

ارزیابی عملکرد الکترودیونیزاسیون پیوسته به منظور حذف استرانسیم و سزیم از محلولهای آبی با استفاده از روش تاگوچی

فاضل ضحاکی فر'، علیرضا کشتکار*'، امیرسعید شیرانی'، ادیب ظاهری'

۱. پژوهشکدهی چرخهی سوخت هستهای، پژوهشگاه علوم و فنون هستهای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸٤۸۲–۱۱۳۵۵، تهران ـ ایران ۲. دانشکدهی مهندسی هستهای، دانشگاه شهید بهشتی، صندوق پستی: ۱۱۹۳۹۵۳۱۱۳۱۳، تهران ـ ایران

چکیدد: در این مطالعه، ابتدا تأثیر زمان بر بازده ی حذف استرانسیم از محلول های آبی به روش الکترودیونیز اسیون پیوسته با رزین پروتونه شده بررسی شد. سپس با استفاده از روش طراحی آزمایش تاگوچی، یک آرایه ی متعامد ۲۰ برای بررسی تأثیر ولتاژ، دبی و غلظت خوراک به منظور حذف استرانسیم و سزیم با روش الکترودیونیز اسیون پیوسته با رزین اشباع شده به کار گرفته شد. از روش آنالیز واریانس برای ارزیابی تأثیر نسبی هر فاکتور استفاده شد. عملکرد سیستم الکترودیونیز اسیون پیوسته با رزین اشباع شده به کار گرفته شد. از روش آنالیز واریانس برای ارزیابی تأثیر را بر مر فاکتور استفاده شد. عملکرد سیستم الکترودیونیز اسیون با افزایش ولتاژ به کار رفته و کاهش دبی، بهبود یافت. ولتاژ، بیش ترین تأثیر را بر عملکرد الکترودیونیز اسیون پیوسته داشت و غلظت، تأثیر محسوسی بر حذف استرانسیم و سزیم نداشت. حذف این دو عنصر از محلول های دوجزئی نیز بررسی شد و در این آزمایش نیز بازده ی حذف استرانسیم از سزیم بیش تر بود. نتایج نشان داد که روش الکترودیونیز اسیون یک روش مؤثر برای حذف استرانسیم و سزیم از مطول های آبی است.

کلیدواژه ها: الکترودیونیزاسیون، استرانسیم، سزیم، محلول های آبی، تا گوچی، آنالیز واریانس

Performance Evaluation of Continuous Electrodeionization (CEDI) for Removal of Strontium and Cesium from Aqueous Solutions Using Taguchi Method

F. Zahakifar¹, A.R. Keshtkar^{*1}, A.S. Shirani², A. Zaheri¹ 1. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-8486, Tehran – Iran 2. Nuclear Engineering Department, Shahid Beheshti University, P.O.Box: 1983963113, Tehran – Iran

Abstract: In this study, initialy the effect of time on the removal of strontium from aqueous solutions by continuous electrodeionization (CEDI) with H^+ form resin was investigated. Then, by using an orthogonal L₉ array in the Taguchi method, the effect of voltage, flow rate and feed concentration on the removal of Sr and Cs from aqueous solutions by the CEDI with the saturated resin was applied. The analysis of variance (ANOVA) method was used to evaluate the relative effect corresponding to each factor. The results showed that by increasing the applied voltage and decreasing the flow rate improve the performance. The effect of input voltage was more significant and the feed concentration did not have any perceptible effect on the Sr and Cs removal efficiency. The removal of both elements from binary solutions were also investigated. In this experiment, the removal efficiency of Sr was also found to be higher than those of Cs. Based on the results, electrodeionization was considered to be effective for Sr and Cs removal from aqueous solutions.

Keywords: Electrodeionization, Strontium, Cesium, Aqueous Solutions, Taguchi, ANOVA

^{*}email: akeshtkar@aeoi.org.ir



۱. مقدمه

افزایش فعالیت آزمایشگاهها و نیروگاههای هستهای موجب افزایش آزاد شدن پسمانهای هستهای به محیط زیست شده است [۱]. پسمانهای هستهای در تأسیسات هستهای مختلفی تولید میشوند. این پسمانها در دامنه یگستردهای از غلظت و با ویژگیهای شیمیایی و فیزیکی متفاوتی به وجود می آیند [۲]. در مدیریت پسمانهای هستهای، حذف هستههای پر توزا با نیمه عمر بالا دارای اهمیت زیادی است [۳].

استرانسیم و سزیم از محصولات مهم شکافت هستهای موجود در پساب پرتوزای نیروگاههای هستهای هستند که به دلیل نیمهعمر طولانی و حلالیت بالا در محلولهای آبی، حذف آنها از این پسابها توجه ویژهای می طلبد [۴، ۵].

در دهه های گذشته، حذف هسته های پرتوزا همواره از چالش های پیش روی دانشمندان محیط زیست بوده است [۶]. تبادل یون، رسوب شیمیایی، استخراج حلالی، بیوتکنولوژی و فرایندهای غشایی، از روش های آمایش به کار گرفته شده در صنایع هستهای هستند. قبل از انتخاب روش آمایش، باید هزینه هایی چون سرمایه گذاری و عملیات را در نظر گرفت [۲]. در میان این روش ها، تبادل یون به دلیل بازده ی آلودگی زدایی بالا، سادگی و آسانی عملیات، کاربرد گسترده ای در آمایش پساب های پرتوزا دارد. این روش به دلیل این که در حذف پساب های پرتوزا و غیر پرتوزا انتخاب پذیر نیست؛ حجم زیادی از پسمان های پرتوزا را تولید می کند. معمولاً رزین های کار کرده ی طولانی در داخل خود نیروگاه اتمی نگه داری می شوند [۷]. برای جلو گیری از تولید مقادیر زیاد پسمان هامد می توان از روش

