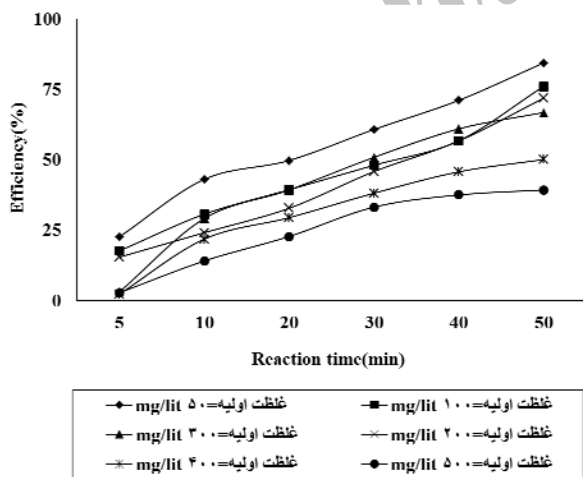
نتایج حاصل از تاثیر pH اولیه محیط ( $pH_i$ ) در محدوده ۵ تا ۹، بر کارایی فرآیند مورد نظر در غالب شکل ۳ نشان داده شده است. دلیل انتخاب این محدوده pH بر اساس مطالعات پیشین بوده است که بهترین بازده این فرآیند در این محدوده گزارش شده است [۲۷]. نتایج بیانگر تاثیرگذاری چشمگیر pH محیط در کارایی این فرآیند بود. در pH برابر ۵ حداکثر کارایی حذف رنگزای ۸۵ درصد در غلظت اولیه ۵۰ میلی گرم در لتر و ولتاژ ۲۰ ولت مشاهده شد. با تغییر pH کارایی فرآیند کاهش چشمگیری داشت، به طوری که در pH برابر ۷ و ۹ حداکثر کارایی به ترتیب به ۳۰ و ۲۵ درصد رسیده است. در پایان مدت زمان ۵۰ دقیقه و با ثابت شدن تقریبی بازده حذف آلاینده، pH نهایی محلول ( $pH_f$ ) اندازه گیری شد، نتایج حاکی از افزایش pH نهایی در همه آزمایشات بود. تغییر pH برای نمونه های اسیدی بیشتر و برای نمونه های قلیایی کمتر بود. pH نهایی در محدوده ۵،۵-۱۰،۵ قرار گرفت.

مطالعات نشان داد که pH محیط تاثیرگذارترین عامل در عملیات رنگ زدایی اسید سیاه ۱ با استفاده از فرآیند الکتروکواگولاسیون/الکتروکواگولاسیون است. تغییر در بازده فرآیند مذکور در اثر تغییرات pH محیط به ماهیت واکنش بین یون های آزاد شده از سطح آند و هیدروکسیدهای مربوطه دارد [۲۸]. هنگامی که pH در محدوده ۹-۴ باشد، یون های  $Al^{3+}$  و هیدروکسید  $OH^-$  منومریک های مختلف از جمله

که از سطح الکتروود آزاد می‌شوند بر سرعت واکنش‌های انعقاد الکتروشیمیایی تأثیر گذار است. بنابراین تعیین ولتاژ بهینه در فرآیندهای الکتريکی امری ضروری است. با افزایش ولتاژ جریان اعمال شده بر فرآیند، بازده حذف ماده رنگزا افزایش یافته است که دلیل افزایش بازده را می‌توان تحت تأثیر واکنش‌هایی که ضمن انجام فرآیند در کاتد و آنود به وقوع می‌پیوندد، تفسیر نمود. در فرآیند انعقاد الکتريکی در حالت احیاء آب یون‌های هیدروکسید تولید شده در کاتد در واکنش با یون‌های آلومینیم تولیدی در آنود، تولید سوسپانسیون هیدروکسید آلومینیم نموده که می‌تواند از طریق سازوکارهای جذب سطحی یا ضمن ته‌نشینی لخته‌ها، رنگزا توسط سازوکار فیزیکی جاروب کردن حذف می‌شود و همچنین سطح لخته‌های هیدروکسیدهای تولیدی با جذب ترکیبات محلول و کلوییدی سبب به دام انداختن این ترکیبات و حذف آنها از محیط‌های آبی به طریق رسوب‌دهی می‌شود [۲۳، ۳۱]. نتایج به دست آمده در این مطالعه، با نتایج حاصل از مطالعه سینگل<sup>۱</sup> و همکارانش بر روی کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف رنگزا راکتیو سیاه ۵ از محیط‌های آبی مطابقت دارد [۳۲].

