فصلنامه علمی – پژوهشی تحقیقات علوم چوب و کاغذ ایران
جلد ۳۳ شماره ۴، صفحه ۵۰۰-۴۸۹، (۱۳۹۷)

شناسه دیجیتال (DOI): 10.22092/IJWPR.2018.122366.1480
شناسه دیجیتال (DOR): 98.1000/1735-0913.1397.33.489.65.4.1603.32

کاربرد طراحی مرکب مرکزی برای بهینه‌سازی پارامترهای پیش‌تیمار با فراصوت بر مرکب‌زدایی شیمیایی کاغذ روزنامه باطله

سید حسن شریفی[۱*] و نورالدین نظرنژاد[۲]

۱*- نویسنده مسئول، استادیار، گروه مهندسی چوب و کاغذ، دانشکده منابع طبیعی، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی ساری، ساری، ایران،
پست‌الکترونیک: h.sharifi@sanru.ac.ir

۲- دانشیار، گروه مهندسی چوب و کاغذ، دانشکده منابع طبیعی، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی ساری، ساری، ایران

تاریخ دریافت: تیر ۱۳۹۷ تاریخ پذیرش: مهر ۱۳۹۷

چکیده

مرکب‌زدایی به‌عنوان یک مرحله تکمیلی در فناوری بازیافت کاغذهای باطله محسوب می‌شود که در طی آن ذرات آلاینده و سایر ناخالصی‌های موجود در آن حذف شده و الیاف سلولزی بازیافتی به نسبت خالص برای استفاده دوباره در ساخت کاغذ به‌دست می‌آید. در این تحقیق تأثیر به‌کارگیری پیش‌تیمار فراصوت بر مرکب‌زدایی کاغذهای روزنامه باطله به‌روش متداول شیمیایی بررسی شد. مقدار متغیرهای دمای حمام فراصوت و زمان فراصوت با روش طراحی آزمایش بهینه شدند. به این منظور تعداد ۱۳ آزمایش با روش سطح پاسخ (RSM) و استفاده از طراحی مرکب مرکزی توسط نرم‌افزار Design Expert 7.0.0 Trial طراحی شد. دو عامل دمای حمام فراصوت و زمان فراصوت در سه سطح مختلف (۱-، ۰ و ۱+) و دونقطه محوری (α+ و α-) به‌عنوان متغیرهای مستقل و از خواص نوری و مکانیکی کاغذهای دست‌ساز به‌عنوان متغیر وابسته استفاده شد. سطوح پاسخ و منحنی‌های تراز برای نشان دادن اثر متقابل متغیرهای مستقل با پاسخ ایجاد شد. آزمون آنالیز واریانس (ANOVA) نشان داد که مدل درجه دوم بهترین مدل برای بیان تقابل بین متغیرهای موردمطالعه می‌باشد. مقادیر پیش‌بینی شده توسط مدل به‌دست‌آمده، با نتایج آزمایشگاهی مطابقت خیلی بالایی داشتند (R^2=۰/۹۸). مطابق با نتایج ANOVA، مشخص شد که تأثیر هریک از متغیرها در خواص بهینه معنی‌دار است و زمان فراصوت مؤثرترین عامل بر روی پاسخ است. بر اساس نتایج تجربی، شرایط بهینه پیشنهاد شده برای بیشینه مقدار خواص مکانیکی و نوری کاغذ روزنامه بازیافتی (۴۳/۴۲) دمای حمام فراصوت ۴۷°C و زمان فراصوت ۳۱ دقیقه می‌باشد.

واژه‌های کلیدی: کاغذ روزنامه باطله، مرکب‌زدایی، فراصوت، ویژگی‌های نوری و مکانیکی، طرح مرکب مرکزی.

مقدمه

با مصرف روزافزون کاغذ در صنایع چاپ و بسته‌بندی از یکسو و محدودیت مواد اولیه چوبی در این صنایع از سوی دیگر، این صنایع به بازیافت کاغذهای مصرف شده روی آورده‌اند (Mirshokrai, 2001). الیاف بازیافتی به‌عنوان جایگزین خمیرکاغذ دست اول نقش بسیار مهمی را در صنعت کاغذسازی ایفا می‌کنند، به‌طوری‌که امروزه در بسیاری از کشورهای دنیا، صنعت کاغذسازی بدون وجود الیاف بازیافتی نمی‌تواند به فعالیت با تمام ظرفیت خود ادامه دهد. بازیافت کاغذ علاوه بر منافع اقتصادی، موجب عدم وابستگی در جهت ورود خمیرکاغذ، کاهش آلودگی، ممانعت از قطع درختان و کمک به سیستم جمع‌آوری و دفن زباله‌های تولیدی می‌شود.

Archive of SID
www.SID.ir

بازیافت کاغذهای باطله در مقیاس جهانی رشد قابل‌ملاحظه‌ای یافته است، به‌طوری که در حال حاضر بیش از یک سوم کاغذ و مقوای تولیدشده در جهان از خمیرکاغذ بازیافتی ساخته می‌شود. برآورد می‌شود در آینده نزدیک حدود نیمی از مقدار جهانی الیاف مورداستفاده در کاغذسازی، بازیافتی خواهد بود (Bajpai *et al.*, 2014).

فرایند بازیافت باوجود برتری‌ها و توانمندیهای قابل‌ملاحظه، موجب کاهش شدید کیفیت و ویژگی‌های مقاومتی کاغذ می‌شود. تلاش‌های مختلفی برای ارتقاء ویژگی‌های کاغذسازی خمیرهای کاغذ بازیافتی انجام شده‌است. در حال حاضر روش‌های شناخته شده در بهبود درجه روانی و مقاومت الیاف دسته دوم می‌توان از پالایش بیشتر، تیمارهای شیمیایی–حرارتی، استفاده از مخلوط الیاف بکر، تنظیم شرایط پرس و خشک نمودن شدیدتر، استفاده از مواد افزودنی خشک، اصلاحات فرایندی در کاغذسازی و تیمارهای آنزیمی را نام برد (Kang, 2007).

امروزه به‌طور گسترده‌ای در صنایع مختلفی ازجمله تصفیه فاضلاب، صنایع غذایی، کاربردهای شیمیایی و صنعت ساخت مواد امواج فراصوت مورداستفاده قرار می‌گیرند (Sharifi Pajaie and Taghizadeh, 2015). اصطلاح فراصوت برای نشان دادن امواج صوتی که فرکانس بین ۲۰ کیلوهرتز تا ۱۰ مگاهرتز دارند، استفاده می‌شود که بالاتر از حد شنوایی انسان (بین ۱۶ هرتز تا ۱۶ کیلوهرتز) است (Manson *et al.*, 1992).

