



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

فاضل ضحاک‌فر^۱، علیرضا کشتکار*^۱، امیرسعید شیرانی^۲، ادیب ظاهری^۱

۱. پژوهشکده‌ی چرخه‌ی سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸۴۸۶-۱۳۳۶۵، تهران - ایران
۲. دانشکده‌ی مهندسی هسته‌ای، دانشگاه شهید بهشتی، صندوق پستی: ۱۹۸۳۹۶۳۱۱۳، تهران - ایران

چکیده: در این مطالعه، ابتدا تأثیر زمان بر بازدهی حذف استرانسیم از محلول‌های آبی به روش الکترودیونیزاسیون پیوسته با رزین پروتونه شده بررسی شد. سپس با استفاده از روش طراحی آزمایش تاگوچی، یک آرایه‌ی متعامد L_9 برای بررسی تأثیر ولتاژ، دبی و غلظت خوراک به منظور حذف استرانسیم و سزیم با روش الکترودیونیزاسیون پیوسته با رزین اشباع شده به کار گرفته شد. از روش آنالیز واریانس برای ارزیابی تأثیر نسبی هر فاکتور استفاده شد. عملکرد سیستم الکترودیونیزاسیون با افزایش ولتاژ به کار رفته و کاهش دبی، بهبود یافت. ولتاژ، بیش‌ترین تأثیر را بر عملکرد الکترودیونیزاسیون پیوسته داشت و غلظت، تأثیر محسوسی بر حذف استرانسیم و سزیم نداشت. حذف این دو عنصر از محلول‌های دو جزئی نیز بررسی شد و در این آزمایش نیز بازدهی حذف استرانسیم از سزیم بیش‌تر بود. نتایج نشان داد که روش الکترودیونیزاسیون یک روش مؤثر برای حذف استرانسیم و سزیم از محلول‌های آبی است.

کلیدواژه‌ها: الکترودیونیزاسیون، استرانسیم، سزیم، محلول‌های آبی، تاگوچی، 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, initially 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 L_9 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

زمانی که محلول خوراک به محفظه‌ی رقیق‌کننده پمپ می‌شود و اختلاف پتانسیل الکتریکی بین الکترودها برقرار می‌شود، کاتیون‌ها به سمت کاتد و آنیون‌ها به سمت آند انتقال می‌یابند. در نتیجه، غلظت یون در محفظه‌های الکترودی افزایش، و در محفظه‌ی رقیق‌کننده کاهش می‌یابد. در حین کار سیستم الکترودیونیزاسیون، به دلیل واکنش آبکافت، یون‌های هیدروژن و هیدروکسید تولید می‌شوند. این یون‌ها به طور پیوسته رزین‌های تبادل یون را بدون استفاده از مواد شیمیایی احیا می‌کنند. به دلیل این که در فرایند الکترودیونیزاسیون هیچ‌گونه مواد شیمیایی برای احیای رزین‌های تبادل یون استفاده نمی‌شود، این روش یک روش سازگار با محیط‌زیست است [۸-۱۲]. الکترودیونیزاسیون هزینه‌های عملیاتی کم‌تری از روش‌های متداول تبادل یون دارد [۱۳]. پرهیز از افزودن احیاکننده‌های شیمیایی برای احیای رزین و حذف هزینه‌های خرید، انتقال و انبار احیاکننده‌ها، مزیت بارز روش الکترودیونیزاسیون در کاربرد صنعتی است [۱۴، ۱۵].

روش الکترودیونیزاسیون برای خالص‌سازی آب و حذف یون‌هایی نظیر Na^+ ، K^+ ، SO_4^{2-} ، Cl^- و NO_3^- از آب گسترش یافته، و تجاری شده است [۱۶-۱۸]. هم‌چنین حذف عناصری مانند Co^{2+} ، Ni^{2+} ، Cr^{6+} از محلول‌های رقیق گزارش شده است [۱۹-۲۴].

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

۲. مواد و روش‌ها

۲.۱ 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 پرستالتیک، محلول‌ها به محفظه‌ی غشایی وارد می‌شوند. محفظه‌ی غشایی، بخش اصلی هر فرایند غشایی، و دارای ۳

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 دامنه‌ی گسترده‌ای از غلظت و با ویژگی‌های شیمیایی و فیزیکی متفاوتی به وجود می‌آیند [۲]. در مدیریت پسمان‌های هسته‌ای، حذف هسته‌های پرتوزا با نیمه‌عمر 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 می‌طلبد [۴، ۵].

در دهه‌های گذشته، حذف هسته‌های پرتوزا همواره از چالش‌های پیش روی دانشمندان محیط زیست بوده است [۶]. تبادل یون، رسوب شیمیایی، استخراج حلالی، بیوتکنولوژی و فرایندهای غشایی، از روش‌های آمایش به کار گرفته شده در صنایع هسته‌ای هستند. قبل از انتخاب روش آمایش، باید هزینه‌هایی چون سرمایه‌گذاری و عملیات را در نظر گرفت [۲]. در میان این روش‌ها، تبادل یون به دلیل بازدهی آلودگی‌زدایی بالا، سادگی و آسانی عملیات، کاربرد گسترده‌ای در آمایش پساب‌های پرتوزا دارد. این روش به دلیل این که در حذف هسته‌های پرتوزا و غیرپرتوزا انتخاب‌پذیر نیست؛ حجم زیادی از پسمان‌های پرتوزا را تولید می‌کند. معمولاً رزین‌های کارکرده‌ی حاوی مواد پرتوزا یا با سیمان جامدسازی، یا برای مدت زمان طولانی در داخل خود نیروگاه اتمی نگهداری می‌شوند [۷]. برای جلوگیری از تولید مقادیر زیاد پسمان‌های جامد می‌توان از روش الکترودیونیزاسیون پیوسته استفاده کرد.