### ۳-۳-۳ تاثیر غلظت رنگزا و تعیین غلظت رنگزا بهینه

تأثیر غلظت رنگزا در مقادیر ۵۰ تا ۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر در کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون/الکتروفلوئاسیون مطالعه و نتایج آن در شکل ۵ نشان داده شده است. در این مرحله در شرایط بهینه به دست آمده در مراحل قبل آزمایشات صورت گرفت. نتایج حاکی از آن بود که افزایش غلظت رنگزا از ۵۰ به ۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر کارایی فرآیند را کاهش می‌دهد.



شکل ۵: تعیین تاثیر غلظت اولیه رنگزا ورودی بر کارایی فرآیند

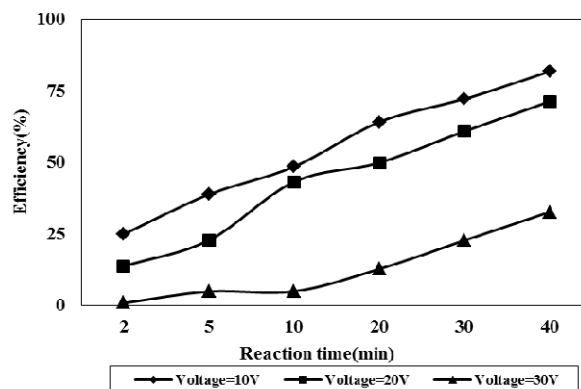
الکتروکواگولاسیون/الکتروفلوئاسیون در حذف رنگزا اسید سیاه ۱ (pH برابر ۱، ولتاژ برابر ۳۰ ولت).

### ۳-۳-۲ تاثیر ولتاژ اعمال شده و تعیین ولتاژ بهینه

تأثیر تغییرات ولتاژ در محدوده ۱۰ تا ۳۰ ولت در تجزیه رنگزا مطالعه شد و نتایج آن در شکل ۴ نشان داده شده است. زمانی که ولتاژ اعمال شده به داخل راکتور ۱۰ ولت بود، کارایی فرآیند در پایین‌ترین میزان خود یعنی حدوداً ۳۰ درصد بود. افزایش ولتاژ از ۱۰ به ۳۰ ولت کارایی را به بالاترین مقدار خود که حدود ۹۰ درصد بود، رساند. البته باید اشاره شود که میزان اختلاف کارایی فرآیند بین ولتاژ ۲۰ و ۳۰ ولت ناچیز است و در شرایطی که بحث مصرف انرژی مطرح است باید این موضوع لحاظ گردد. از این رو میزان انرژی مصرفی مورد محاسبه قرار گرفت. بر اساس رابطه ۲ میزان انرژی مصرفی در ولتاژهای ۱۰، ۲۰ و ۳۰ ولت مورد بررسی قرار گرفت [۲۰].

$$EE / V = \frac{U \times I \times t}{V_r} \quad (2)$$

در این رابطه، U میزان ولتاژ مصرفی بر حسب ولت، I شدت جریان الکتريکی کاربردی بر حسب آمپراژ، t زمان واکنش در داخل راکتور بر حسب دقیقه، V<sub>r</sub> حجم راکتور بر حسب لیتر و میزان انرژی مصرفی بر حسب کیلووات ساعت بر مترمکعب خواهد بود. بر اساس این رابطه میزان انرژی مصرفی در ولتاژهای ۱۰، ۲۰ و ۳۰ ولت برابر است با ۱۲۵، ۲۵۰ و ۳۷۵ کیلووات ساعت بر مترمکعب به ازای هر کیلوگرم آلاینده ورودی به راکتور محاسبه شد.