استفاده از امواج فراصوت به‌منظور مرکب‌زدایی در دو دهه اخیر در صنعت کاغذسازی موردمطالعه قرار گرفته است. فراصوت در صنعت کاغذسازی در مراحل مختلفی ازجمله افزایش خمیرسازی، رنگ‌بری، گسستن زنجیره‌های سلولزی و فراورش کاغذهای باطله استفاده می‌شود (Manson *et al.*, 1992). اخیراً بررسی‌هایی در ارتباط با مرکب‌زدایی کاغذ باطله با استفاده از امواج فراصوت انجام شده است. این مطالعات نشان داده‌اند که اندازه ذرات مرکب با تیمار فراصوت کاهش می‌یابد ولی هیچ توضیحی در مورد تغییر کیفیت الیافی که مورد تیمار فراصوت قرار گرفته‌اند و مشخصات کاغذهای تولید شده از این الیاف وجود ندارد و این موضوع نیازمند بررسی و مطالعات بیشتری است.

Tatsumi و همکاران (۲۰۰۰) اثر امواج فراصوت بر کیفیت الیاف بازیافتی را مورد بررسی قرار دادند. در این پژوهش مخلوط خمیر الیاف بازیافتی، قبل از مرکب‌زدایی به روش شناورسازی مرسوم، توسط امواج فراصوت تیمار شد. آنان در این پژوهش به این نتیجه رسیدند کاغذهایی که الیاف آنها مورد تیمار فراصوت قرار گرفتند نسبت به کاغذ-هایی که الیاف آنها با امواج فراصوت تیمار نشدند دارای دانسیته، مقاومت کششی و روشنی بیشتری هستند. Parker و همکاران (۲۰۰۹) به بررسی تأثیر دما و زمان بر روی فرایند مرکب‌زدایی به کمک امواج فراصوت پرداختند. در این روش کاغذ کپی سفید در مرکب چاپ سیاه خیس شده و بعد از خشک‌کردن و رسیدن به وزن ثابت در دمای ۷۵°C فرایند مرکب‌زدایی با به‌کارگیری دستگاه فراصوت حمامی در محدوده دمایی ۱۵°C–۴۵ و زمان قرارگیری در معرض امواج فراصوت در محدوده زمانی ۳۰–۵ دقیقه انجام گردید. امواج فراصوت باعث بهبود درجه روشنی کاغذ در دمای بهینه ۳۵°C و زمان ۵ دقیقه شده است. Xing و همکاران (۲۰۱۰) اثر عملیات فراصوت بر رنگ‌بری خمیرکاغذهای شیمیایی–مکانیکی (CMP) گونه صنوبر سفید تریپلوئید چینی را مورد بررسی قرار دادند. قبل از رنگ‌بری تک‌مرحله‌ای با هیدروژن پراکسید، خمیر CMP در درصد خشکی ۱/۵ درصد و دمای ۵۰°C برای مدت ۲۰ دقیقه با دامنه نوسان ۹۰ درصد مورد عملیات فراصوت قرار گرفت، این شرایط مطلوب‌ترین اثر را در افزایش درجه روشنی به مقدار ۳/۵ درصد ایزو نشان داد که منجر به مقدار نهایی برابر با ۸۰/۲ درصد ایزو شد.

برای تعیین حد بهینه شرایط فرایندی، استفاده از مدل‌ها و روابط تجربی ریاضی امری اجتناب‌ناپذیر می‌باشد. در این بین روش سطح پاسخ (Response surface methodology) مجموعه‌ای از روش‌های آماری و ریاضی است که برای مدل کردن و تجزیه‌وتحلیل مسائلی که در آن متغیر پاسخ تحت تأثیر چندین متغیر مستقل می‌باشد بسیار

Archive of SID

www.SID.ir

مفید است و هدف از آن بهینه کردن متغیرهای پاسخ می‌باشد (Clarke & Kempson, 1997). این روش توسط جورج باکس و ویلسون در سال ۱۹۵۱ برای اولین بار معرفی شد و باگذشت زمان گسترش و بهبود یافته‌است (Box & Behnken, 1960). در بیشتر مسائل کاربردی بیش از یک عامل در کیفیت و عملکرد یک محصول دخالت دارند که این عوامل باید مورد بررسی قرار گیرند. در بهینه‌سازی به روش سطح پاسخ، متغیرهای ورودی به‌عنوان متغیرهای مستقل تعریف می‌شوند و تأثیر این متغیرها بر متغیرهای خروجی (وابسته) موردمطالعه قرار می‌گیرد. مزیت اصلی روش سطح پاسخ کاهش تعداد تکرارهای آزمایش‌ها برای ارزیابی پارامترهای چندگانه و روابط متقابل آنهاست (Cornell, 1990).

دو روش متداول زیرمجموعه طراحی آزمایش ها، به روش سطح پاسخ طراحی آزمایش‌ها، به روش طرح مرکب مرکزی ((Central Composite Design (CCD)) و طرح باکس بنکن ((Box-Behnken Design (BBD)) هستند. یکی از معمول‌ترین روش‌های مورد استفاده برای بهینه‌سازی عوامل مختلف، استفاده از طرح مرکب مرکزی است (Wu & Hamada, 2009). این طرح روشی جایگزین و مناسب برای طرح فاکتوریل می‌باشد که توسط باکس و هانتر (Box & Hunter, 1957) اصلاح گردید. مزیت استفاده از طرح مرکب مرکزی نسبت به طرح فاکتوریل، امکان استخراج اطلاعات بیشتر از تحلیل این طرح و تعداد کمتر تیمار و تکرارهای مورد نیاز برای انجام آزمایش می‌باشد که اجرای این طرح را آسان‌تر می‌کند؛ همچنین امکان تعیین ترکیب‌های مختلف متغیر مستقل را در آزمایش فراهم می‌آورد (Aslan, 2007).

در این مطالعه، از تیمار فراصوت به‌عنوان پیش‌تیمار قبل از مرکب‌زدایی شیمیایی کاغذ روزنامه باطله استفاده گردیده‌است. برای مدل‌سازی و بررسی اثر متغیرهای مختلف فرایندی از روش پاسخ سطح بر مبنای طرح مرکب مرکزی (Central Composite Design) استفاده شد. هدف اصلی این پژوهش دستیابی به شرایط بهینه به‌کارگیری پیش‌تیمار فراصوت برای داشتن ویژگی‌های نوری و مکانیکی مناسب از طریق آنالیز خطی و تأثیر متقابل پارامترهای مؤثر دمای حمام (^{o}C) و زمان فراصوت (دقیقه) می‌باشد. آنالیز واریانس و آنالیز سطح پاسخ به‌منظور بیان رابطه میان متغیرهای فرایندی، مدل ریاضی فرایند و خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی به‌کار گرفته شد و شرایط بهینه فرایندی تعیین گردید.