در یک سیستم الکترودیونیزاسیون همانند سیستم الکترودیالیز، غشاهای تبادل آنیون و کاتیون میان الکترودها قرار می‌گیرند. در سیستم الکترودیونیزاسیون، به منظور کاهش مقاومت الکتریکی و افزایش تبادل کاتیون‌ها و آنیون‌ها تحت جریان الکتریکی مستقیم، محفظه‌ی رقیق‌کننده از رزین‌های تبادل کاتیون و تبادل آنیون پر می‌شود. هم‌چون سیستم الکترودیالیز، غشاهای تبادل کاتیون و تبادل آنیون در اطراف محفظه‌ی رقیق‌کننده و به ترتیب در سمت کاتد و آند قرار می‌گیرند.

**جدول ۱.** ویژگی‌های فیزیکی و شیمیایی غشاهای تبادل یونی

ظرفیت تبادل یون (meq/g)	2±0,2
انتخاب پذیری*	96% ≤
مقاومت سطح غشا (Ω.cm ²)	4,5 ≥
ضخامت (mm)	0,3
استحکام (kg/cm ²)	4 ≤
پایداری حرارتی (°C)	60 ≥

* 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 5×5cm² به شکل الکترودهای آند و کاتد استفاده شد. یک منبع تغذیه مستقیم، وظیفه تأمین برق سیستم را بر عهده داشت.

۲.۲ روش انجام آزمایش‌ها

برای تهیه محلول سزیم و استرانسیم، به ترتیب نمک‌های CsNO₃ و [Sr(NO₃)₂] (تهیه شده از مرک) در آب مقطر حل شد.

رزین‌های تبادل کاتیون پس از شستشو با آب مقطر به مدت 45 min در اسید سولفوریک ۱۰٪ غوطه‌ور، و هم‌زده شد تا پروتونه شود.

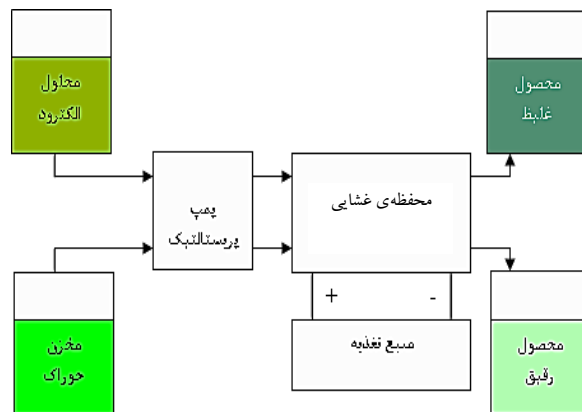
غشاهای به مدت 24h در یک محلول 0,1M از KOH به صورت غوطه‌ور قرار گرفت. غشاهای از محلول جدا، و چندین مرتبه با آب مقطر شستشو داده، و بر روی سیستم الکترودیونیزاسیون نصب شد.

در بخش اول از آزمایش‌ها، برای بررسی اثر زمان بر بازدهی حذف استرانسیم، ابتدا رزین‌های تبادل کاتیون پروتونه شده در محفظه‌ی رقیق‌کننده‌ی سیستم قرار داده، و بازدهی حذف استرانسیم با زمان برای ۳ شرایط متفاوت بررسی شد.

در بخش دوم از آزمایش‌ها، پارامترهای مؤثر بر حذف یون در محلول تک‌جزئی استرانسیم یا سزیم بررسی شد. برای کاهش زمان آزمایش، ابتدا رزین‌ها 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 یون‌ها، احیای الکتروشیمیایی رزین‌ها با یون‌های هیدروکسیل تولیدی از واکنش آبکافت نیز انجام شود.

محفظه است. محفظه‌ی رقیق‌کننده (میانی) محل ورود خوراک است و محلول عبوری از آن تصفیه می‌شود. این محفظه با دو غشای تبادل کاتیونی و آنیونی از دو محفظه‌ی دیگر جدا می‌شود. ابعاد سطح عملیاتی داخلی محفظه 5×5cm² و ضخامت آن 5mm است. دو محفظه‌ی الکترودی (آندی و کاتدی) کاملاً مشابه در دو طرف محفظه‌ی رقیق‌کننده برای قرار گرفتن الکترودها در نظر گرفته شد. جنس، ابعاد و چگونگی ورود و خروج محلول‌ها در محفظه‌های الکترودی مشابه محفظه‌ی رقیق‌کننده است، با این تفاوت که این دو محفظه، از یک طرف در تماس با غشا و از طرف دیگر بسته، و در تماس با الکترودها هستند. بنابراین حجم محفظه‌ی رقیق‌کننده 12,5 cm³، و سطح هر کدام از الکترودها 5×5cm² است. مقدار 12,5 cm³ رزین تبادل کاتیون Amberlite IR120 ساخت شرکت BDH در محفظه‌ی رقیق‌کننده قرار داده شد. برای جلوگیری از بروز مشکل رسوب کمپلکس‌های تشکیل شده بر روی غشا و رزین، پیشنهاد شده است که از رزین‌های اسیدی کاتیونی استفاده شود [25]. رزین Amberlite IR 120 در پژوهش‌های فراوانی برای روش الکترودیونیزاسیون استفاده شده است [26-29].