شکل ۴: تعیین تاثیر ولتاژ بر کارایی فرآیند

الکتروکواگولاسیون/الکتروفلوئاسیون در حذف رنگزا اسید سیاه ۱ (pH برابر ۱، غلظت اولیه رنگزا ۵۰ میلی‌گرم در لیتر).

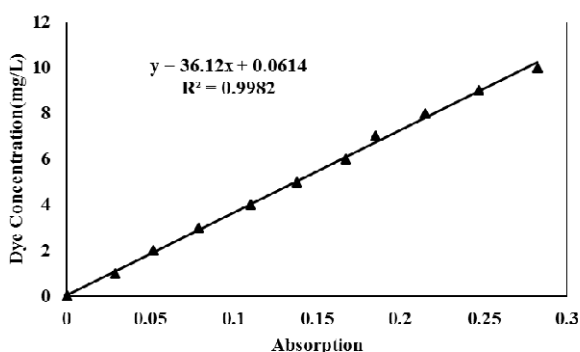
ولتاژ اعمال شده به سلول الکتريکی یکی دیگر از عوامل اساسی در بهره‌برداری از این فرآیند و سایر فرآیندهای الکتروشیمیایی می‌باشد [۳۱]. در این فرآیند جریان الکتريکی اعمال شده به راکتور، در تعیین نرخ تولید کوآگولانت و نرخ تولید و اندازه حباب‌های هیدروژن تأثیر گذار است، با افزایش ولتاژ اعمال شده به راکتور میزان کوآگولانت افزایش و همچنین تولید حباب افزایش می‌یابد، افزایش مقدار این دو ماده با افزایش کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون تأثیر مستقیم دارد. این عامل از طریق تأثیر بر واکنش‌های سطح الکتروود و میزان یون‌هایی

جدول ۱: رابطه سینتیک‌های درجه صفر؛ یک و دو.

مدل سینتیکی	رابطه	شکل خطی
سینتیک درجه صفر	$r_c = dc / dt = k_0$	$C - C_0 = -k_0t$
سینتیک درجه یک	$r_c = dc / dt = k_1C$	$\ln C / C_0 = -k_1t$
سینتیک درجه دو	$r_c = dc / dt = k_2C^2$	$1/C - 1/C_0 = -k_2t$

جدول ۲: نتایج مطالعات سینتیکی.

سینتیک درجه دو	سینتیک درجه یک		سینتیک درجه صفر		غلظت آلاینده (میلی گرم در لیتر)
	$R^2$	$k_1$	$R^2$	$k_0$	
$R^2$	$k_2$	$R^2$	$k_1$	$R^2$	$k_0$
۰,۸۲۶۸	۰,۱۹۰۱	۰,۵۸	۰,۰۳۷۹	۰,۹۵۴۸	۲,۹۵



شکل ۶: سینتیک درجه صفر واکنش فرآیند الکتروکواگولاسیون / الکتروکواگولاسیون.

### ۳-۵- میزان کاهش COD در شرایط بهینه و تغییرات ایجاد شده در طیف UV- VIS

در پایان جهت مشخص شدن توانایی این فرآیند در کاهش COD حاصل از تجزیه رنگزا اسید سیاه ۱، شرایط بهینه این فرآیند لحاظ گردید و COD اندازه گیری شد. نتایج حاکی از تاثیر گذاری فرآیند الکتروکواگولاسیون / الکتروفلوکولاسیون در حذف COD است. غلظت اولیه COD با غلظت اولیه ۵۰۰ میلی گرم رنگزا برابر ۵۶۰ میلی گرم در لیتر تعیین شد. همچنین میزان TOC رنگزا با غلظت اولیه ۵۰۰ میلی گرم در لیتر برابر ۲۱۰ میلی گرم در لیتر می باشد که ۷۰ درصد حذف TOC مشاهده شد. در پایان زمان نمونه برداری ۸۰ درصد از COD اولیه حذف شد. همچنین شکل ۷ تغییرات ایجاد شده در طیف