در یک سیستم الکترودیونیز اسیون همانند سیستم الکترودیالیز، غشاهای تبادل آنیون و کاتیون میان الکترودها قرار می گیرند. در سیستم الکترودیونیز اسیون، به منظور کاهش مقاومت الکتریکی و افزایش تبادل کاتیونها و آنیونها تحت جریان الکتریکی مستقیم، محفظهی رقیق کننده از رزینهای تبادل کاتیون و تبادل آنیون پر می شود. هم چون سیستم الکترودیالیز، غشاهای تبادل کاتیون و تبادل آنیون در اطراف محفظهی رقیق کننده و به ترتیب در سمت کاتد و آند قرار می گیرند.

زمانی که محلول خوراک به محفظهی رقیق کننده پمپ می شود و اختلاف پتانسيل الكتريكي بين الكترودها برقرار ميشود، کاتیون ها به سمت کاتد و آنیون ها به سمت آند انتقال می یابند. در نتیجه، غلظت یـون در محفظـههـای الکتـرودی افـزایش، و در محفظه ی رقیق کننده کاهش می یابد. در حین کار سیستم الكتروديونيزاسيون، به دليل واكنش آبكافت، يونهاي هيـدروژن و هيدرو كسيد توليد مي شوند. اين يون ها به طور پيوسته رزين هاي تبادل يون را بدون استفاده از مواد شيميايي احيا مي كنند. به دليـل این که در فرایند الکترودیونیزاسیون هیچ گونه مواد شیمیایی بـرای احیای رزین های تبادل یون استفاده نمی شود، این روش یک روش سازگار با محیطزیست است [۸-۱۲]. الکترودیونیز اسیون هزینه های عملیاتی کم تری از روش های متداول تبادل یون دارد [۱۳]. پرهیز از افزودن احیاکننده های شیمیایی برای احیای رزین و حذف هزینه های خرید، انتقال و انبار احیاکننده ها، مزيت بارز روش الكتروديونيزاسيون در كاربرد صنعتي است [۱۴، ۱۵].

روش الکترودیونیزاسیون برای خالص سازی آب و حذف یون هایی نظیر *NA، 'K+ ،SO، 'Cl و -NO' از آب گسترش یافته، و تجاری شده است [۱۹–۱۸]. هم چنین حذف عناصری مانند *Co'، *Ni'، ،Ni^۲ از محلول های رقیق گزارش شده است [۱۹–۲۴].

هدف اصلی این مطالعه، بررسی توانیایی روش الکترودیونیزاسیون برای حذف پیوستهی استرانسیم و سزیم از محلولهای آبی در یک واحد آزمایشگاهی بود. این پژوهش را می توان اولین بررسی حذف استرانسیم و سزیم از محلولهای آبی با استفاده از روش الکترودیونیزاسیون قلمداد کرد.

۲. مواد و روشها ۱.۲ واحد آزمایشگاهی

الگوی واحد آزمایشگاهی الکترودیونیزاسیون ساخته شده در شکل ۱ نشان داده شده است. واحد آزمایشگاهی الکترودیونیزاسیون شامل بخشهای مختلفی است. چند مخزن برای نگهداری خوراک و محصول در نظر گرفته شد. از طریق پمپ پریستالتیک، محلولها به محفظه غشایی وارد می شوند. محفظه ی غشایی، بخش اصلی هر فرایند غشایی، و دارای ۳

محفظه است. محفظه ی رقیق کننده (میانی) محل ورود خوراک است و محلول عبوري از آن تصفيه مي شود. اين محفظه با دو غشای تبادل کاتیونی و آنیونی از دو محفظهی دیگر جدا می شود. ابعاد سطح عملياتي داخلي محفظه ^۲ ۵cm× و ضخامت آن ۵mm است. دو محفظه ی الکتر ودی (آندی و کاتدی) کاملاً مشابه در دو طرف محفظ می رقیق کننده برای قرار گرفتن الکترودها در نظر گرفته شد. جنس، ابعاد و چگونگی ورود و خروج محلولها در محفظههاي الكترودي مشابه محفظهي رقیق کننده است، با این تفاوت که این دو محفظه، از یک طرف در تماس با غشا و از طرف دیگر بسته، و در تماس با الکترود هستند. بنابراین حجم محفظهی رقیق کننده ۱۲٫۵ cm^۳، و سطح هر كدام از الكترودها ۵cm^۲ مقدار ۲۲/۵ cm^۳ رزين تبادل كاتيون Amberlite IR120 ساخت شركت BDH در محفظ می رقیق کننده قرار داده شد. برای جلو گیری از بروز مشکل رسوب کمپلکس های تشکیل شده بر روی غشا و رزین، پیشنهاد شده است که از رزین های اسیدی کاتیونی استفاده شود Amberlite IR 120 در پژوهش های فراوانی برای روش الكتروديونيزاسيون استفاده شده است [۲۶-۲۹].

غشای تبادل کاتیونی در سمت کاتد برای عبور کاتیونها و انتقال آنها از محفظهی رقیق کننده به محفظهی کاتدی، و غشای تبادل آنیونی در سمت آند برای عبور آنیونها و انتقال آنها از محفظهی رقیق کننده به محفظه آندی قرار دارد. این غشاها ساخت شرکت چینی Zhejiang Qianqiu Group هستند که مشخصات فنی آن در جدول ۱ ارائه شده است. سطح مؤثر هر کدام از غشاها ^۲ ۵ст



شکل ۱. الگویی از واحد آزمایشگاهی الکترودیونیزاسیون ساخته شده.