غشای تبادل کاتیونی در سمت کاتد برای عبور کاتیون‌ها و انتقال آنها از محفظه‌ی رقیق‌کننده به محفظه‌ی کاتدی، و غشای تبادل آنیونی در سمت آند برای عبور آنیون‌ها و انتقال آنها از محفظه‌ی رقیق‌کننده به محفظه‌ی آندی قرار دارد. این غشاهای ساخت شرکت چینی Zhejiang Qianqiu Group هستند که مشخصات فنی آن در جدول ۱ ارائه شده است. سطح مؤثر هر کدام از غشاهای 5×5cm² است.



شکل ۱. الگوی واحد آزمایشگاهی الکترودیونیزاسیون ساخته شده.



بیشترین نسبت S/N باشد، متناسب با سطح بهینه‌ی آن پارامتر است [۳۱]. مقدار نسبت S/N برای حالتی که مقدار پاسخ بزرگ‌تر موردنظر باشد، از رابطه‌ی (۱) به دست می‌آید:

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

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

$$R(\%) = \frac{C_i - C_0}{C_i} \times 100 \quad (2)$$

در رابطه‌ی (۲)، C_i مقدار غلظت خوراک ورودی به محفظه غشایی و C_0 مقدار غلظت خروجی از محفظه‌ی رقیق‌کننده است. از آنالیز واریانس برای تعیین اثر پارامترهای مستقل بر بازدهی حذف استرانسیم و سزیم از محلول‌های تک‌جزئی و همبستگی پارامترها استفاده شد. هم‌چنین درصد تأثیر (توزیع) هر پارامتر با استفاده از آنالیز واریانس به دست آمد.

۳. نتایج و بحث

۳.۱ بررسی اثر زمان بر بازدهی حذف استرانسیم با الکترودیونیزاسیون پیوسته
رزین تبادل یونی در حالتی که پروتونه باشد، جذب بالایی دارد. برای بررسی تأثیر زمان بر بازدهی حذف استرانسیم، آزمایش‌ها در سه شرایط متفاوت (۵ ml/min، ۵ V، ۵۰ mg/l)، (۵ ml/min، ۵ V، ۱۰۰ mg/l) و (۵ ml/min، ۲.۵ V، ۱۰۰ mg/l) انجام گرفت. در این آزمایش‌ها از رزین پروتونه شده استفاده شد و آزمایش‌ها تا رسیدن به شرایط پایا ادامه یافت. برای هر سه شرایط در زمان‌های اولیه، حذف استرانسیم تقریباً کامل انجام شد و بازدهی حذف استرانسیم ۱۰۰٪ بود (شکل ۲). در این ناحیه به دلیل پروتونه بودن رزین، بازدهی حذف یون بسیار بالاست. در ادامه، بازده حذف استرانسیم شدیداً کاهش می‌یابد. در این ناحیه، سرعت احیای الکتروشیمیایی رزین‌ها از سرعت جذب کاتیون‌ها روی رزین کم‌تر است. بخشی از رزین به سرعت پر می‌شود و بازدهی حذف استرانسیم با شیب تندی کاهش می‌یابد و بعد از

سپس فرایند الکترودیونیزاسیون به حالت پایا رسید. رسیدن به شرایط پایا برای آزمایش‌های استرانسیم و سزیم به ترتیب ۳۰۰ و ۶۰۰ min 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، مناسب‌ترین محدوده برای انجام آزمایش‌ها انتخاب شد.

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

۳.۲ اندازه‌گیری‌های تجربی

برای تعیین غلظت سزیم و استرانسیم به ترتیب از طیف‌سنج جذب اتمی (AAS, VARIAN, SPECTRA A200, Australia) و طیف‌سنج نشر اتمی - پلاسما جفت شده‌ی القایی (ICP-AES, VARIAN, LIBERTY150AX TURBO, Australia) استفاده شد. مقدار اسیدیته نیز با استفاده از دستگاه سنجش pH مدل Metrohm اندازه‌گیری شد.

۴.۲ طراحی آزمایش

۴.۲.۱ روش طراحی آزمایش تاگوچی

برای طراحی اصولی آزمایش‌ها، روش تاگوچی به کار گرفته شد. با استفاده از روش تاگوچی می‌توان تأثیر هر کدام از پارامترها را به دست آورد. هم‌چنین با استفاده از این روش می‌توان سطح بهینه‌ی پارامترهای مؤثر را پیش‌بینی کرد [۳۰]. این طراحی آزمایش کمک می‌کند تا بیشترین اطلاعات از کم‌ترین تعداد آزمایش‌ها به دست آید.

در این مطالعه، یک آرایه‌ی متعامد L_4 در طراحی آزمایش انتخاب شد. ولتاژ، دبی و غلظت خوراک سه پارامتر هدف است که هر یک در سه سطح بررسی شد.

۴.۲.۲ تجزیه و تحلیل آماری

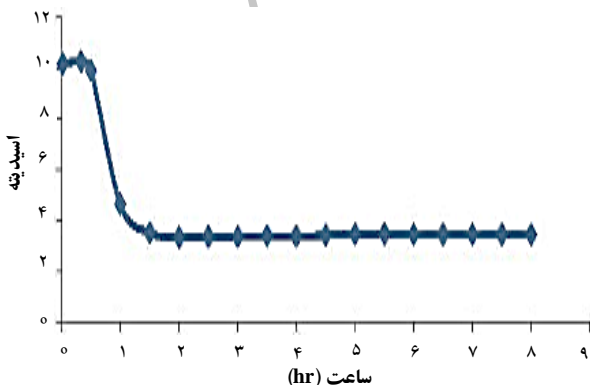
در تحلیل پاسخ‌ها به روش تاگوچی، نمودارهای نسبت سیگنال به نویز (S/N) ارائه می‌شود. هر چه معیار S/N بزرگ‌تر باشد، بهتر است. این به معنی آن است که سطحی از پارامتر که دارای



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 شدت بالا 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 تمامی آزمایش‌های الکترودیونیزاسیون به کار گرفته شد.