مواد و روش‌ها

مواد

کاغذهای باطله مورد استفاده در این تحقیق، کاغذهای روزنامه همشهری می‌باشد که سن آنها در زمان مرکب‌زدایی ۵ روز بوده است. سایر مواد شیمیایی مورد استفاده در این تحقیق پراکسید هیدروژن، هیدروکسید سدیم، سیلیکات سدیم و DTPA بودند که از شرکت‌های مرک و سیگما-آلدریچ تهیه شدند.

آماده‌سازی خمیرکاغذ و پیش‌تیمار با فراصوت

کاغذهای روزنامه به ابعاد ۵-۲ سانتی‌متر تبدیل و به‌مدت ۲۴ ساعت در آب خیس شدند. سپس قطعات کاغذ خیس شده درون دستگاه پراکنده‌ساز به‌مدت ۳۰ دقیقه از هم باز شدند. درنهایت خمیرکاغذ حاوی ذرات مرکب و الیاف بر روی غربال با مش ۲۰۰ آبگیری شده و خمیرکاغذ حاصل درون کیسه‌های پلاستیکی برای تعیین درصد رطوبت نگهداری گردید. مقدار مشخصی از خمیرکاغذ آماده شده به درصد خشکی ۳٪ رسانیده شد و برای تهیه سوسپانسیون همگنی از خمیرکاغذ، مخلوط به‌مدت ۱۰ دقیقه با دستگاه همزن با دور پایین همزده شد. در ادامه از ماده فعال‌ساز سطحی پلی‌سوربات ۸۰ به میزان ۰/۱۵ درصد بر اساس وزن خشک خمیرکاغذ روزنامه برای تیمار نمونه‌ها استفاده گردید. نمونه‌های خمیرکاغذ ابتدا تحت تأثیر امواج فراصوت قرار گرفتند. برای بررسی تأثیر پارامترهای مهم پیش‌تیمار فراصوت ازجمله زمان قرارگیری در معرض امواج فراصوت (دقیقه) و دمای حمام فراصوت (^{o}C) از روش طراحی مرکب مرکزی (جدول ۲) استفاده شده‌است.

Archive of SID

www.SID.ir

تیمار شیمیایی

در مرحله بعد خمیرهای کاغذ بازیافتی حاصل تحت تیمار شیمیایی قرار گرفتند. در ابتدا به‌میزان ۰/۳ درصد DTPA (بر مبنای وزن خشک خمیرکاغذ) اضافه و به‌مدت ۳۰ دقیقه در دمای ۶۰ ^{o}C در pH=۵/۵ به‌وسیله همزن مکانیکی با سرعت ۲۵۰ دور در دقیقه همزده شد. سپس از یک مرحله شستشوی تکمیلی بر روی الک با مش ۲۰۰ استفاده شد. مواد شیمیایی پراکسید هیدروژن (۱٪)، سود سوزآور (۱٪) و سیلیکات سدیم (۲٪) به‌ترتیب به خمیرکاغذ با درصد خشکی ۳ درصد اضافه شد. در ادامه مخلوط حاصل در کیسه پلاستیکی ریخته شده و به‌خوبی مخلوط گردید. درنهایت به‌مدت یک ساعت در شیکر انکوباتور در دمای ۶۰^{o}C قرار داده شد و پس‌ازآن نمونه‌ها با آب دیونیزه شده چندین مرتبه بر روی الک با مش ۲۰۰ شستشو داده شد تا pH خنثی حاصل گردد (Akbarpour *et al.*, 2011).

از هر ترکیب، کاغذهای دست‌ساز مورد نیاز با وزن پایه ۶۰ گرم بر مترمربع برای اندازه‌گیری درجه شفافیت و خواص مکانیکی، مطابق با استاندارد T ۲۰۵ sp-۰۲ آیین‌نامه Tappi ساخته شده و درجه شفافیت و خواص مکانیکی کاغذهای مذکور با توجه به دستورالعمل‌های مربوط در آیین‌نامه Tappi اندازه‌گیری گردید.

روشنی: دستورالعمل T ۴۵۲ om-۰۲

ماتی: دستورالعمل T ۴۲۵ om-۰۱

مقاومت به پارگی: دستورالعمل T ۴۱۴ om-۰۴

مقاومت به کشش: دستورالعمل T ۴۹۴ om-۰۱

مقاومت به ترکیدگی: دستورالعمل T ۴۰۳ om-۰۲

اندازه‌گیری وزن پایه: به کمک ترازوی دقیق آزمایشگاهی با دقت ۰/۰۱ گرم.

بعد از اندازه‌گیری خواص نوری و مکانیکی کاغذهای دست‌ساز، از روش امتیازدهی براساس ارزش‌گذاری با این هدف که از کاغذهای باطله برای تولید روزنامه استفاده شود، برای تعیین بهترین تیمار آزمایشی از نظر مجموع خواص نوری و مکانیکی استفاده شد. مقادیر درصد اهمیت هریک از ویژگی‌ها در جدول ۱ ارائه شده است (Noori *et al.*, 2009).

جدول ۱- درصد اهمیت خواص نوری و مکانیکی در محاسبه خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی

خواص نوری و مکانیکی	درصد اهمیت
ماتی	۲۵
درجه روشنی	۲۰
شاخص مقاومت به پارگی	۲۰
شاخص مقاومت به کشش	۲۵
شاخص مقاومت به ترکیدگی	۱۰
مجموع	۱۰۰

طراحی آزمایش و تجزیه‌وتحلیل آماری

روش پاسخ سطح مجموعه‌ای از روش‌های آماری است و در بهینه‌سازی فرایند به‌کار می‌رود که پاسخ موردنظر توسط تعدادی از متغیرها تحت تأثیر قرار می‌گیرد. با کمک چنین طرح آماری، تعداد آزمایش‌ها کاهش‌یافته و تمامی ضرایب مدل رگرسیون درجه دوم و اثر متقابل فاکتورها، قابل برآورد هستند. در روش پاسخ سطح تابع وابستگی بین متغیر وابسته (Y) و متغیرهای مستقل با رابطه چندجمله‌ای درجه دوم زیر بیان می‌شود.