جدول ۱. ویژگیهای فیزیکی و شیمیایی غشاهای تبادل یونی

۲±•,۲	ظرفيت تبادل يون (meq/g)
%₽\$≤	انتخاب پذيري*
€,۵≥	مقاومت سطح غشا (Ω.cm)
۰٫٣	ضخامت (mm)
¢ ≤	استحکام (kg/cm
$arphi$ \geq	پایداری حرارتی (C°)

* منظور از انتخاب پذیری، تمایز بین کاتیون و آنیون است و نه تمایز بین کاتیونهای مختلف، یا بین آنیونهای مختلف.

از فولاد ضدزنگ با سطح مؤثر '۵cm×۵ به شکل الکترودهای آند و کاتد استفاده شد. یک منبع تغذیهی مستقیم، وظیفهی تأمین برق سیستم را بر عهده داشت.

۲.۲ روش انجام آزمایشها

بىراى تهيـه محلـول سـزيم و استرانسـيم، بـه ترتيـب نمـكهـاى ٩(CsNO) و ٢[(NO٣)] (تهيـه شـده از مـرك) در آب مقطـر حل شد.

رزین های تبادل کاتیون پس از شستشو با آب مقطر بـه مـدت ۴۵ min در اسـید سـولفوریک ۱۰٪ غوطـهور، و هـمزده شـد تـا پروتونه شود.

غشاها به مدت ۲۴h در یک محلول ۱۹٫۱۸ از KOH به صورت غوط هور قرار گرفت. غشاها از محلول جدا، و چندین مرتبه با آب مقطر شستشو داده، و بر روی سیستم الکترودیونیزاسیون نصب شد.

در بخش اول از آزمایش ها، برای بررسی اثر زمان بر بازدهی حذف استرانسیم، ابتدا رزین های تبادل کاتیون پروتونه شده در محفظ می رقیق کننده ی سیستم قرار داده، و بازده ی حذف استرانسیم با زمان برای ۳ شرایط متفاوت بررسی شد.

در بخش دوم از آزمایش ها، پارامتر های مؤثر بر حذف یون در محلول تک جزئی استرانسیم یا سزیم بررسی شد. برای کاهش زمان آزمایش، ابتدا رزین ها کاملاً از یون مورد نظر اشباع شدند. برای این منظور، خوراک غلیظ در حالتی که منبع تغذیه خاموش بود، به طور پیوسته وارد سیستم شد. پس از اشباع رزین، منبع تغذیه روشن شد تا همزمان با به کار رفتن نیروی محرکه الکتریکی برای حذف یون ها، احیای الکتروشیمیایی رزین ها با یون های هیدروکسیل تولیدی از واکنش آبکافت نیز انجام شود.

سپس فرایند الکترودیونیزاسیون به حالت پایا رسید. رسیدن به شرایط پایا برای آزمایش های استرانسیم و سزیم به ترتیب ۳۰۰ و ۶۰۰min طول کشید.

برای انتخاب محدودهی مناسب و سطوح پارامترها قبل از آزمایشها، محدودههای مختلفی آزمایش شدند. پس از دیده شدن حداقل و حداکثر بازدهی حذف و امکان مقایسهی بازده حذف استرانسیم و سزیم، مناسب ترین محدوده برای انجام آزمایشها انتخاب شد.

در بخش سوم از آزمایش ها، بازدهی حذف استرانسیم و سزیم از محلول دوجزئی نیز بررسی شد.

۳.۲ اندازه گیریهای تجربی

برای تعیین غلظت سزیم و استرانسیم به ترتیب از طیف سنج جذب اتمی (AAS, VARIAN, SPECTRA A200, Australia) و طیف سنج نشر اتمی - پلاسمای جفت شده ی القایی (ICP-AES, VARIAN, LIBERTY150AX TURBO, Australia) pH استفاده شد. مقدار اسیدیته نیز با استفاده از دستگاه سنجش Metrohm مدل Metrohm اندازه گیری شد.

2.۲ طراحی آزمایش ۱.٤.۲ روش طراحی آزمایش تاگوچی

برای طراحی اصولی آزمایش ها، روش تاگوچی به کار گرفته شد. با استفاده از روش تاگوچی می توان تأثیر هر کدام از پارامترها را به دست آورد. هم چنین با استفاده از این روش می توان سطح بهینه یپارامترهای مؤثر را پیش بینی کرد [۳۰]. این طراحی آزمایش کمک می کند تا بیش ترین اطلاعات از کم ترین تعداد آزمایش ها به دست آید.

در این مطالعه، یک آرایهی متعامد La در طراحی آزمایش انتخاب شد. ولتاژ، دبی و غلظت خوراک سه پارامتر هدف است که هر یک در سه سطح بررسی شد.

۲.٤.۲ تجزیه و تحلیل آماری در تحلیل پاسخها به روش تاگوچی، نمودارهای نسبت سیگنال به نویز (S/N) ارائه می شود. هر چه معیار S/N بزرگ تر باشد، بهتر است. ایـن بـه معنی آن است کـه سطحی از پـارامتر کـه دارای

بیش ترین نسبت S/N باشد، متناسب با سطح بهینهی آن پارامتر است [۳۱]. مقدار نسبت S/N برای حالتی که مقدار پاسخ بزرگئ تر موردنظر باشد، از رابطهی (۱) به دست می آید:

$$SN = -1 \cdot \log(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{Y_i})$$
(1)

در رابطهی (۱)، n تعداد آزمایش، و Y_i مقدار پاسخ موردنظر فرایند در آزمایش شمارهی i است. پاسخ موردنظر در آزمایش ها بازدهی حذف یون (R) است که از رابطهی (۲) به دست می آید:

$$R(\%) = \frac{C_i - C_o}{C_i} \times \cdots$$
 (Y)

در رابطهی (۲)، *C_i* مقدار غلظت خوراک ورودی به محفظه غشایی و *C_o* مقدار غلظت خروجی از محفظهی رقیق کننده است. از آنالیز واریانس برای تعیین اثر پارامترهای مستقل بر بازدهی حذف استرانسیم و سزیم از محلولهای تک جزئی و همبستگی پارامترها استفاده شد. هم چنین درصد تأثیر (توزیع) هر پارامتر با استفاده از آنالیز واریانس به دست آمد.