از دیگر عوامل تأثیرگذار بر تمامی فرآیندها به ویژه فرآیندهای الکتروشیمیایی غلظت اولیه آلاینده ورودی به راکتور است که در اکثر مطالعات الکتروشیمیایی بین غلظت اولیه آلاینده، میزان انرژی مصرفی و کارایی فرآیند در حذف آلاینده اشاره شده است [۳۰]. در فرآیند مورد مطالعه، اکسیداسیون الکترودهای آلومینیم باعث آزاد شدن یون‌های سه ظرفیتی آلومینیم در اثر آبکافت یون‌ها باعث تولید هیدروکسیدهای مختلف می‌شود. تمامی هیدروکسید و پلیمرهای هیدروکسیدی تولیدی توانایی بالایی در حذف آلاینده‌های یونی مانند رنگزا دارند و آن را به لخته تبدیل می‌کنند [۳۳]. در غلظت‌های پایین رنگزا، هیدروکسیدهای تولیدی به راحتی قادرند با درصد بالایی از آلاینده موجود، واکنش داده و آنها را به لخته تبدیل کنند و در نهایت با ته‌نشینی از محیط‌های آبی جدا شوند. با افزایش میزان غلظت آلاینده در محیط، از آنجایی که سایر عامل‌ها مانند ولتاژ جریان که عامل اصلی تولید کننده هیدروکسیدهای فلزی در فرآیندهای الکتروکواگولاسیون می‌باشد، ثابت هستند بنابراین بدیهی است که ظرفیت حذف با افزایش غلظت آلاینده ورودی کاهش یابد. همچنین با افزایش غلظت آلاینده‌ها در راکتور واکنش تولید مواد حد واسط یافته و باعث مصرف کواگولانت‌های تولیدی در راستای این مواد حد واسط می‌گردد بنابراین کاهش کارایی فرآیند اینگونه قابل توجیه خواهد بود. نتایج به دست آمده در مطالعه ایمران علی<sup>۱</sup> با نتایج این مطالعه مطابقت دارد در این مطالعه نیز با افزایش میزان غلظت اولیه آرسنات در محیط کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون کاهش می‌یابد [۳۴]. همچنین در این فرآیند، اکسیداسیون الکتروشیمیایی عوامل اکسید کننده مانند رادیکال هیدروکسید توسط جریان الکتریکی در سطح الکتروکاتد تولید می‌شود [۳۰].

### ۳-۴- بررسی سینتیک واکنش

در هر مطالعه‌ای، از جمله مطالعات الکتروشیمی تعیین سرعت واکنش امری مهم و تأثیرگذار بر فرآیند مطالعه می‌باشد بنابراین جهت پی بردن به نحوه انجام واکنش حذف آلاینده و مدل سازی و اجرای بهتر فرآیند در مقیاس کاربردی، مطالعه سینتیک واکنش انجام می‌شود [۳۵]. بدین منظور، در این مطالعه جهت مطالعه سینتیک واکنش از سه مدل سنتیک درجه صفر؛ درجه یک و درجه دو استفاده شد که اطلاعات مربوط به سینتیک‌ها در جدول ۱ و نتایج مطالعات سینتیک فرآیند جدول ۲ و شکل ۶ آمده است. نتایج نشان می‌دهد که سینتیک واکنش در شرایط بهینه این مطالعه از سینتیک درجه صفر پیروی می‌کند. در رابطه به دست آمده ضریب X بیانگر سرعت واکنش می‌باشد.

