

بررسی قابلیت سیستم الکتروفتون با استفاده از الکترود گرافیت با پوشش نانو لوله کربن در حذف رنگزای اسید اورانژ ۷

محمد قالبی زاده^۱، بیتا آیتی*^۲

۱. کارشناس ارشد، مهندسی عمران و محیط زیست، دانشگاه تربیت مدرس

۲. دانشیار، مهندسی عمران و محیط زیست، دانشگاه تربیت مدرس

Ayati_bi@modares.ac.ir

تاریخ دریافت: [۸/۷/۱۳۹۴]

تاریخ پذیرش: [۲۳/۷/۱۳۹۳]

چکیده - رنگزاهای آزو در صنایعی مانند نساجی و رنگرزی کاربرد بسیاری دارند. با توجه به خصوصیات ویژه این ترکیبات از قبیل پتانسیل بالای سرطان‌زایی و جهش‌زایی روش‌های گوناگونی به منظور تصفیه آنها به کار گرفته شده است. به تازگی کاربرد فرایند الکتروفتون به دلیل کاهش مصرف انرژی، قدرت اکسندگی بالا و تولید محصولات جانبی دوستدار محیط زیست در حذف رنگزا از محلول‌های آبی به صورت گسترده‌ای افزایش یافته است. این فرایند شامل واکنش غیر انتخابی ترکیبات آلی و رادیکال هیدروکسید تولیدی طی الکترولیز H_2O_2 و یون آهن به عنوان کاتالیزور است. همچنین می‌توان به منظور افزایش راندمان تولید پراکسید هیدروژن و در نهایت کارایی این فرایند، ذرات کربن فعال و نانو لوله کربنی را در سطح الکترود کربنی تثبیت کرد. در این پژوهش فرایند الکتروفتون با استفاده از کاتدی از جنس گرافیت با پوشش نانو لوله کربنی و آندی از جنس فولاد زنگ نزن برای حذف رنگ از فاضلاب سنتزی انجام شد. نتایج روی فاضلاب سنتزی نشان داد که فرایند الکتروفتون تحت شرایط بهینه غلظت اولیه رنگزا ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر، چگالی جریان ۱ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، بدون هوادهی، pH معادل ۶/۵، سطح الکترود ۹۰ سانتی متر مربع، غلظت الکترولیت ۰/۰۱ مولار و با مصرف انرژی ۰/۱۳ کیلووات ساعت به ازای هر ppm رنگزای حذف شده پس از ۳۶۰ دقیقه به ترتیب به راندمان حذف ۹۸ و ۹۵ درصد برای رنگزا و COD رسید. در این پژوهش نشان داده شد که سیستم الکتروفتون با استفاده از الکترودهای گرافیت با پوشش نانو لوله کربنی و فولاد زنگ نزن در عین کاهش هزینه‌های اجرایی از کارایی بالایی در حذف رنگزای اسید اورانژ ۷ برخوردار است. بر اساس نتایج به دست آمده، فرایند الکتروفتون برای تجزیه فاضلاب حاوی رنگزا و آلاینده‌های مقاوم می‌تواند به عنوان پیش تصفیه مورد استفاده قرار گیرد. این تکنولوژی قابل اجراء موجب بهبود قابلیت تصفیه پذیری زیستی فاضلاب نساجی می‌شود.

واژگان کلیدی: الکتروشیمی، pH سطح الکترود، شدت جریان، انرژی مصرفی

۱ - مقدمه

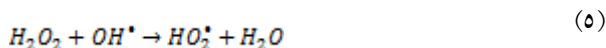
آنتراکینون^۱، تری فنیل متان^۲، پیرازولون^۳، نیترو^۴ و کوینولین^۵ وابسته است [۱]. از خصوصیات کلی این ترکیبات می‌توان به ساختار شیمیایی متنوع، مقاومت در برابر نور، مقاومت در برابر تجزیه بیولوژیکی، دامنه pH متغیر و از همه مهم‌تر سمیت، سرطانزا و

فاضلاب صنعت نساجی دارای طیف وسیعی از ترکیبات رنگزا و مواد شیمیایی افزودنی است که باعث ایجاد چالش‌های بسیار زیادی در محیط زیست می‌شود. رنگزاهای اسیدی از جمله رنگزاهای آلی سولفونیک است که به صورت تجاری معمولاً با نمک سدیم همراه بوده و به خوبی در آب قابل حل شدن است. این ترکیبات از نظر ساختار به گروه‌های شیمیایی دیگری از رنگزاها از قبیل آزو^۱،

2 Anthroquinone
3 Triphenylmethan
4 Pyrazolone
5 Nitro
6 Quinoline

1 Azo

جهش‌زا بودن اشاره کرد [۲ و ۳].