۳. نتایج و بحث

۱.۳ بررسی اثـر زمـان بـر بـازدهی حــذف استرانسـیم بـا الکترودیونیزاسیون پیوسته

رزین تبادل یونی در حالتی که پروتونه باشد، جذب بالایی دارد. برای بررسی تراثیر زمان بر بازده ی حذف استرانسیم، آزمایش ها در سه شرایط متفاوت (ml/mi ۵، ۷۵، ا/ms/۱) (۵۰ mg/۱ ۵۰ ۵۸، ۱/mi/۱) و (۵۰۰/mi/۱۰ ۵۰/۲، ۱/۰۰۰) انجام گرفت. در این آزمایش ها از رزین پروتونه شده استفاده شد و آزمایش ها تا رسیدن به شرایط پایا ادامه یافت. برای هر سه شرایط در زمان های اولیه، حذف استرانسیم تقریباً کامل انجام شد و بازده ی حذف استرانسیم تقریباً کامل انجام شد ادامه، بازده حذف استرانسیم شیابد. در این ناحیه به سرعت احیای الکتروشیمایی رزین ها از سرعت جذب کاتیون ها روی رزین کم تر است. بخشی از رزین به سرعت پر می شود و بازده ی حذف استرانسیم با شیب تندی کاهش می یابد و بعد از

آن به حالت پایا می رسد. در شرایط پایا، سرعت احیای الکتروشیمیایی رزین توسط یون های هیدرو کسید تولیدی از واکنش آبکافت آب با سرعت جذب یون های استرانسیم روی رزین برابر است و بازده یحذف استرانسیم مقدار ثابتی دارد.

در شرايط پايا با كاهش غلظت محلول استرانسيم خوراك ورودي به محفظه الكتروديونيزاسيون پيوسته بازدهي حذف استرانسیم از ۳۲٫۵ به ۴۷٫۶٪ افزایش یافت. نتایج نشان میدهد که در ولتاژ ثابت با افزایش غلظت خوراک ورودی، سیستم فرصت کافی برای احیای الکتروشیمیایی رزین ها را پیدا نمی کند و در نتیجه بازدهی حذف یون کاهش می یابد. از طرف دیگر مشاهده می شود با کاهش ولتاژ به کار رفته در سیستم از ۵ به ۲٬۵۷ در غلظت ۱۰۰mg/l و دبی ml/min ۵، بازده ی حذف استرانسیم از ۳۲٫۵٪ به صفر کاهش می یابد. این نتایج نشان می دهند که ولتاژ به کار رفتهی ۲٫۵۷ قادر به واکنش آبکافت آب و تولید یونهای هیدرو کسید برای احیای الکتروشیمیایی رزین نیست. در همان سه شرايط قبلي، اين بار رزين ها با محلول غليظ اشباع شدند. سپس منبع تغذیه روشن، و آزمایش ها پیگیری شد. نتایج به دست آمده با نتایج مرحله قبل یکسان بود. در نتیجه برای بررسی عملکرد پاياي سيستم الكتروديونيزاسيون صرف زمانهاي طولاني لازم نیست. با اشباعسازی رزین و سپس به کار بردن ولتاژ، می توان این مسیر را از انتها به سمت حالت پایا طی کرد.



شکل ۲. تأثیر زمان بر بـازدهی حـذف استرانسیم بـا روش الکترودیونیزاسیون پیوسته با رزین پروتونه شده.

با به کار رفتن اختلاف پتانسیل به دلیل آبکافت و تولید یونهای هیدروژن و هیدروکسید، یون هیدروژن کاتیونهای تولید شدهی حاضر بر روی رزینهای تبادل کاتیون را آزاد میکند. این روند تا رسیدن به حالت پایا ادامه مییابد. در این زمان، سیستم الکترودیونیزاسیون تنها با عملکرد غشایی، یونها را حذف میکند. در این حالت، در زمانهای اولیه به دلیل مصرف یونهای هیدروژن حاصل از آبکافت و باقی ماندن یونهای هیدروکسید حاصل از آبکافت، ابتدا اسیدیته به شرایط پایا میرود. بعد از آن مقدار اسیدیته کاهش مییابد و به شرایط پایا میرسد (شکل ۳). در ادامه، روند اشباعسازی رزین و سپس روشن کردن منبع تغذیه به منظور رسیدن به حالت پایا برای

۲.۳ بررسی اثر ولتاژ، دبی و غلظت خوراک

روش تا گوچی برای طراحی اصولی آزمایش ها به کار گرفته شد. پارامترهای کنترل شده، سطوح پارامترها و پاسخها در جدول ۲ ارائه شدهاند. آزمایش ها برای حذف استرانسیم و سزیم از محلول تک جزئی با استفاده از رزین اشباع شده و سپس به کار بستن ولتاژ به منظور رسیدن به حالت پایا انجام شد. داده های به دست آمده از آزمایش ها با استفاده از نرمافزار آماری MiniTab تجزیه و تحلیل شد. نمودارهای S/N ارائه شده با این نرمافزار در شکل ۴ نشان داده شدهاند. در تجزیه و تحلیل نموار N/۵، سه نوع تحلیل S/N در حالت بزرگ تر بهتر، S/N در حالت عادی بهتر و S/N در حالت کوچک تر بهتر وجود دارد. در این مطالعه، محاسبات S/N براساس تحلیل بزرگ تر بهتر انجام شد.