1- Imran Ali

#### ۴- نتیجه‌گیری

نتایج حاصل از این مطالعه نشان می‌دهد که فرآیند الکتروکواگولاسیون/الکتروفلوتاسیون کارایی مناسب در رنگبری رنگزای دی‌آزو اسید سیاه ۱ را دارد. عوامل تاثیرگذار در این مطالعه شامل pH محیط، میزان ولتاژ اعمال شده بر محتوی راکتور واکنش و غلظت اولیه رنگزای اسید سیاه ۱ می‌باشد. بهترین بازده حذف رنگزا در pH برابر ۵، ولتاژ ۲۰ ولت و غلظت اولیه ۵۰ میلی گرم در لیتر به دست آمد که در این شرایط بازده حذف در حدود ۹۰ درصد به دست آمد. همچنین میزان حذف COD در این فرآیند با COD اولیه ۵۶۰ میلی‌گرم در لیتر برابر ۸۰ درصد و میزان حذف TOC در این مطالعه ۷۰ درصد از میزان اولیه TOC میلی‌گرم در لیتر است. با فاصله گرفتن از شرایط بهینه در این مطالعه میزان بازده حذف کاهش پیدا می‌کند.

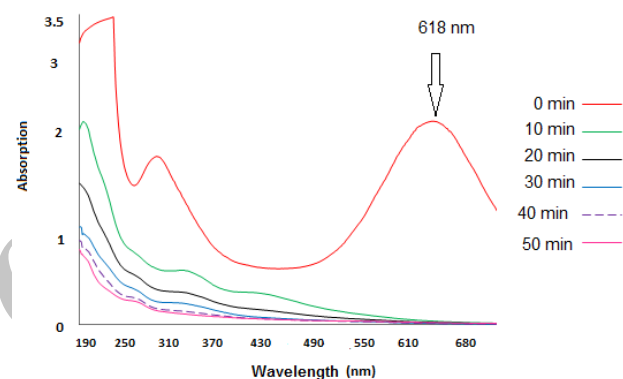
#### تشکر و قدردانی

این حاصل پروژه تحقیقاتی دانشجویی به شماره ۹۲۰۴۱۸۱۲۱۷ می‌باشد که معاونت پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی همدان حامی مالی این طرح بوده‌اند، لذا نویسندگان این مقاله لازم می‌دانند مراتب تشکر و سپاسگزاری از آن معاونت را به جا آورند.

1- Zhang

UV- VIS در شرایط بهینه مطالعه را نشان می‌دهد. پس از اسکن توسط دستگاه طیف‌سنج مدل DR5000 مشخص است بالاترین پیک موجود در نمونه اولیه رنگزا اسید سیاه ۱ در طول موج ۶۱۸ نانومتر مشاهده شد. این پیک با گذشت زمان واکنش کاهش می‌یابد که بیانگر تجزیه و حذف آلاینده به ترکیبات دیگر است. در همین حال، پیک موجود در محدوده ۲۵۰-۱۹۰ نانومتر که بیانگر حضور مواد آلی می‌باشد نیز به مرور زمان در حال کاهش می‌باشد. در پایان زمان واکنش قسمت اعظمی از رنگزا و مواد آلی موجود در نمونه اولیه حذف گردید.

در مطالعات صورت گرفته توسط ژانگ<sup>۱</sup> و رونگ ژو نیز از اسکن طول موج در راستای بررسی میزان حذف آلاینده و میزان تولید مواد حد واسط و میزان معدنی‌سازی استفاده شده است [۳۳].



شکل ۷: اسکن طول موج رنگزای اسید سیاه ۱ و ایجاد تغییرات در طی فرآیند الکتروکواگولاسیون بر غلظت رنگزا اسید سیاه ۱.