۲.۳ بررسی اثر ولتاژ، دبی و غلظت خوراک

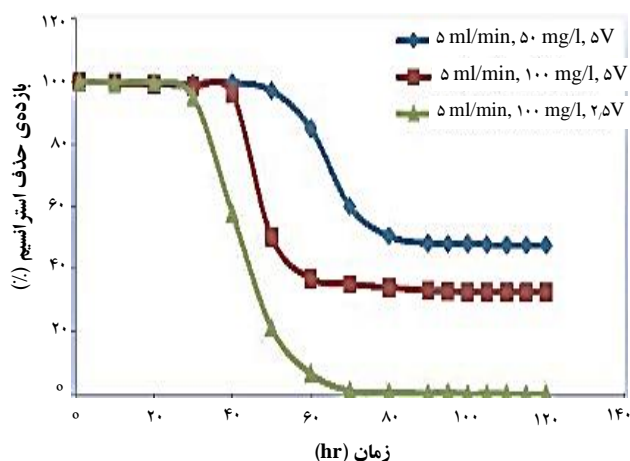
روش تاگوجی برای طراحی اصولی آزمایش‌ها به کار گرفته شد. پارامترهای کنترل شده، سطوح پارامترها و پاسخ‌ها در جدول ۲ ارائه شده‌اند. آزمایش‌ها برای حذف استرانسیم و سزیم از محلول تک‌جزئی با استفاده از رزین اشباع شده و سپس به کار بستن ولتاژ به منظور رسیدن به حالت پایا انجام شد. داده‌های به دست آمده از آزمایش‌ها 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 نمودار S/N، سه نوع تحلیل S/N در حالت بزرگ‌تر بهتر، S/N در حالت عادی بهتر و S/N در حالت کوچک‌تر بهتر وجود دارد. در این مطالعه، محاسبات S/N براساس تحلیل بزرگ‌تر بهتر انجام شد.



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

آن به حالت پایا می‌رسد. در شرایط پایا، سرعت احیای الکتروشیمیایی رزین توسط یون‌های هیدروکسید تولیدی از واکنش آبکافت آب با سرعت جذب یون‌های استرانسیم روی رزین برابر است و بازدهی حذف استرانسیم مقدار ثابتی دارد.

در شرایط پایا با کاهش غلظت محلول استرانسیم خوراک ورودی به محفظه الکترودیونیزاسیون پیوسته بازدهی 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 رزین‌ها را پیدا نمی‌کند و در نتیجه بازدهی حذف یون کاهش می‌یابد. از طرف دیگر مشاهده می‌شود با کاهش ولتاژ به کار رفته در سیستم از ۵ به ۲/۵۷ در غلظت ۱۰۰ mg/l و دبی ۵ ml/min، بازدهی حذف استرانسیم از ۳۲/۵٪ به صفر کاهش می‌یابد. این نتایج نشان می‌دهند که ولتاژ به کار رفته‌ی ۲/۵۷ قادر به واکنش آبکافت آب و تولید یون‌های هیدروکسید برای احیای الکتروشیمیایی رزین نیست. در همان سه شرایط قبلی، این بار رزین‌ها با محلول غلیظ اشباع شدند. سپس منبع تغذیه روشن، و آزمایش‌ها پیگیری شد. نتایج به دست آمده با نتایج مرحله قبل یکسان بود. در نتیجه برای بررسی عملکرد پایای سیستم الکترودیونیزاسیون صرف زمان‌های طولانی لازم نیست. با اشباع‌سازی رزین و سپس به کار بردن ولتاژ، می‌توان این مسیر را از انتها به سمت حالت پایا طی کرد.



شکل ۴. تأثیر زمان بر بازدهی حذف استرانسیم با روش الکترودیونیزاسیون پیوسته با رزین پروتونه شده.