شکل ۳. تغییر اسیدیته با زمان برای حـذف استرانسیم بـا الکترودیونیزاسیون پیوسته با رزین اشباع شده.

۲. پارامترهای کنترل شـده و سطوح پارامترهـای آرایـهی متعامـد L	جدول
و مقادير حذف استرانسيم و سزيم يا الكترو ديونيز اسيون بيوسته	تاگہ جس

	J., - J. J. J.			- J.	
بازدهی حذف سزیم (٪)	بازدهی حذف استرانسیم (٪)	ولتاژ (V)	غلظت خوراک (mg/l)	دبی (ml/min)	شمارەي آزمايش
34,43	۷۴٬۰۵	۵	۱.	۵٫۲	١
۶۳,۵۹	٩۴,۵٨	v٫۵	۵.	۵٫۲	۲
۶V,۵V	٩٧,٣٠	١٠	۱	۲٫۵	٣
89,9V	18,91	۷٫۵	۱.	۳٫۷۵	۴
۶۵ _/ ۵۹	٩٧	١٠	۵.	۳٫۷۵	۵
۳۶,۰۵	99,AA	۵	۱	٣,٧۵	۶
۵۱,۰۰	99,44	١٠	۱۰	۵	٧
۲۸,۰۳	۴۸ _/ ۷۹	۵	۵۰	۵	٨
51,98	10,00	v٫۵	۱۰۰	۵	٩

در شکل ۴. الف دیده می شود که همواره با افزایش ولتاژ به کار رفته به دلیل افزایش نیروی محرکه برای انتقال یون ها [۳۲] میزان S/N افزایش می یابد که به معنای افزایش بازده ی حذف استرانسیم و سزیم است.

افزایش غلظت یون در خوراک، باعث افزایش هدایت الکتریکی محلول (کاهش مقاومت الکتریکی) و به طور همزمان باعث افزایش پدیده ی پولاریزاسیون غلظتی می شود، که به ترتیب به دلیل اثر گذاری مثبت و منفی، باعث افزایش و کاهش بازده ی حذف یون می شوند. در شکل ۲. ب دیده می شود که بیش ترین مقدار S/N در غلظت ا/ms ۱۰ استرانسیم اتفاق افتاد. در این غلظت، پولاریزاسیون غلظتی از غلظت ا/om کم تر بود و برایند اثمر مثبت افزایش هدایت الکتریکی و اثمر منفی پولاریزاسیون غلظتی در غلظت ا/ms ۱۰ ایر بایند این آثار در غلظت ۵۰ و اگریزاسیون منبت تر و بزرگ تر است. مشاهده غلظت ۵۰ و آریز منفی آن بر بازده ی حذف استرانسیم، میزان S/N کاهش می یابد. بنابراین بهترین حالت حذف استرانسیم، میزان S/N

به دلیل این که یون سزیم تک ظرفیتی است، میزان اثر مثبت بهبود هدایت الکتریکی حاصل از افزایش غلظت یون سزیم کم تر از یون های دوظرفیتی استرانسیم است. در غلظت ۱۰mg/۱، به دلیل این که تعداد یون های سزیم در محلول کم است، مقاومت الکتریکی در این غلظت بالا است. بنابراین، کم ترین مقدار از S/N و بازده ی حذف سزیم در این غلظت رخ می دهد. در



شکل ٤. تأثیر (الف) ولتاژ، (ب) غلظت خوراک و (ج) دبی بـر روی سـیگنال به نویز به منظور حذف استرانسیم و سزیم با روش الکترودیونیزاسیون.



غلظت ۵۰ و ۱۰۰mg/l به دلیل افزایش هدایت الکتریکی بازدهی حذف سزیم افزایش یافت.

تأثیر افزایش دبی بر میزان S/N در شکل ۴. ج نشان داده شده است. افزایش دبی خوراک، باعث افزایش اغتشاش و به طور همزمان باعث کاهش زمان اقامت محلول درون محفظهی رقیق کننده می شود که به دلیل اثر گذاری مثبت و منفی به ترتیب باعث افزایش و کاهش بازدهی حذف یون می شوند.

در شکل ۴.ج مشاهده میشود که بازدهی حذف استرانسیم و سزیم بـه صورت خطی بـا افـزایش دبـی کـاهش مـییابـد کـه نشاندهندهی غلبهی اثر منفی کـاهش زمـان اقامت بـر اثـر مثبت افزایش اغتشاش در محلول است.

در جدول ۲ و شکل ۴ مشاهده می شود که در تمامی آزمایش ها، به دلیل تحرک یونی بالاتر، بازده ی حذف استرانسیم از بازده ی حذف سزیم بیش تر است. تحرک یونی در میدان الکتریکی، نسبت مستقیم با نسبت بار الکتریکی به جرم یون دارد. به دلیل این که بار الکتریکی استرانسیم از سزیم بیش تر، و از طرفی استرانسیم دارای جرم کم تری است، تحرک استرانسیم بیش تر است و این عامل باعث افزایش جداسازی استرانسیم می شود.