#### ۵- مراجع

- S. Hammami, N. Oturan, N. Bellakhal, M. Dachraoui, M. A. Oturan. Oxidative degradation of direct orange 61 by electro-Fenton process using a carbon felt electrode: Application of the experimental design methodology. *J Electroanal Chem.* 610(2007),610-617.
- G. Walker, L. Weatherley. Textile wastewater treatment using granular activated carbon adsorption in fixed beds. *Environ Sci. Technol.* 35(2000), 1329-1341.
- S. Raghu, C. Ahmed Basha. Chemical or electrochemical techniques, followed by ion exchange, for recycle of textile dye wastewater. *J. Hazard Mater.* 149(2007), 324-330.
- D. Dutta, U.R. Chaudhuri, Chakraborty R. Structure, health benefits, antioxidant property and processing and storage of carotenoids. *African Journal of Food, Agriculture, Nutrition and Development.* 2004;4.
- N. F. Cardoso, E. C. Lima, B. Royer, M. V. Bach, G. L. Dotto, L. A. Pinto, T. Calvete, Comparison of Spirulina platensis microalgae and commercial activated carbon as adsorbents for the removal of Reactive Red 120 dye from aqueous effluents. *J. Hazard Mater.* 241(2012), 146-153.
- R. Malik, D. Ramteke, S. Wate. Adsorption of malachite green on groundnut shell waste based powdered activated carbon. *Waste Manage.* 27(2007), 1129-1138.
- M. H. Baek, C. O. Ijagbemi, D. S. Kim. Removal of Malachite Green from aqueous solution using degreased coffee bean. *J. Hazard Mater.* 176(2010), 820-828.
- R. J. Turesky, J. P. Freeman, R. D. Holland, D. M. Nestorick, D. W. Miller, D. L. Ratnasinghe, F. F. Kadlubar, Identification of aminobiphenyl derivatives in commercial hair dyes. *Chem Res. Toxicol.* 16(2003), 1162-1173.
- N. Bensalah, M. Alfaro, C. Martínez-Huitle. Electrochemical treatment of synthetic wastewaters containing Alaphazurine A dye. *Chem Eng J.* 149(2009), 348-352.
- Forgacs E, Cserhati T, Oros G. Removal of synthetic dyes from wastewaters: a review. *Environ Int.* 30(2004), 953-971.
- C. A. Martínez-Huitle, E. Brillias. Decontamination of wastewaters containing synthetic organic dyes by electrochemical methods: a general review. *Appl. Catal.B.* 87(2009), 105-145.
- P. Banerjee, S. De. Coupled concentration polarization and pore flow modeling of nanofiltration of an industrial textile