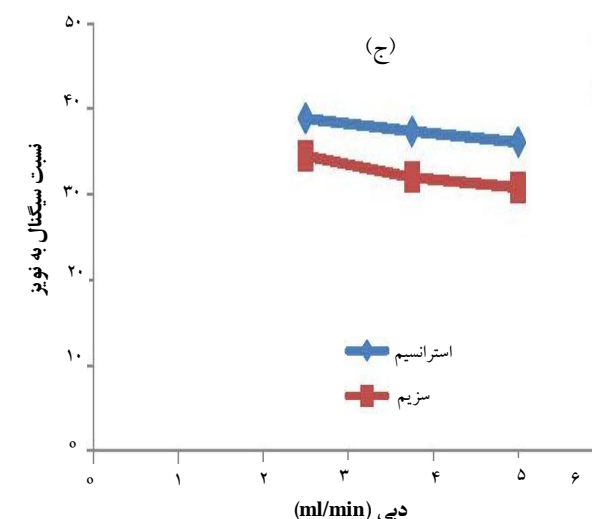
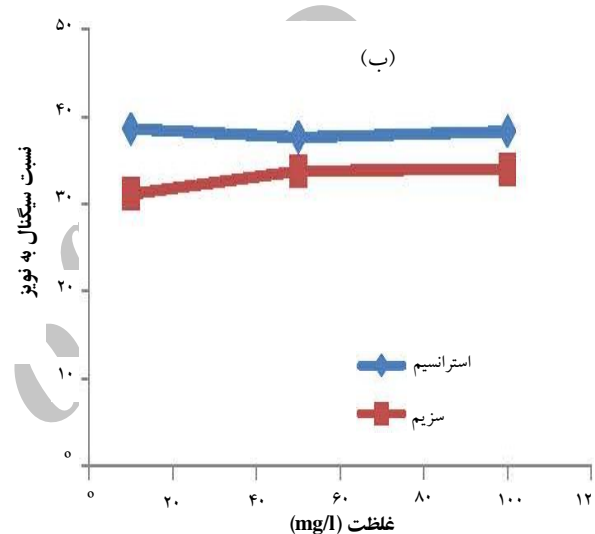
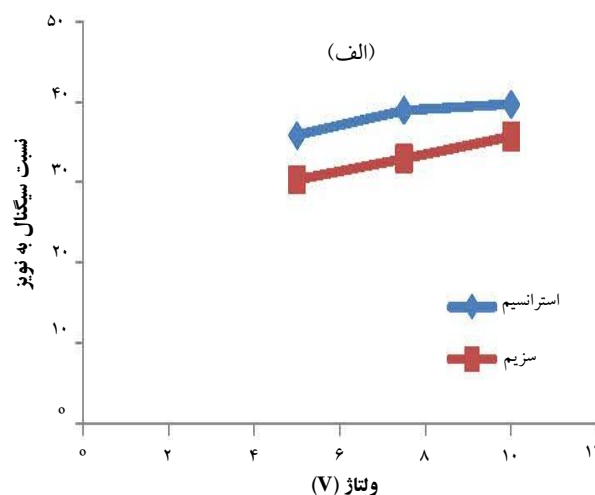
جدول ۲. پارامترهای کنترل شده و سطوح پارامترهای آرایه‌ی متعامد L_۹ تاگوجی و مقادیر حذف استرانسیم و سزیم با الکترودیونیزاسیون پیوسته

شماره‌ی آزمایش	دبی (ml/min)	غلظت خوراک (mg/l)	ولتاژ (V)	بازده‌ی حذف استرانسیم (%)	بازده‌ی حذف سزیم (%)
۱	۲,۵	۱۰	۵	۷۴,۰۵	۳۴,۷۵
۲	۲,۵	۵۰	۷,۵	۹۴,۵۸	۶۳,۵۹
۳	۲,۵	۱۰۰	۱۰	۹۷,۳۰	۶۷,۵۷
۴	۳,۷۵	۱۰	۷,۵	۸۶,۹۱	۲۶,۶۷
۵	۳,۷۵	۵۰	۱۰	۹۷	۶۵,۵۹
۶	۳,۷۵	۱۰۰	۵	۶۶,۸۸	۳۶,۰۵
۷	۵	۱۰	۱۰	۹۶,۷۴	۵۱,۰۰
۸	۵	۵۰	۵	۴۸,۷۹	۲۸,۰۳
۹	۵	۱۰۰	۷,۵	۸۵,۳۳	۵۱,۹۳

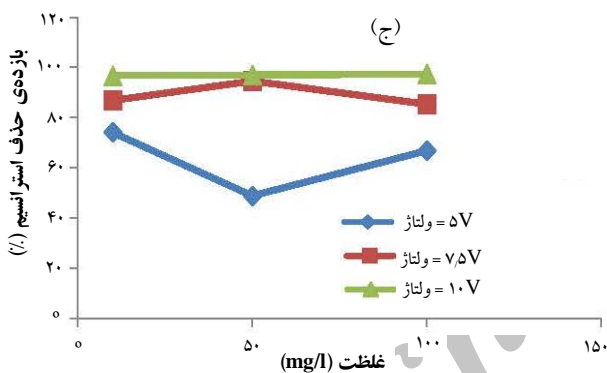
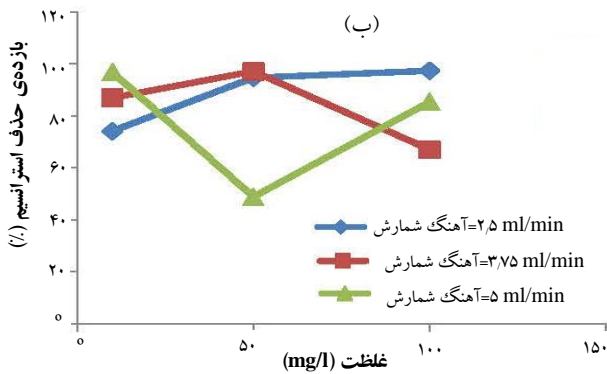
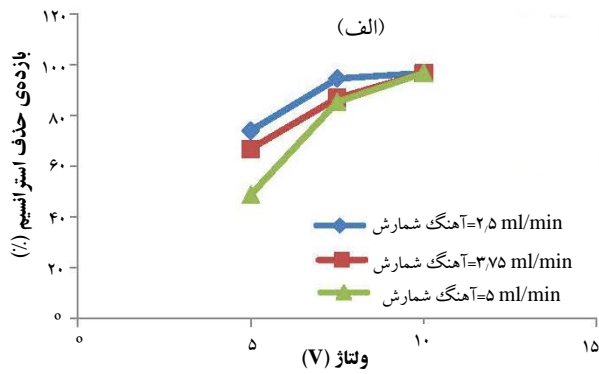
در شکل ۴. الف دیده می‌شود که همواره با افزایش ولتاژ به کار رفته به دلیل افزایش نیروی محرکه برای انتقال یون‌ها [۳۲] میزان S/N افزایش می‌یابد که به معنای افزایش بازده‌ی حذف استرانسیم و سزیم است.