یکی از مسائل ضروری در سیستم الکتروفنتون بهبود تولید پراکسید هیدروژن می‌باشد [۱۸]. به همین منظور از مواد کربنی از قبیل گرافیت [۱۳]، فیبرهای کربن فعال [۱۹ و ۲۰]، اسفنج کربنی [۲۱]، کربن/گرافیت فلت^۹ [۲۲، ۲۳ و ۲۴] و ترکیب گرافیت-تفلون [۱۱] در ساختار الکتروُد کاتد استفاده می‌شود. این مواد به دلیل مزایایی از قبیل غیر سمی بودن، پایداری، هدایت الکتریکی بالا و مقاومت در برابر مواد شیمیایی به طور گسترده مورد استفاده قرار می‌گیرند.

به تازگی استفاده از نانو لوله‌های کربنی^{۱۰} در سلول به دلیل خواص منحصر به فرد آنها از قبیل سطح مقطع بالا و قابلیت هدایت الکتریکی قابل توجه، افزایش انتقال الکترون و نرخ واکنش و در نهایت بهبود عملکرد تولید پراکسید هیدروژن در سلول الکتروشیمیایی مورد توجه قرار گرفته است [۲۵]. در ادامه به برخی از پژوهش‌های صورت گرفته با استفاده از این فرایند در حذف رنگ‌زا اشاره می‌شود:

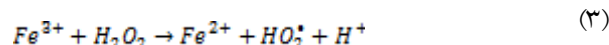
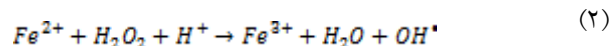
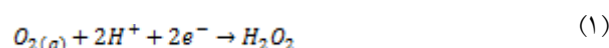
حذف رنگ از فاضلاب واقعی از طریق سیستم الکتروفنتون با استفاده از الکتروُد گرافیت به وسیله‌ی Wang و همکاران (۲۰۰۸) ارزیابی شد که نتایج به دست آمده نشان دهنده حذف ۷۰ درصدی رنگ پس از ۱۵۰ دقیقه آزمایش تحت شرایط بهینه با هوادهی با نرخ $0.3 \text{ dm}^3/\text{min}$ ، شدت جریان 68 A/m^2 ، غلظت یون آهن (II) 1 mM و $\text{pH}=3$ بود [۱۳].

ملکوئیان و همکاران (۱۳۹۰) با استفاده از الکتروُد گرافیت عملکرد فرایند الکتروفنتون در حذف COD و رنگ راکیو بلو ۱۹ از محلول آبی را بررسی کردند که پس از ۶۰ دقیقه الکترولیز تحت شرایط $\text{pH}=4$ اختلاف ولتاژ 20.7 V ، غلظت اولیه رنگ‌زا 100 mg/L ، غلظت یون آهن II 0.5 mg/L و غلظت سدیم سولفات 0.05 M به حذف کامل رنگ‌زا و ۹۵ درصد COD دست یافتند [۲۶].

تصفیه فاضلاب خشکشویی با استفاده از فرایند الکتروفنتون به وسیله‌ی یزدی و همکاران (۱۳۹۲) بررسی شد که نتایج نشان دهنده به ترتیب حذف $82/3$ و 95 درصدی COD و فسفات تحت شرایط $\text{pH}=3$ چگالی جریان $4/27 \text{ mA/cm}^2$ ، در مدت زمان ۲۰ دقیقه و غلظت 150 میلی گرمی در لیتر پراکسید هیدروژن بود [۲۷].

به طور کلی روش‌های مورد استفاده برای تصفیه فاضلاب صنایع نساجی شامل انواع فیزیکی، شیمیایی و بیولوژیکی می‌شود که می‌توان به عنوان نمونه به الکتروکوآگولاسیون [۴]، جذب [۵]، اکسیداسیون پیشرفته [۶]، فنتون [۷]، فتوالکتروفنتون [۸]، فتوالکتروشیمیایی [۹] و فتوالکتروکاتالیستی [۱۰] اشاره کرد. تاکنون به دلیل مصرف انرژی کم، راندمان بالا، توان بالای معدنی سازی ترکیبات آلی، تجهیزات ساده و شرایط عملیاتی نسبتاً ساده پژوهش‌های بسیاری در مورد حذف این آلاینده‌ها به وسیله‌ی سیستم‌های اکسیداسیون پیشرفته صورت گرفته است [۱۱ و ۱۲].