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^{k} \beta_i X_i + \sum_{i=1}^{k} \beta_{ii} X_i^2 + \sum_{i=1}^{k} \sum_{i \prec j}^{k} \beta_{ij} X_i X_j + \varepsilon \qquad (۱)$$

در این رابطه، k بیانگر تعداد متغیرهای مستقل است. X_i و X_j بیانگر متغیرهای مستقل هستند. β_0 نشان‌دهنده ضریب ثابت، β_j و β_{jj} و β_{ij} به‌ترتیب نشان‌دهنده ضرایب اثرهای خطی، اثرهای مربعی و اثرهای متقابل می‌باشند (Sharifi *et al.*, 2018).

Archive of SID

www.SID.ir

برازش سطوح پاسخ و بهینه‌سازی فرایند مرکب‌زدایی با استفاده از نرم‌افزار Design Expert V6 انجام شد و تجزیه واریانس بر روی ضرایب مدل درجه دوم با این نرم‌افزار انجام شد. این پژوهش، به روش کاملاً تصادفی در قالب طرح مرکب مرکزی بهینه‌سازی شد. هر فاکتور در طرح مرکب مرکزی، در سه سطح مختلف (۱-، ۰ و ۱+)، دونقطه محوری (α+ و α-) و پنج تکرار در نقطه مرکزی برای تخمین خطای آزمایش و محاسبه تکرارپذیری مطالعه شد. بر اساس طرح مرکب مرکزی تعداد آزمایش‌های مورد نیاز (N) با رابطه زیر تعیین می‌شود.

$$N = 2^k + 2k + n_o \qquad (۲)$$

در این رابطه، k تعداد متغیرهای مستقل است، ۲k تعداد آزمایش‌هایی است که با استفاده از کدهای ۱+ و ۱- باید انجام شوند، ۲k تعداد آزمایش‌هایی است که با استفاده از یک متغیر با کد α+ و α- و بقیه متغیرها با کد صفر انجام شوند و n_o تعداد تکرار آزمایش‌هایی است که با استفاده از مقادیر متغیر مستقل با کد صفر باید انجام شوند (Amini Niaki & Ghazanfari Moghaddam, 2011). در این آزمایش n_o برابر ۵ در نظر گرفته شد، بنابراین ۱۳ آزمایش انجام شد (جدول ۳).

جدول ۲- پارامترهای مستقل و حدود تعیین‌شده برای آنها در روش طراحی مرکب مرکزی

عوامل	پارامترهای مستقل	حدود متغیرها				
		$-\alpha$	$+\alpha$	حد پایین	حد میانی	حد بالا
A	زمان فراصوت (دقیقه)	۵	۴۵	۱۵	۲۵	۳۵
B	دمای حمام فراصوت (^oC)	۲۵	۶۵	۳۵	۴۵	۵۵

جدول ۳- ماتریس طراحی آزمایش‌های مرکب مرکزی و پاسخ مربوط به آن

شماره آزمایش	زمان فراصوت (دقیقه)	دمای حمام فراصوت (oC)	خواص بهینه	
			واقعی	پیش‌بینی شده
۱	۲۵	۵۵	۳۹/۵	۴۱/۵۹
۲	۲۵	۳۵	۴۰	۳۹/۹
۳	۴۵	۶۵	۳۴/۲	۳۳/۸۵
۴	۴۵	۲۵	۳۰	۳۰/۱
۵	۵	۶۵	۲۶/۲	۲۶/۰۲
۶	۵	۲۵	۲۲/۷	۲۲/۹۸
۷	۱۵	۴۵	۳۸/۸۶	۳۹/۴۱
۸	۲۵	۴۵	۴۳	۴۲/۸۳
۹	۳۵	۴۵	۴۱/۷	۴۳/۱۴
۱۰	۲۵	۴۵	۴۳/۵	۴۲/۸۳
۱۱	۲۵	۴۵	۴۳/۲۵	۴۲/۸۳
۱۲	۲۵	۴۵	۴۳/۹	۴۲/۸۳
۱۳	۲۵	۴۵	۴۳/۵	۴۲/۸۳

Archive of SID

www.SID.ir

در جدول شماره ۲ متغیرهای مستقل فرایند (زمان فراصوت (دقیقه) و دمای حمام فراصوت) و مقادیر آنها که به‌منظور بررسی تأثیر شرایط به‌کارگیری فراصوت و بهینه‌سازی فرایند مذکور استفاده گردیدند، نشان داده‌شده است.

با استفاده از تحلیل واریانس مدل ارائه‌شده برای پاسخ مورد ارزیابی قرار گرفت و ضرایب رگرسیون برای جمله‌های خطی، برهم‌کنش و درجه ۲ تخمین زده شد و با استفاده از ضریب همگرایی (R^2) کیفیت برازش رابطه مدل بیان شد. ضریب تعیین یا برازش یکی از آزمون‌های مورد استفاده در تجزیه‌وتحلیل واریانس برای شناسایی مدل برتر است (Myers & Montgomery, 1995).

نتایج

برای مطالعه و انتخاب بهترین مدل برای تعیین رابطه خواص بهینه برای کاربری دوباره کاغذ روزنامه بازیافتی برای چاپ روزنامه سه آزمون شامل مجموع توان‌های دوم مدل دنباله‌ای، آزمون‌های نقطه برازش و خلاصه نتایج آماری مدل انجام گردید، که این نتایج در جدول ۴ ارائه شده است.

جدول ۴- آزمون مدل‌های ارائه شده برای تخمین خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی

منبع	مجموع مربعات	درجه آزادی	میانگین مجموع مربعات	مقدار F	مقدار P	توضیحات
مجموع توان‌های دوم مدل دنباله‌ای						
میانگین	۱۸۴۹۲/۶۱	۱	۱۸۴۹۲/۶۱			
خطی	۷۴/۴۶	۲	۳۷/۲۳	۰/۶۸	۰/۵۲۷۰	
2FI	۰/۱۲	۱	۰/۱۲	۰/۰۰۲۰۲	۰/۹۶۵۱	
درجه ۲	۵۳۵/۵۲	۲	۲۶۷/۷۶	۲۰۴/۳۱	<۰/۰۰۰۱	پیشنهادی
درجه ۳	۳/۰۴	۲	۱/۵۲	۱/۲۴	۰/۳۶۴۸	
باقیمانده	۶/۱۳	۵	۱/۲۳			
مجموع	۱۹۱۱۱/۸۸	۱۳	۱۴۷۰/۱۴			
آزمون‌های نقطه برازش						
خطی	۵۴۴/۳۷	۶	۹۰/۷۳	۸۱۰/۰۷	<۰/۰۰۰۱	
2FI	۵۴۴/۲۵	۵	۱۰۸/۸۵	۹۷۱/۸۷	<۰/۰۰۰۱	
درجه ۲	۸/۷۳	۳	۲/۹۱	۲۵/۹۷	۰/۰۰۴۴	پیشنهادی
درجه ۳	۵/۶۸	۱	۵/۶۸	۵۰/۷۲	۰/۰۰۲۱	
خطای خالص	۰/۴۵	۴	۰/۱۱			