افزایش غلظت یون در خوراک، باعث افزایش هدایت الکتریکی محلول (کاهش مقاومت الکتریکی) و به طور هم‌زمان باعث افزایش پدیده‌ی پولاریزاسیون غلظتی می‌شود، که به ترتیب به دلیل اثرگذاری مثبت و منفی، باعث افزایش و کاهش بازده‌ی حذف یون می‌شوند. در شکل ۴. ب دیده می‌شود که بیش‌ترین مقدار S/N در غلظت ۱۰ mg/l استرانسیم اتفاق افتاد. در این غلظت، پولاریزاسیون غلظتی از غلظت ۵۰ mg/l کم‌تر بود و براین‌د اثر مثبت افزایش هدایت الکتریکی و اثر منفی پولاریزاسیون غلظتی در غلظت ۱۰ mg/l از براین‌د این آثار در غلظت ۵۰ و ۱۰۰ mg/l مثبت‌تر و بزرگ‌تر است. مشاهده می‌شود که در غلظت‌های بالاتر به دلیل ایجاد پولاریزاسیون غلظتی و تأثیر منفی آن بر بازده‌ی حذف استرانسیم، میزان S/N کاهش می‌یابد. بنابراین بهترین حالت حذف استرانسیم در غلظت ۱۰ mg/l رخ می‌دهد.

به دلیل این‌که یون سزیم تک‌ظرفیتی است، میزان اثر مثبت بهبود هدایت الکتریکی حاصل از افزایش غلظت یون سزیم کم‌تر از یون‌های دو‌ظرفیتی استرانسیم است. در غلظت ۱۰ mg/l، به دلیل این‌که تعداد یون‌های سزیم در محلول کم است، مقاومت الکتریکی در این غلظت بالا است. بنابراین، کم‌ترین مقدار از S/N و بازده‌ی حذف سزیم در این غلظت رخ می‌دهد. در



شکل ۴. تأثیر (الف) ولتاژ، (ب) غلظت خوراک و (ج) دبی بر روی سیگنال به نویز به منظور حذف استرانسیم و سزیم با روش الکترودیونیزاسیون.



شکل ۵. همبستگی میان پارامترهای (الف) ولتاژ، (ب) دبی و (ج) غلظت خوراک به منظور حذف استرانسیم با الکترودیونیزاسیون پیوسته.

شکل ۶، نمودارهای همبستگی پارامترهای مختلف را به منظور حذف سزیم از محلول‌های آبی با الکترودیونیزاسیون پیوسته نشان می‌دهد. در شکل ۶ الف مشاهده می‌شود که در پایین‌ترین سطح دبی، با افزایش ولتاژ، بازدهی حذف سزیم به صورت یکنواخت افزایش یافت. در حالی که بیش‌ترین حذف سزیم، در پایین‌ترین سطح دبی و بیش‌ترین سطح ولتاژ رخ می‌دهد. در شکل ۶ ب نیز مشاهده می‌شود که در کم‌ترین دبی، با افزایش غلظت، همواره بازدهی حذف سزیم افزایش می‌یابد. با ثابت نگه داشتن ولتاژ، بیش‌ترین بازدهی حذف سزیم در کم‌ترین دبی و بیش‌ترین غلظت، رخ می‌دهد. در شکل ۶ ج نیز

غلظت ۵۰ و ۱۰۰ mg/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 رقیق‌کننده می‌شود که به دلیل اثرگذاری مثبت و منفی به ترتیب باعث افزایش و کاهش بازدهی حذف یون می‌شوند.

در شکل ۴ ج مشاهده می‌شود که بازدهی حذف استرانسیم و سزیم به صورت خطی با افزایش دبی کاهش می‌یابد که نشان‌دهنده‌ی غلبه‌ی اثر منفی کاهش زمان اقامت بر اثر مثبت افزایش اغتشاش در محلول است.

در جدول ۲ و شکل ۴ مشاهده می‌شود که در تمامی آزمایش‌ها، به دلیل تحرک یونی بالاتر، بازدهی حذف استرانسیم از بازدهی حذف سزیم بیش‌تر 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 بیش‌تر، و از طرفی استرانسیم دارای جرم کم‌تری است، تحرک استرانسیم بیش‌تر است و این عامل باعث افزایش جداسازی استرانسیم می‌شود.

شکل ۵، نمودارهای همبستگی پارامترهای مختلف را به منظور حذف استرانسیم از محلول‌های آبی با الکترودیونیزاسیون پیوسته نشان می‌دهد. در این نمودارها، همبستگی دو پارامتر در حالتی که سایر پارامترها در مقدار بهینه ثابت نگه داشته شده‌اند بررسی می‌شود. همان‌طور که در شکل ۵ الف مشاهده می‌شود، در تمامی دبی‌ها با افزایش ولتاژ، بازدهی حذف استرانسیم افزایش می‌یابد. در حالی که بیش‌ترین حذف استرانسیم در پایین‌ترین سطح دبی و بیش‌ترین سطح ولتاژ رخ می‌دهد. در شکل ۵ ب مشاهده می‌شود که در کم‌ترین دبی با افزایش غلظت، همواره بازدهی حذف استرانسیم افزایش می‌یابد. با ثابت نگه داشتن ولتاژ، بیش‌ترین بازدهی حذف استرانسیم در سطوح میانی دبی و غلظت خوراک رخ می‌دهد. در شکل ۵ ج نیز مشاهده می‌شود که با ثابت نگه داشتن دبی در مقدار بهینه، بیش‌ترین بازدهی حذف استرانسیم در بیش‌ترین ولتاژ و غلظت رخ می‌دهد. نکته‌ی مهم و معنی‌دار در حذف استرانسیم برای هر ترکیب پارامتری بررسی شده این است که همواره بیش‌ترین بازدهی حذف استرانسیم، در بالاترین سطح ولتاژ و کم‌ترین دبی خوراک به دست آمده است.