- effluent. *Sep Purif Technol.* 73(2010),355-362.
13. J. P. Coelho, R. P. Stateva. Solubility of Red 153 and Blue 1 in Supercritical Carbon Dioxide. *J Chem Eng Data.* 56(2011), 4686-4690.
  14. E. Yilmaz, S. Memon, M. Yilmaz. Removal of direct azo dyes and aromatic amines from aqueous solutions using two  $\beta$ -cyclodextrin-based polymers. *J hazard mater.* 174(2010), 592-759.
  15. M. Matheswaran, T. Raju. Destruction of methylene blue by mediated electrolysis using two-phase system. *Process Saf Environ.* 88(2010), 350-355.
  16. H. S. El-Desoky, M. M. Ghoneim, R. El-Sheikh, N. M. Zidan. Oxidation of Levafix CA reactive azo-dyes in industrial wastewater of textile dyeing by electro-generated Fenton's reagent. *J Hazard Mater.* 175(2010), 858-865.
  17. M. Wawrzkiwicz. Comparison of the efficiency of amberlite ira 478rf for acid, reactive, and direct dyes removal from aqueous media and wastewaters. *Ind Eng Res.* 51(2012), 8069-8078.
  18. F. Migliorini, N. Braga, S. Alves, M. Lanza, M. Baldan, N. Ferreira. Anodic oxidation of wastewater containing the Reactive Orange 16 Dye using heavily boron-doped diamond electrodes. *J Hazard Mater.* 192(2011),1683-1689.
  19. N. S. Kumar, S. Goel. Factors influencing arsenic and nitrate removal from drinking water in a continuous flow electrocoagulation (EC) process. *J Hazard Mater.* 528(2010), 528-533.
  20. Gomes JA, Daida P, Kesmez M, Weir M, Moreno H, Parga JR, G. Irwin, H. Mc Whinney, T. Grady, E. Peterson, Arsenic removal by electrocoagulation using combined Al-Fe electrode system and characterization of products. *J Hazard Mater.* 139(2007), 220-231.
  21. M. Behbahani, M. Alavi Moghaddam, M. Arami. A comparison between aluminum and iron electrodes on removal of phosphate from aqueous solutions by electrocoagulation process. *Int J Environ Res.* 5(2011), 403-412.
  22. Y. Yavuz, A. S. Koparal, Ü. B. Ögütveren. Treatment of petroleum refinery wastewater by electrochemical methods. *Desalination.* 258(2010), 201-205.
  23. E. Butler, Y. T. Hung, R. Y Yeh, Suleiman Al Ahmad M. Electrocoagulation in wastewater treatment. *Water.* 3(2011), 495-525.
  24. S. Zodi, B. Merzouk, O. Potier, F. Lapticque, J. P. Leclerc. Direct red 81 dye removal by a continuous flow electrocoagulation/flotation reactor. *Sep Purif Technol.* 108(2013), 215-22.
  25. M. C Wei, K.S Wang, C. L Huang, C. W Chiang, T. J Chang, S. S Lee, et al. Improvement of textile dye removal by electrocoagulation with low-cost steel wool cathode reactor. *Chem Eng J.* 192(2012),37-44.
  26. D. Andrew. Standard methods for the examination of water and wastewater: none; 2005.
  27. J. B Parsa, H. R Vahidian, A. Soleymani, M. Abbasi. Removal of Acid Brown 14 in aqueous media by electrocoagulation: Optimization parameters and minimizing of energy consumption. *Desalination.* 278(2011), 295-302.
  28. M. Kobya, E. Demirbas, O. Can, M. Bayramoglu. Treatment of levafix orange textile dye solution by electrocoagulation. *J Hazard Mater.* 132(2006),183-8.
  29. B. Merzouk, B. Gourich, A. Sekki, K. Madani, C. Vial, M. Barkaoui. Studies on the decolorization of textile dye wastewater by continuous electrocoagulation process. *Chem Eng J.* 149(2009),207-14.
  30. S. Aoudj, A. Khelifa, N. Drouiche, M. Hecini, H. Hamitouche, Electrocoagulation process applied to wastewater containing dyes from textile industry. *Che. Eng Pro: Process Int.* 49(2010), 1176-1182.
  31. N. Daneshvar, A. Oladegaragoze, N. Djafarzadeh. Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: an investigation of the effect of operational parameters. *J Hazard Mater.* 129(2006), 116-122.
  32. İ. A Şengil, M. Özacar. The decolorization of CI Reactive Black 5 in aqueous solution by electrocoagulation using sacrificial iron electrodes. *J Hazard Mater.* 161(2009),1369-1376.
  33. X. Zhang, Y. Zhang, H. Zhao, Y. He, X. Li, Z. Yuan, Highly sensitive and selective colorimetric sensing of antibiotics in milk. *Anal. Chim. Acta.* 778(2013), 63-69.
  34. I. Ali, V. K Gupta, T. A Khan, M. Asim. Removal of Arsenate from Aqueous Solution by Electro-Coagulation Method Using Al-Fe Electrodes. *Int. J. Electrochem. Sci.* 7(2012), 1898-1907.
  35. N. Balasubramanian, T. Kojima, C. Srinivasakannan. Arsenic removal through electrocoagulation: kinetic and statistical modeling. *Chem Eng J.* 155(2009),76-82.