خلاصه نتایج آماری مدل						
منبع	انحراف استاندارد	R^2	Adjusted R^2	Predicted R^2	PRESS	توضیحات
خطی	۷/۳۸	۰/۱۲۰۲	−۰/۰۵۵۷	−۱/۸۷۸۴	۱۷۸۲/۵۲	
2FI	۷/۷۸	۰/۱۲۰۴	−۰/۱۷۲۸	−۱۰/۳۸۶۶	۷۰۵۱/۴۲	
درجه ۲	۱/۱۴	۰/۹۸۵۲	۰/۹۷۴۶	۰/۷۷۷۷	۱۳۷/۶۶	پیشنهادی
درجه ۳	۱/۱۱	۰/۹۹۰۱	۰/۹۷۶۲	−۱۴/۵۳۸۴	۹۶۲۲/۵۴	

Archive of SID

www.SID.ir

آنالیز واریانس (ANOVA) برای بررسی میزان تأثیر عامل‌های سنتز و تأثیر متقابل هریک استفاده شده است. نتایج انجام این آنالیز در جدول ۵ ارائه شده است. نتایج به‌روشنی نشان می‌دهند که پاسخ مورد نظر تحت تأثیر متغیرهای انتخاب شده برای این مطالعه می‌باشد.

جدول ۵- آنالیز واریانس (ANOVA) برای تعیین خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی با کمک روش طراحی مرکب مرکزی

منبع	مجموع مربعات	درجه آزادی	میانگین مربعات	مقدار F	مقدار P
A – زمان فراصوت (دقیقه)	۶۲/۱۲	۱	۶۲/۱۲	۴۷/۴۰	<۰/۰۰۰۱
B – دمای حمام فراصوت (**oC**)	۱۲/۳۳	۱	۱۲/۳۳	۹/۴۱	۰/۰۱۸۱
AB	۰/۱۲	۱	۰/۱۲	۰/۰۹۳	۰/۷۶۸۷
A2	۹/۵۲	۱	۹/۵۲	۷/۲۷	۰/۰۳۰۸
B2	۱۷/۰۸	۱	۱۷/۰۸	۱۳/۰۴	۰/۰۰۸۶

بعد از آزمون ANOVA مشاهده گردید که عوامل A و B و همچنین A^2 و B^2 در تعیین خواص بهینه تأثیر دارند. مدل نمایی نهایی استخراج شده از این آزمایش‌های انجام شده به صورت زیر می‌باشد.

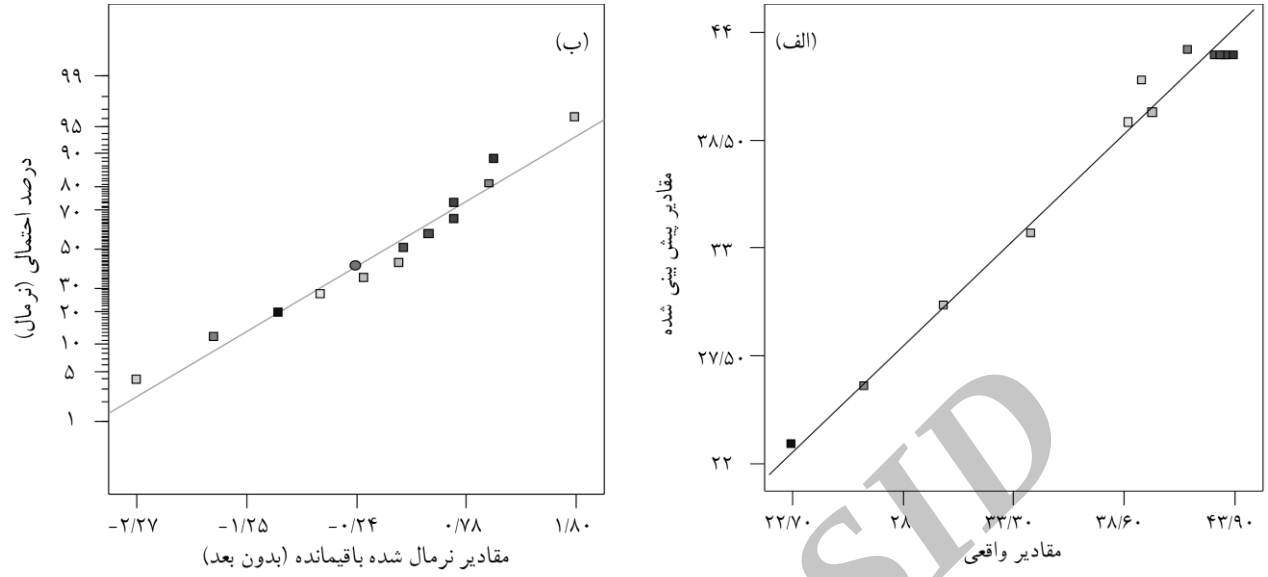
$$Y\,\% = -17.23305 + 0.94721X_A + 1.95486X_B - 0.0156X_A^2 - 0.0209X_B^2 + 4.375\times10^{-4}X_AX_B \qquad (۳)$$

که در این رابطه X_i نشان‌دهنده مقادیر واقعی برای عوامل A و B می‌باشد. علامت مثبت ضرایب رگرسیون تخمین زده شده حاصل از مدل طرح مرکب مرکزی به مفهوم تأثیر مستقیم متغیرهای مستقل بر متغیر پاسخ و علامت منفی مدل به مفهوم تأثیر غیرمستقیم متغیرهای مستقل بر متغیرهای پاسخ بود. همچنین مقدار ضرایب نشان‌دهنده این بود که آن متغیر مستقل بیشترین تأثیر را بر مقدار متغیر پاسخ دارد (Chen *et al.*,2008).

شکل ۱ (الف) نتایج خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی محاسبه شده را برحسب نتایج حاصل از رابطه ۲ نشان می‌دهد. نمودار احتمال نرمال- خطای پاسخ‌ها در شکل ۱ (ب) آورده شده است. این نمودار نشان‌دهنده نحوه پراکنده شدن خطاهاست. خطاها اختلاف بین مقادیر واقعی و مقادیر پیش‌بینی شده پاسخ‌ها توسط مدل هستند.