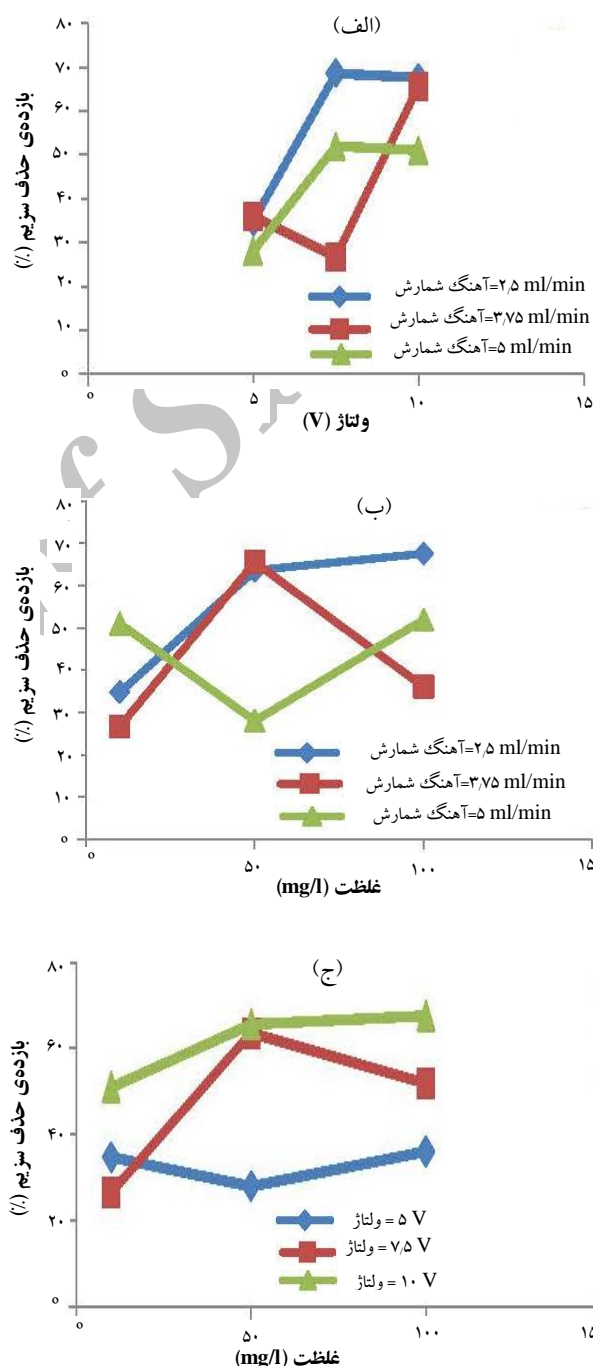
۳.۳ آنالیز واریانس

آنالیز واریانس آزمایش‌های 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 مقایسه‌ی معیار درصد تأثیر هر پارامتر روی پاسخ (P) بر بازدهی حذف استرانسیم و سزیم از جدول ۳، مشاهده می‌شود 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 بیش‌ترین تأثیر را بر بازدهی حذف استرانسیم و سزیم در فرایند الکترودیونیزاسیون دارد. ظاهری و همکاران (۲۰۱۰) در مطالعه‌ی مشابه برای حذف اورانیم از پساب با روش الکترودیالیز، تأثیر ولتاژ، دبی و غلظت خوراک به ترتیب ۴۲٪، ۵۵٪ و ۳٪ به دست آوردند [۳۳]. در این پژوهش نیز مشاهده شد که پارامتر غلظت نسبت به سایر پارامترها کم‌ترین میزان تأثیر را بر بازدهی حذف اورانیم دارد.

با استفاده از نرم‌افزار MiniTab، شرایط بهینه برای حذف استرانسیم در ولتاژ، دبی و غلظت برابر ۱۰V، ۲.۵ ml/min و ۱۰ mg/l، و برای حذف سزیم برابر ۱۰V، ۲.۵ ml/min و ۱۰۰ mg/l به دست آمد. برای بررسی صحت نتایج به دست آمده، آزمایش‌هایی در شرایط بهینه‌ی پیش‌بینی 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 پیش‌بینی شده توسط نرم‌افزار، مشاهده می‌شود که نتایج پیش‌بینی شده براساس روش آماری تاگوچی از دقت بالایی برخوردارند.

مشاهده می‌شود که با ثابت نگه داشتن دبی در مقدار بهینه، بیش‌ترین حذف سزیم در بیش‌ترین ولتاژ و بیش‌ترین غلظت رخ می‌دهد. به طور کلی نتایج ارائه شده در شکل ۶ نشان می‌دهند که در همه شرایط، بیش‌ترین ولتاژ به کار رفته، کم‌ترین دبی و بیش‌ترین غلظت خوراک، بهترین حالت برای حذف سزیم است.



شکل ۶. همبستگی میان پارامترهای (الف) ولتاژ، (ب) دبی و (ج) غلظت خوراک، به منظور حذف سزیم با الکترودیونیزاسیون پیوسته.