شکل ۵، نمودارهای همبستگی پارامترهای مختلف را به منظور حذف استرانسيم از محلول هاي آبي با الكتروديونيزاسيون پیوسته نشان میدهد. در این نمودارها، همبستگی دو پارامتر در حالتي كه ساير پارامترها در مقدار بهينه ثابت نگه داشته شدهاند بررسی می شود. همان طور که در شکل ۵. الف مشاهده می شود، در تمامي دبيها با افزايش ولتاژ، بازدهي حذف استرانسيم افزايش مییابد. در حالی که بیش ترین حذف استرانسیم در پایین ترین سطح دبی و بیش ترین سطح ولتاژ رخ میده.د. در شکل ۵. ب مشاهده می شود که در کم ترین دبی با افزایش غلظت، همواره بازدهی حذف استرانسیم افزایش می یابد. با ثابت نگه داشتن ولتاژ، بیش ترین بازدهی حذف استرانسیم در سطوح میانی دبی و غلظت خوراک رخ میدهد. در شکل ۵. ج نیز مشاهده می شود که با ثابت نگه داشتن دبی در مقدار بهینه، بیش ترین بازدهی حذف استرانسیم در بیش ترین ولتاژ و غلظت رخ میدهد. نکتهی مهم و معنىدار در حذف استرانسيم براي هر تركيب پارامتري بررسی شده این است که همواره بیش ترین بازده ی حذف استرانسیم، در بالاترین سطح ولتاژ و کم ترین دبی خوراک به دست آمده است.



شکل ۵. همبستگی میان پارامترهای (الـف) ولتـاژ، (ب) دبـی و (ج) غلظت خوراک به منظور حذف استرانسیم با الکترودیونیزاسیون پیوسته.

شکل ۶، نمودارهای همبستگی پارامترهای مختلف را به منظور حذف سزیم از محلول های آبی با الکترودیونیز اسیون پیوسته نشان می دهد. در شکل ۶. الف مشاهده می شود که در پایین ترین سطح دبی، با افزایش ولتاژ، بازده ی حذف سزیم به صورت یکنواخت افزایش یافت. در حالی که بیش ترین حذف سزیم، در پایین ترین سطح دبی و بیش ترین سطح ولتاژ رخ می دهد. در شکل ۶. ب نیز مشاهده می شود که در کم ترین دبی، با افزایش غلظت، همواره بازده ی حذف سزیم افزایش می یابد. با افزایش داشتن ولتاژ، بیش ترین بازده ی حذف سزیم در با تابت نگه داشتن ولتاژ، بیش ترین بازده ی حذف سزیم در

مشاهده می شود که با ثابت نگه داشتن دبی در مقدار بهینه، بیش ترین حذف سزیم در بیش ترین ولتاژ و بیش ترین غلظت رخ می دهد. به طور کلی نتایج ارائه شده در شکل ۶ نشان می دهند که در همه شرایط، بیش ترین ولتاژ به کار رفته، کم ترین دبی و بیش ترین غلظت خوراک، بهترین حالت برای حذف سزیم است.



شکل ٦. همبستگی میان پارامترهای (الف) ولتاز، (ب) دبی و (ج) غلظت خوراک، به منظور حذف سزیم با الکترودیونیزاسیون پیوسته.

۳.۳ آنالیز واریانس

آنالیز واریانس آزمایش های حذف استرانسیم و سزیم از محلول تکجزئی با نرمافزار آماری MiniTab انجام شد. نسبت فاکتور واریانس به خطای واریانس (F)، مجموع مربعات برای هر پارامتر (SS)، میانگین مجموع مربعات برای هر پارامتر (MS)، درجهی آزادی (FD) و درصد تأثیر هر پارامتر روی پاسخ (P) در جدول ۳ ارائه شده است.

با مقایسه ی معیار درصد تأثیر هر پارامتر روی پاسخ (P) بر بازده ی حذف استرانسیم و سزیم از جدول ۳، مشاهده می شود که برای حذف استرانسیم، تأثیر پارامترها به ترتیب به صورت ولتاژ > دبی > غلظت خوراک و برای حذف سزیم به صورت ولتاژ > غلظت خوراک > دبی است. بنابراین، نتایج ولتاژ بیش ترین تأثیر را بر بازده ی حذف استرانسیم و سزیم در فرایند الکترودیونیزاسیون دارد. ظاهری و همکاران (۲۰۱۰) در الکترودیالیز، تأثیر ولتاژ، دبی و غلظت خوراک به ترتیب ۲۴٪، مطالعهای مشابه برای حذف اورانیم از پساب با روش مک٪ و ۳٪ به دست آوردند [۳۳]. در این پژوهش نیز مشاهده شد که پارامتر غلظت نسبت به سایر پارامترها کم ترین میزان تأثیر را

با استفاده از نرم افزار MiniTab، شرایط بهینه برای حذف استرانسیم در ولتاژ، دبی و غلظت برابر ۲،۵ml/min (۲۰۷ و ۲/۵ml/min ، و برای حذف سزیم برابر ۲۰۵۱ min/۲ و ۲۰mg/۱ به دست آمد. برای بررسی صحت نتایج به دست آمده، آزمایش هایی در شرایط بهینهی پیش بینی شده انجام شد و بازدهی حذف استرانسیم و سزیم به ترتیب ۹۸/۶٪ و ۶۷/۵۷ به دست آمد. با مقایسهی مقادیر تجربی با مقادیر پیش بینی شده توسط نرمافزار، مشاهده می شود که نتایج پیش بینی شده براساس روش آماری تاگوچی از دقت بالایی بر خوردارند.