فرایند الکتروفنتون به صورت اکسیداسیون غیرمستقیم و بر مبنای تولید الکتروشیمیایی و در محل^۷ رادیکال‌های هیدروکسیل عمل می‌کند به گونه‌ای که در این فرایند ابتدا اکسیژن به فاز محلول منتقل شده و سپس به سطح کاتد جذب و در پایان در محیط اسیدی به طریق الکتروشیمیایی طبق واکنش (۱) به H_2O_2 احیا می‌شود [۱۳]. در مدت این فرایند، پراکسید هیدروژن به وسیله احیای الکتروشیمیایی مولکول‌های اکسیژن محلول و یون فرو (Fe^{2+}) فریک (Fe^{3+}) از طریق اکسیداسیون الکتروُد فولاد زنگ نزن در محیط واکنش ایجاد می‌شوند و طبق واکنش‌های (۲) و (۳) با تولید رادیکال هیدروکسیل و هیدروپروکسیل ترکیبات آلی را تجزیه می‌کنند [۱۱ و ۱۴].



هرچند طبق واکنش‌های ۴ و ۵، مقداری از رادیکال هیدروکسیل تولید شده در اثر ترکیب با یون فرو و پراکسید هیدروژن از بین می‌رود [۱۵]، اما رادیکال هیدروکسیل تولید شده به دلیل پتانسیل اکسیداسیون بالا موجب تجزیه و تخریب غیر انتخابی آلاینده‌های آلی و فلزات با بنیان آلی می‌شود [۱۶]. در یک سلول تقسیم نشده^۸، هر دو فرایند اکسیداسیون آندی و الکتروفنتون باهم رخ می‌دهند و موجب افزایش راندمان حذف آلاینده از فاضلاب می‌شوند. قدرت اکسیداسیون به عوامل زیادی مانند جنس آند و کاتد، ابعاد الکتروُد، دما، pH و شدت جریان بستگی دارد [۱۷].

9 Carbon/Graphite Felt
10 Carbon nanotubes (CNTs)

7 In situ
8 Undivided Cell

میزان حذف رنگزای اسید اورانژ ۷ ($C_{16}H_{11}N_2NaO_4S$) با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج حداکثری جذب آن (۴۸۵ nm) قرائت و از نمودار کالیبراسیون، غلظت‌های رنگزا به دست آمد. کلیه آزمایش‌های انجام یافته بر اساس روش‌های استاندارد آزمایش‌های آب و فاضلاب، در دمای محیط و با حداقل سه تکرار انجام گرفت [۲۹]. در این پژوهش با توجه به مطالعات پیشین، تاثیر پارامترهای اصلی شامل چگالی جریان ($0.5, 1, 1.5, 2$ mA/cm²)، نرخ هوادهی ($0, 3/5, 7$ L/min)، سطح الکترود ($30, 60, 90$ cm²)، pH اولیه (۲، ۳، ۶/۵ و ۹) و غلظت الکترولیت ($0.05, 0.1, 0.1$) و به مولار) انجام و برای کاهش مصرف انرژی، حداقل مقادیر ممکن برای راه‌اندازی سیستم الکترودفوتون انتخاب شد. در پایان تغییرات میزان COD و انرژی مصرفی مورد بررسی قرار گرفت. نکته قابل گفتن اینکه سیستم گفته شده با استفاده از روش OFAT^{۱۱} و به صورت بهینه‌سازی هر پارامتر پس از پارامتر دیگر صورت گرفت [۱۳، ۲۶، ۲۷ و ۲۸].

۲-۲- آماده سازی الکترود گرافیت با پوشش نانو

لوله کربنی

برای آماده سازی الکترود گرافیت با پوشش نانولوله کربنی، مقدار مناسبی از نانولوله با نصف میزان تفلون، ۳۰ میلی لیتر آب مقطر و ۳ درصد ۱- بوتانول به مدت ۲۰ دقیقه در حمام اولتراسونیک مخلوط شد. سپس مخلوط به دست آمده در دمای ۸۰ درجه سلسیوس حرارت داده شد تا غلیظ شود. مخلوط حاصل روی سطح الکترود پوشش داده شد و به مدت ۱۵ دقیقه در دمای ۳۵۰ درجه سلسیوس در کوره قرار گرفت تا کلسینه شود [۲۵].