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

حذف سزیم					حذف استرانسیم					پارامتر
P (%)	F	MS	SS	DF	P (%)	F	MS	SS	DF	
۱۵,۱۵	۱,۵۵	۲۹۳,۷۷	۲۰۶,۲۶	۲	۹,۷	۱,۵۷	۱۰۳,۱۳	۲۰۶,۲۶	۲	دبی
۲۲,۲	۲,۲۶	۴۲۹,۸۹	۵۰,۱۰	۲	۲,۴	۰,۳۸	۲۵,۰۵	۵۰,۱۰	۲	غلظت
۶۲,۶۵	۳۹,۶	۱۲۱۳,۸۷	۱۸۶۶,۳۱	۲	۸۷,۹	۱۴,۱۷	۹۳۳,۱۵	۱۸۶۶,۳۱	۲	ولتاژ
----	----	۱۸۹,۸۳	۱۳۱,۶۶	۲	----	----	۶۵,۸۳	۱۳۱,۶۶	۲	خطا
۱۰۰	----	۲۱۲۷,۳۶	۲۲۵۴,۳۳	۸	۱۰۰	----	----	۲۲۵۴,۳۳	۸	مجموع

۴. نتیجه گیری

حذف استرانسیم و سزیم از محلول‌های آبی با روش الکترودیونیزاسیون بررسی شد. ابتدا تأثیر زمان بر بازدهی حذف استرانسیم از محلول‌های آبی با روش الکترودیونیزاسیون پیوسته با رزین پروتونه شده بررسی شد. در زمان‌های اولیه، بازدهی حذف استرانسیم به دلیل جذب بالای رزین تبادل کاتیون، بسیار زیاد بود. سپس سیستم الکترودیونیزاسیون با اُفتی محسوس در حذف استرانسیم به حالت پایا رسید. در ادامه، با استفاده از روش طراحی آزمایش تاگوچی، یک آرایه‌ی متعامد L_4 (سه پارامتر هر کدام با ۳ سطح) برای بررسی تأثیر ولتاژ، دبی و غلظت خوراک به منظور حذف استرانسیم و سزیم، از محلول‌های تک‌جزئی با روش الکترودیونیزاسیون پیوسته با رزین اشباع‌شده‌ی تحت ولتاژ استفاده شد. نتایج نشان داد که ولتاژ بیش‌ترین تأثیر را بر عملکرد الکترودیونیزاسیون دارد و با افزایش آن و کاهش دبی، عملکرد سیستم بهبود می‌یابد.

به دلیل اهمیت تأثیر ولتاژ به کار رفته، اثر آن بر بازدهی حذف استرانسیم و سزیم از محلول دوجزئی نیز بررسی شد. نتایج تجربی نشان داد که به دلیل تحرک یونی بیش‌تر یون‌های دوظرفیتی استرانسیم نسبت به یون‌های تک‌ظرفیتی سزیم، بازدهی حذف استرانسیم همواره از بازدهی حذف سزیم بیش‌تر است. براساس نتایج به دست آمده، الکترودیونیزاسیون پیوسته‌ی به دلیل تولید پیوسته‌ی آب با خلوص و کیفیتی بالا و بدون نیاز به احیای شیمیایی رزین‌های تبادل یون، دارای عملکردی مطلوب و مؤثر برای حذف استرانسیم و سزیم است.

۴.۳ حذف استرانسیم و سزیم از محلول دوجزئی با الکترودیونیزاسیون پیوسته

به دلیل این که پساب‌های واقعی حاوی چندین یون هستند، در این مطالعه، بازدهی حذف استرانسیم و سزیم از محلول دوجزئی با الکترودیونیزاسیون پیوسته نیز بررسی شد. به دلیل این که ولتاژ به کار رفته، مؤثرترین پارامتر بر بازدهی حذف استرانسیم و سزیم از محلول تک‌جزئی تعیین شد، اثر ولتاژ (۷/۵، ۱۰ و ۱۵V) بر بازدهی حذف استرانسیم و سزیم از محلول دوجزئی نیز بررسی شد. غلظت هر کدام از عناصر استرانسیم و سزیم در محلول 25mg/l و دبی عملیاتی 5ml/min بود. نتایج حذف استرانسیم و سزیم از محلول دوجزئی در جدول ۴ ارائه شده است. در این شرایط، بازدهی حذف استرانسیم و سزیم با افزایش ولتاژ به کار رفته افزایش یافت. بازدهی حذف سزیم در همه ولتاژهای به کار رفته کم‌تر از بازدهی حذف استرانسیم بود، زیرا نسبت بار الکتریکی به جرم سزیم، از نسبت بار الکتریکی به جرم استرانسیم کم‌تر 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 ۱۵V مقدار مجموع بازدهی حذف دو عنصر به 87.41% رسید.

جدول ۴. نتایج حذف استرانسیم و سزیم از محلول دوجزئی با روش الکترودیونیزاسیون

ولتاژ (V)	بازده حذف استرانسیم (%)	بازدهی حذف سزیم (%)	مجموع بازدهی حذف استرانسیم و سزیم (%)
۷,۵	۹۶,۵۱	۲۳,۷۹	۶۰,۱۵
۱۰	۹۷,۳۴	۴۲,۸۰	۷۰,۰۸
۱۵	۹۹,۶۶	۷۵,۱۷	۸۷,۴۱



- [1] 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. RAO, 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.
- [11] A. Dey, G. Thomas, *Electronics Grade Water Preparation*, Tall Oaks, Littleton, (2003).
- [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 l-(+)-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.



- [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 ion-exchanger, *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 Cu^{2+} 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 Mercox 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.