Archive of SID

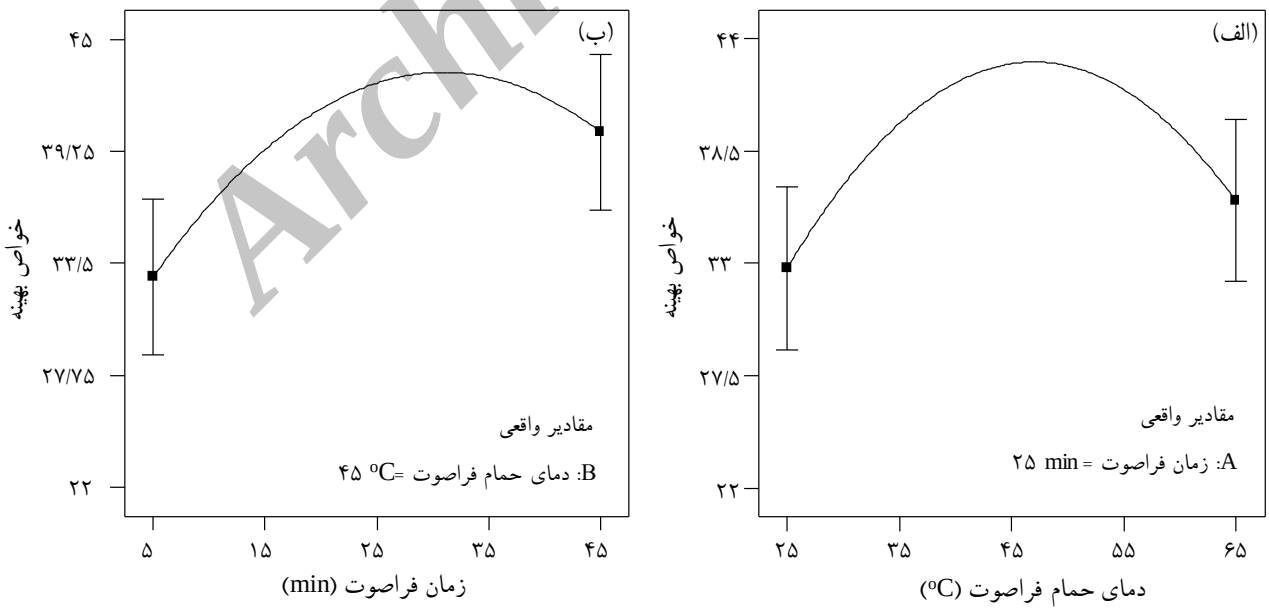
www.SID.ir



شکل ۱- (الف) مقادیر آزمایشگاهی برحسب مقادیر پیش‌بینی‌شده توسط مدل ارائه شده، (ب) نمودار احتمال نرمال-خطای پاسخ برای مدل تعیین خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی

اثر متغیرهای اصلی بر خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی

اثر عوامل اصلی (A و B) بر روی خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی در شکل ۲ نشان داده‌شده است. با توجه به شکل ۲ (الف) و (ب) می‌توان نتیجه گرفت که هر دو متغیر دارای تأثیر بر خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی است.



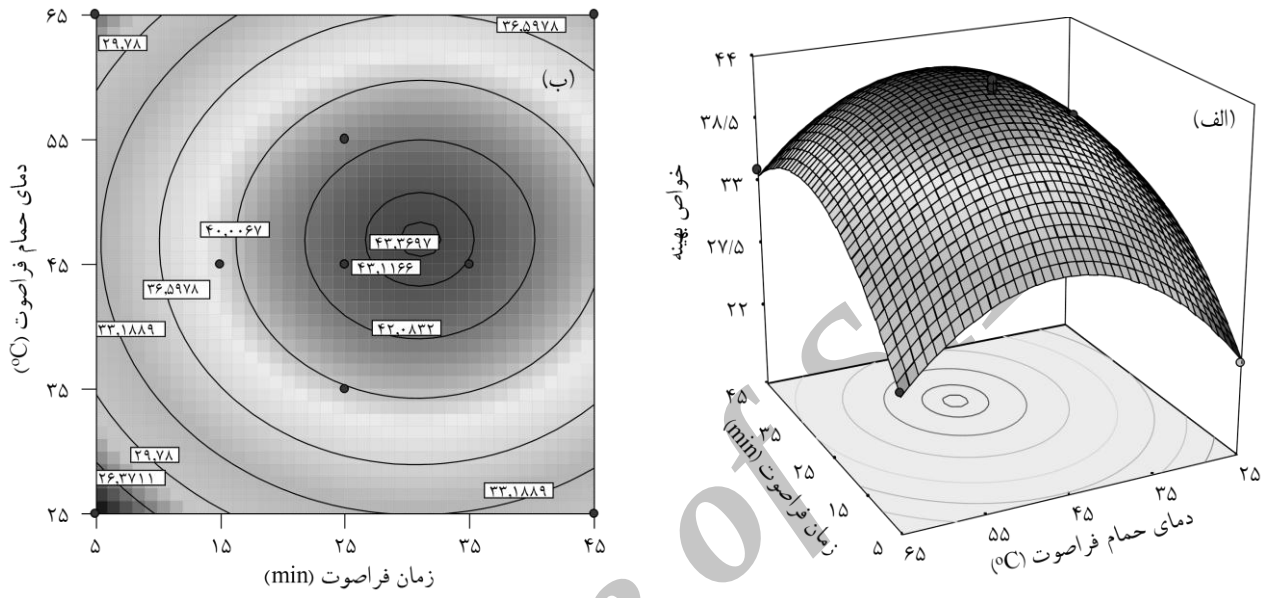
شکل ۲- بررسی تأثیر میانگین عوامل اصلی بر روی خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی

Archive of SID

www.SID.ir

از نمای سه‌بعدی و سطحی پاسخ خروجی برای مطالعه تأثیر متغیرهای موردمطالعه بر روی خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی استفاده شد (مطابق با شکل ۳). در ضمن از این شکل ها برای تعیین بهترین شرایط برای داشتن بیشترین مقدار خواص مکانیکی و نوری نیز می‌توان استفاده نمود.

به‌منظور اثبات درستی رابطه پیش‌بینی، آزمایش‌هایی انجام شده که نتایج آن در جدول ۶ آورده شده است.