جدول ۳. نتایج آنالیز واریانس برای حذف استرانسیم و سزیم با الکترودیونیزاسیون پیوسته

٤.٣ حـــذف استرانســيم و ســزيم از محلــول دوجزئــى بــا الكتروديونيزاسيون پيوسته

به دلیل این که پساب های واقعی حاوی چندین یون هستند، در این مطالعه، بازده ی حذف استرانسیم و سزیم از محلول دو جزئی با الکترودیونیز اسیون پیوسته نیز بررسی شد. به دلیل این که ولتاژ به کار رفته، مؤثر ترین پارامتر بر بازده ی حذف استرانسیم و سزیم از محلول تک جزئی تعیین شد، اثر ولتاژ (۸/۵ ۱۰ و ۱۵۷) بر بازده ی حذف استرانسیم و سزیم از محلول دو جزئی نیز بررسی شد. غلظت هر کدام از عناصر استرانسیم و سزیم در محلول شد. غلظت هر کدام از عناصر استرانسیم و سزیم در محلول سزیم از محلول دو جزئی در جدول ۴ ارائه شده است. در این شرایط، بازده ی حذف استرانسیم و سزیم با افزایش ولتاژ به کار رفته افزایش یافت. بازده ی حذف استرانسیم بود، زیرا نسبت بار الکتریکی به جرم سزیم، از نسبت بار الکتریکی به جرم استرانسیم کم تر است.

در ولتاژهای کم، اختلاف بازدهی حذف استرانسیم و بازدهی حذف سزیم زیاد بود. در ولتاژهای زیاد به دلیل افزایش نیروی محرکهی الکتریکی، بازدهی حذف هر دو یون افزایش یافت و در اختلاف پتانسیل ۱۵۷ مقدار مجموع بازدهی حذف دو عنصر به ۸۷/۴۱٪ رسید.

جدول ٤. نتايج حذف استرانسيم و سزيم از محلول دوجزئي با روش الكتروديونيزاسيون

مجموع بازدهی حذف استرانسیم و سزیم (٪)	بازدهی حذف سزیم (٪)	بازده حذف استرانسیم (٪)	ولتاژ (V)
۶۰,۱۵	۲۳٫۷۹	98,01	v٫۵
۲۰ ٬۰۸	۴۲ _/ ۸۰	٩٧٫٣۴	١٠
۸V,۴۱	V0,1V	٩٩ , <i>۶۶</i>	۱۵

٤. نتيجه گيري

حـذف استرانسـيم و سـزيم از محلـولهاى آبـى بـا روش الكتروديونيزاسيون بررسى شد. ابتدا تأثير زمان بر بازدهى حـذف استرانسيم از محلولهاى آبى با روش الكتروديونيزاسيون پيوسته با رزين پروتونه شده بررسى شد. در زمانهاى اوليه، بازدهى حذف استرانسيم به دليل جذب بالاى رزين تبادل كاتيون، بسيار زياد بود. سپس سيستم الكتروديونيزاسيون با افتى محسوس در حـذف استرانسيم به حالت پايا رسيد. در ادامه، با استفاده از روش طراحى آزمايش تاگوچى، يك آرايهى متعامد ما (سه پارامتر هر كـدام با ۳ سطح) براى بررسى تـأثير ولتاژ، دبى و غلظت خوراك به منظور حذف استرانسيم و سـزيم، از محلولهاى تك جزئى با استفاده شد. نتايج نشان داد كه ولتاژ بيش ترين تأثير را بر عملكرد استفاده شد. نتايج نشان داد كه ولتاژ بيش ترين تأثير را بر عملكرد الكتروديونيزاسيون دارد و با افزايش آن و كاهش دبى، عملكرد

به دلیل اهمیت تأثیر ولتاژ به کار رفته، اثر آن بر بازده ی حذف استرانسیم و سزیم از محلول دوجزئی نیز بررسی شد. نتایج تجربی نشان داد که به دلیل تحرک یونی بیش تر یون های دوظرفیتی استرانسیم نسبت به یون های تک ظرفیتی سزیم، بازده ی حذف استرانسیم همواره از بازده ی حذف سزیم بیش تر است. براساس نتایج به دست آمده، الکترودیونیز اسیون پیوسته ی به دلیل تولید پیوسته ی آب با خلوص و کیفیتی بالا و بدون نیاز به احیای شیمیایی رزین های تبادل یون، دارای عملکردی مطلوب و مؤثر برای حذف استرانسیم و سزیم است.

- S. Inan, H. Tel, Y. Altas, Adsorption studies of strontium on hydrous zirconium dioxide, *J. radio. Nucl. Chem.* 267 (2006) 615–621.
- [2] G. Zakrzewska-Trznadel, M. Harasimowicz, A.G. Chmielewski, Concentration of radioactive components in liquid low-level radioactive waste by membrane distillation, *J. Memb. Sci.* 163 (1999) 257–264.
- [3] M.C. Negri, R.R. Hinchman, in: Burt D. Ensley (Eds.), The use of Plants for the Treatment of Radionuclides, Ilya Raskin, *Wiley*. (2000) 107–150.
- [4] M. Ugajin, S. Ajuria (Eds.), Inorganic Ion Exchangers and Adsorbents for Chemical *Proc. Nucl. Fuel. Cycl*, IAEA-TEC DOC-337, IAEA. (1985) Vienna.
- [5] M.V. Balarama Krishna, S.V. Raoa, J. Arunachalam, M.S. Murali, b, Surendra Kumarc, V.K. Manchandab, Removal of ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr from actual low level radioactive waste solutions using moss as a phyto-sorbent, *Sep. Pur. Tech.* **38** (2004) 149–161.
- [6] H.M. Saleh, Water hyacinth for phytoremediation of radioactive waste simulate contaminated with cesium and cobalt radionuclides, *Nucl. Eng. Des.* 242 (2012) 425–432.
- [7] D.W. Kang, K.B. Sung, S.H. Lee, H.Y. Kim, Wet oxidation of ion exchange resins in Fenton's reaction system by using the electrode, *J. Kore. Sol. Wast. Eng. Soc.* 15 (1998) 24–31.
- [8] F. Liu, G. Zhang, H. Zhang, J. Mo, Performance evaluation of electrodeionization process based on ionic equilibrium with plate and frame modules, *Desal.* 221 (2008) 425– 432.
- [9] J.H. Lee, J.H. Choi, The production of ultrapure water by membrane capacitive deionization (MCDI) technology, *J. Memb. Sci.* 409–410 (2012) 251–256.
- [10] J. Lu, Y.X. Wang, Y.Y. Lu, G.L. Wang, L. Kong, J. Zhu, Numerical simulation of the electrodeionization (EDI) process for producing ultrapure water, *Electro. Acta.* 55 (2010) 7188–7198.