شکل ۳- نمای سه‌بعدی (الف) و سطحی (ب) برای اثر متقابل متغیرهای مستقل برای تعیین خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی

جدول ۶- مقایسه مقادیر تجربی و پیش‌بینی شده توسط رابطه ارائه شده برای تعیین خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی

شماره آزمایش	زمان فراصوت (دقیقه)	دمای حمام فراصوت (°C)	خواص بهینه	پیش‌بینی شده	|خطا| (٪)
۱	۲۰	۳۰	۳۶/۳۸	۳۵/۵۷	۲/۲۷
۲	۳۵	۴۰	۴۳/۲۴	۴۲/۱۸	۲/۵۱
۳	۱۰	۵۰	۳۶/۸۷	۳۶/۳۹	۱/۳۱

بحث

نتایج به‌دست‌آمده از این پژوهش نشان می‌دهند که مدل درجه دوم بیشینه مقدار Adjusted R^2 و Predicted R^2 را دارا می‌باشد و از سویی مقدار متغیر R^2 آن برابر ۰/۹۸۵۲ به‌دست‌آمده است؛ بنابراین می‌توان با استفاده از این نتایج اثبات نمود که ۹۸/۵۲٪ از مقادیر توسط رابطه ارائه شده (رابطه شماره ۳) پیش‌بینی می‌گردد.

بر اساس رابطه شماره ۳، تأثیر پارامترهای زمان و دمای حمام فراصوت معنی‌دار بوده و پارامتر زمان فراصوت بیشترین تأثیر خطی مثبت را در بین متغیرها داشته، همچنین اثر متقابل زمان فراصوت و دمای حمام فراصوت معنی دار نمی‌باشد (مطابق با مقادیر F).

Archive of SID

www.SID.ir

همانطورکه در شکل ۱ (الف) مشاهده می‌شود تجمع نقاط در اطراف خط وسط نشان می‌دهد که نتایج آزمایشگاهی با نتایج به‌دست آمده از رابطه همخوانی خوبی دارد و رابطه ارائه شده به‌خوبی نتایج را پوشش می‌دهد (Sharifi *et al.*,2018). مطابق با نمودار احتمال نرمال- خطای پاسخ‌ها (شکل ۱ (ب)) توزیع مناسب و نرمال نقاط اطراف خط راست نشان‌دهنده توزیع مناسب خطاها هستند. با توجه به این نمودار از آنجایی که خطاها به‌صورت نرمال پراکنده شده‌اند، مدل ارائه شده معنادار بوده و پاسخ‌های پیش‌بینی شده با اطلاعات واقعی سازگاری دارد (Lu *et al.*, 2009).

با توجه به شکل ۲ (الف) و (ب) می‌توان نتیجه گرفت که هر دو متغیر دارای تأثیر بر خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی است. در این بین متغیر مستقل زمان فراصوت بیشترین تأثیر را دارد ($F= ۴۷/۴۰$ و $P< ۰/۰۰۰۱$). در مطالعه دمای حمام فراصوت مطابق با شکل ۲ (الف) با افزایش این دما تا مقادیر میانی $۴۵^{o}C$ خواص بهینه افزایش و با افزایش دما منجر به کاهش خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی می‌گردد. افزایش دما سبب تسریع تخریب ذرات می‌گردد. از سوی دیگر دما بر روی اندازه ذرات مرکب تأثیر بسزایی دارد، به طوری‌که در تیمارهایی با دمای پایین تعداد زیادی ذرات با اندازه کوچک تولید گردیده و دماهای بالاتر منجر به تولید ذرات به‌نسبت بزرگ‌تر می‌گردد (Thampson & Manning, 2005 ؛ Thampson *et al.*,2000). در این تحقیق نیز با افزایش دمای بالاتر از $۴۵^{o}C$ درهم شکستن ذرات مرکب کاهش‌یافته و در خمیرکاغذ بازیافتی نهایی ذرات مرکبی با اندازه درشت‌تر داریم، درنتیجه پس از مرکب‌زدایی شیمیایی به‌مقدار بیشتری در ساختار کاغذ باقی مانده و این امر سبب کاهش خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی در دماهای بالاتر می‌گردد (Gaquere-Parker *et al.*,2009).

با بررسی زمان قرارگیری در معرض امواج فراصوت مطابق با شکل ۲ (ب) در ابتدا با افزایش زمان تا ۱۵ دقیقه افزایش خواص بهینه و در ادامه با افزایش زمان کاهش این پارامتر با شیب ملایم‌تری مشاهده می‌گردد. امواج فراصوت ذرات مرکب را تا حدی تخریب و خرد نموده و همچنین اتصال بین آنها را با سطوح الیاف ضعیف می‌کند، بدین‌ترتیب قدرت تأثیر روش شیمیایی را بهبود می‌بخشد. دلیل کاهش خواص بهینه با افزایش زمان تیمار از ۲۵ تا ۴۵ دقیقه، اختلاط دوباره ذرات مرکب با الیاف و رسوب احتمالی ذرات مرکب در درون شبکه الیاف و در نتیجه کاهش خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی می‌باشد (Gaquere-Parker *et al.*, 2009). علاوه براین با افزایش زمان قرارگیری در معرض امواج فراصوت تخریب ساختارهای فیبری به‌طور قابل‌ملاحظه‌ای افزایش می‌یابد (Zhao *et al.*, 2009). مطابق با شکل ۴، درنهایت می‌توان بیان نمود که در مقادیر متوسط زمان فراصوت و مقادیر متوسط دمای حمام فراصوت بیشترین مقادیر خواص بهینه نمونه کاغذهای روزنامه بازیافتی مشاهده می‌گردد.

نتایج آزمایش‌های انجام شده برای اثبات درستی رابطه پیش‌بینی (جدول ۶) تأیید می‌نماید که نتایج پیش‌بینی شده به‌خوبی با نتایج تجربی مطابقت دارد. شرایط بهینه پیشنهاد شده توسط نرم افزار برای بهترین مقدار ارائه شده برای خواص بهینه کاغذ روزنامه بازیافتی (۴۳/۴۲) دمای حمام فراصوت $۴۷^{o}C$ و زمان فراصوت ۳۱ دقیقه می‌باشد.

سپاسگزاری

از معاون محترم پژوهشی دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی ساری به‌دلیل حمایت‌های مادی و معنوی از این طرح پژوهشی (کد طرح: ۰۵-۱۳۹۶-۰۴) تشکر و قدردانی می‌گردد.

منابع مورد استفاده

-Amini Niaki, S. R. and Ghazanfari Moghaddam, A., 2011. Optimization of lignin content reduction in date palm fibers by Response Surface Methodology and desirability function. Journal of Separation Science and Engineering, 3(1): 31-40.

-Aslan, N., 2007. Application of response surface methodology and central composite rotatable design for modeling the influence of some operating

Archive of SID
www.SID.ir

Paper Industry, TAPPI, 3: 187-200.
-Mirshokrai, A., 2001. Guide to Waste Paper. Tehran Aiezh Press. 2nd Edition, 140p.
-Myers, R.H. and Montgomery, D.C., 1995. Response Surface Methodology: Process and Product Optimization Using Designed Experiments. John Wiley and Sons, New York, 728p.
-Noori, H., Hosseini, S.Z., Ghasemian, A., Vaziri, V. and Kabiri, E., 2009. The influence of refining on the mechanical and optical properties of recycled newspaper, Journal of Wood & Forest Science and Technology, 16(2).
-Sharifi, H., Zabihzadeh, S. M. and Ghorbani, M., 2018. The application of response surface methodology on the synthesis of conductive polyaniline/cellulosic fiber nanocomposites. Carbohydrate Polymers, 194: 384–394.
-Shostrom, A., 2007. Principles of chemistry wood, Seyed Ahmad Mirshokraei Translation, Academic Publishing Center, Tehran, 100-170 p. (In Persian).
-Sharifi Pajaie, H. and Taghizadeh, M., 2015. Optimization of nano-sized SAPO-34 synthesis in methanol-to-olefin reaction by response surface methodology. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 24: 59-70.
-Tatsumi, D., Higashihara, T., Kawamura, S. and Matsumoto, T., 2000. Ultrasonic treatment to improve the quality of recycled pulp fiber. Journal of Wood Science, 46: 405-409.
-Wu, C.F.J., and Hamada, M. 2009. Experiments: planning, analysis, and parameter design optimization. Second edition, John Wiley and Sons, New York, 853p.
-Xing, M., Yao, S., Zhou, S., Zhao, Q., Hang Lin, J. and Wen Pu, J., 2010. The influence of ultrasonic treatment on the bleaching of CMP revealed by surface and chemical structural analyses, Bioresources, 5(3): 1353-1365.
-Zhao, Q., Pu, J.W., Xing, M. and Zhou, S. k., 2009. Influence of ultrasonic treatment on fiber morphology structure in bleaching process, China Pulp & Paper Industry, 30(2), 28-33.
variables of a multi-gravity separator for chromite concentration. Powder Technology, 86: 769–776.
-Akbarpour, I., Resalati, H. and Saraeian, A.R., 2011. Investigation on the appearance properties of waste newspaper deinked by cellulase compared to chemical method. Iranian Journal of Natural Resources, 63(4): 331-341.
-Bajpai, P., 2014. Recycling and Deinking of Recovered Paper. Elsevier, 240p.
-Box, G.E.P. and Behnken, D.W., 1960. Some New Three Level Designs for the Study of Quantitative Variables, Technometrics, 2: 455-475.
-Box, G.E.P. and Hunter, J.S., 1957. Multi-factor experimental designs for exploring response surfaces. The Annals of Mathematical Statistics. 28(1): 195-241.
-Chen, X., Du, W. and Liu, D., 2008. Response surface optimization of biocatalytic biodiesel production with acid oil. Biochemical Engineering Journal, 40: 423-429.
-Clarke, G.M. and Kempson, R. E., 1997. Introduction to the Design and Analysis of Experiments, Arnold, London, 334p.
-Cornell, J.A., 1990. How to Apply Response Surface Methodology. second ed., American Society for Quality Control, Wisconsin, 82p.
-Gaquere-Parker, A.C., Ahmed, A., Isola, T., Marong, B., Shacklady, C. and Tchoua, P., 2009. Temperature effect on an ultrasound-assisted paper de-inking process. Ultrasonics Sonochemistry, 16: 698–703.
-Kang, T., 2007. Role of External Fibrilation in Pulp and Paper Properties. Ph.D. thesis, Department of Forest Products Technology, Helsinki University of Technology, Espoo, Finland.
-Lu, S. Y., Qian, J. Q., Zhang, G. W., Wei, D. Y., Wu, G. F. and Yi, B. P., 2009. Application of statistical method to evaluate immobilization variables of trypsin entrapped with sol-gel method. Journal of Biochemical Technology, 1(3), 79–84.
-Manson, W., D., Reeves, H, H. and Kocurek, M.J., 1992. Pulp and Paper Manufacture, Vol 6. Stock Preparation, Joint Text Book Committee of the

Archive of SID

www.SID.ir

Use of central composite design for optimization of ultrasonic pre-treatment parameters on chemical deinking of old newspaper

S.H. Sharifi[1*] and N. Nazarnezhad[2]

1*-Corresponding author, Assist. Prof., Wood and Paper Science Department, Faculty of Natural Resources, Sari Agricultural Sciences and Natural Resource University Sari, Iran, Email: h.p.sharifi@sanru.ac.ir

2-Assoc. Prof., Wood and Paper Science Department, Faculty of Natural Resources, Sari Agricultural Sciences and Natural Resource University Sari, Iran

Received: June, 2018 Accepted: Oct., 2018

Abstract

To reuse recycled cellulosic fibers in paper production, contamination and other impurities of the fibers is greatly removed using a de-inking stage which is considered as a supplementary step in waste paper recycling technology. The effect of using ultrasonic pretreatment on the deinking of old newspapers was investigated utilizing the common conventional chemical method in this research work. Experimental design method was used to optimize the amount of ultrasonic bath temperature and sonication time. Therefore, 13 tests were designed using Response Surface Methodology (RSM) and Central Composite Design with Design Expert 7.0.0 Trial software. Ultrasonic bath temperature and sonication time at three levels (1, 0 and 1+) and two axial points (α + and α-) were used as independent variables, and the optical and mechanical properties of handsheets were used as dependent variables. Response surfaces and contour plots were served to show the interaction between the independent variables and the response variable. ANOVA test showed that the quadratic model is the best model to explain the interaction among the studied variables. The predicted values of the obtained model had much conformity with the experimental results (R2=0.98). According to ANOVA results, it can be concluded that the effect of each of the variables on the optimal properties is significant and the ultrasonic time is the most effective factor on the response. According to the results, the proposed optimum conditions to achieve the highest amount of mechanical and optical properties (43.43) are the ultrasonic bath temperature 47 ^{o}C and the ultrasonic time of 31 min.

Keywords: Old newspaper, deinking, ultrasonic, optical and mechanical properties, central composite design.

Archive of SID

www.SID.ir