- [12] Ö. Arar, Ü. Yüksel, N. Kabay, M. Yüksel, Application of electrodeionization (EDI) for removal of boron and silica from reverse osmosis (RO) permeate of geothermal water, *Desal.* **310** (2013) 25–33.
- [13] P. Boontawana, S. Kanchanathaweeb, A. Boontawanb, Extractive fermentation of 1-(+)-lactic acid by Pediococcus pentosaceus using electrodeionization (EDI) technique, *Bio. Eng. J.* 54 (2011) 192–199.
- [14] X. Feng, Z. Wu, X. Chen, Removal of metal ions from electroplating effluent by EDI process and recycle of purified water, *Sep. Pur. Tech.* 57 (2007) 257–263.
- [15] R. Wen, S. Deng, Y. Zhang, The removal of silicon and boron from ultra-pure water by electrodeionization, *Desal.* 181 (2005) 153– 159.
- [16] E. Dejean, et al., Electrodeionization with ion-exchange textile for the production of high resistivity water: Influence of the nature of the textile, *Desal.* **114** (1997) 165-173.
- [17] N. Meyer, W.J. Parker, P.J. Van Geel, M. Adiga, Development of an electrodeionization process for removal of nitrate from drinking water Part 1: Single-species testing, *Desal.* 175 (2005) 153-165.
- [18] K.H. Yeon, J.H. Song, S.H. Moon, A study on stack configuration of continuous electrodeionization for removal of heavy metal ions from the primary coolant of a nuclear power plant, *Wat. Res.* **38** (2004) 1911-1921.
- [19] P.B. Spoor, L. Koene, W.R. Ter Veen, L.J.J. Janssen, Continuous deionization of a dilute nickel solution, *Chem. Eng. J.* 85 (2002) 127-135.
- [20] Y.S. Dzyazko, Purification of a diluted solution containing nickel using electrodeionization, *Desal.* **198** (2006) 47-55.

- Ð
- [21] P.B. Spoor, W.R. Ter Veen, L.J.J. Janssen, Electrodeionization 2: The migration of nickel ions absorbed in a flexible ion-exchange resin, *J. appl. Elec.* **31** (2001) 1071-1077.
- [22] P.B. Spoor, L. Grabovska, L. Koene, L.J.J. Janssen, W.R. Ter Veen, Pilot scale deionisation of a galvanic nickel solution using a hybrid ion-exchange/electrodialysis system, *Chem. Eng. J.* 89 (2002) 193-202.
- [23] Y.S. Dzyazko, et al., Electro-deionization of Cr (VI)-containing solution. Part I: chromium transport through granulated inorganic ionexchanger, *Chem. Eng. Comm.* **196** (2008) 3-21.
- [24] Y.S. Dzyazko, et al., Electro-deionization of cr (VI)-containing solution. Part II: Chromium transport through inorganic ion-exchanger and composite ceramic membrane, *Chem. Eng. Comm.* 196 (2008) 22-38.
- [25] Ö. Arara, Ü. Yüksela, N. Kabayb, M. Yüksel, Removal of Cu²⁺ ions by a micro-flow electrodeionization (EDI) system, *Desal.* 277 (2011) 296-300.
- [26] H.J. Lee, J.H. Song, S.H. Moon, Comparison of electrodialysis reversal (EDR) and electrodeionization reversal (EDIR) for water softening, *Desal.* **314** (2013) 43-49.
- [27] H.J. Lee, M.K. Hong, S.H. Moon, A feasibility study on water softening by electrodeionization with the periodic polarity change, *Desal.* **284** (2012) 221-227
- [28] A. Morel, et al., Microbial desalination cells packed with ion-exchange resin to enhance water desalination rate, *Bio. Tech.* **118** (2012) 43-48.
- [29] K. Dermentzis, Continuous electrodeionization through electrostatic shielding, *Elect. Acta.* 53 (2008) 2953-2962.
- [30] R.K. Roy, Design of Experiments Using the Taguchi Approach: 16 Steps to Product and Process Improvement, John Wiley & Sons, New York, (2001).

- [31] M.S. Shahrom, N.M. Yahya, A.R. Yusoff, Taguchi Method Approach on Effect of Lubrication Condition on Surface Roughness in Milling Operation, *Proc. Eng.* 53 (2013) 594–599.
- [32] N. Keramati, A. Moheb, M.R. Ehsani, Effect of operating parameters on NaOH recovery from waste stream of Merox tower using membrane systems: Electrodialysis and electrodeionization processes, *Desal.* 259 (2010) 97–102.
- [33] A. Zaheri, A. Moheb, A.R. Keshtkar, A.S. Shirani, Uranium separation from wastewater by electrodialysis, *Iran. J. Env. Heal. Sci. Eng.* 7 (2010) 429-436.