۲-۳- مواد و تجهیزات

در این پژوهش مواد اصلی اسید اورانژ ۷ محصول شرکت الوان ثابت بعنوان آلاینده شاخص، نانو لوله کربن چند لایه (USnano)-n، butanol (Merck) و PTFE (Asian Hydrogen) به منظور پوشش دهی الکترود گرافیت، Na_2SO_4 (Merck) به منظور برقراری جریان در سلول و سولفات جیوه و سولفات نقره و دی کرومات پتاسیم و اسید سولفوریک (Merck) به منظور آنالیز COD استفاده شدند.

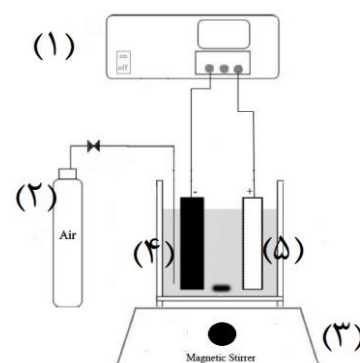
Lin و همکاران (۲۰۱۴) در بررسی حذف رنگزای اورانژ ۲ با استفاده از فرایند الکترودفوتون در دو سلول مجزا تحت شرایط $pH=3$ چگالی جریان 1.78 mA/cm²، Fe^{2+} با غلظت 0.2 mM و غلظت اولیه رنگزا، راندمان حذف 94.3 درصد را پس از ۹۰ دقیقه آزمایش گزارش کردند [۲۸].

با توجه به مطالعات صورت گرفته، هدف از این پژوهش بررسی حذف رنگزای آزوئی اسید اورانژ ۷ به وسیله سیستم الکترودفوتون با استفاده از الکترودهای فولاد زنگ نزن و گرافیت با پوشش نانو لوله کربنی به منظور کاهش هزینه‌های مصرفی و عملیاتی شدن سیستم بوده است. به همین منظور تاثیر پارامترهای موثر شامل شدت جریان، نرخ هوادهی، pH اولیه، سطح الکترود و غلظت الکترولیت بر راندمان حذف رنگزا بررسی شد و بهینه سازی میزان مصرف انرژی برای کاربردی تر شدن سیستم انجام شده است.

۲- مواد و روش‌ها

۲-۱- روش کار

سلول الکترودشیمیایی مورد استفاده در این تحقیق از جنس پلکسی گلاس به صورت مکعب مستطیل با ابعاد $15 \times 6 \times 7$ سانتی متر و حجم مفید ۵۰۰ mL شامل دو الکترود مستطیلی آند از جنس فولاد زنگ نزن 304 و کاتد از جنس گرافیت با پوشش نانو لوله کربن به فاصله 3 cm از یکدیگر بود که به دستگاه منبع تغذیه متصل گردید (شکل ۱). به منظور اختلاط و همگن بودن نمونه، یک همزن مغناطیسی به کار برده شد و هوادهی توسط پمپ هواده انجام گرفت.

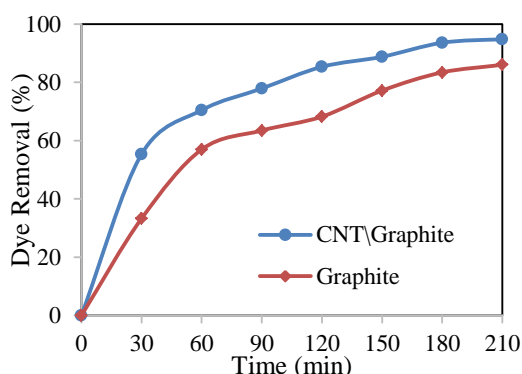


شکل (۱) شماتیک سیستم مورد استفاده در پژوهش

- ۱- منبع تغذیه
- ۲- پمپ هواده
- ۳- همزن مغناطیسی
- ۴- گرافیت با پوشش نانو لوله کربنی
- ۵- فولاد زنگ نزن

۳-۲- بررسی تاثیر پوشش دهی نانو لوله کربنی بر سطح الکتروود گرافیت

تاثیر پوشش دهی نانو لوله کربنی بر سطح الکتروود گرافیت با مقایسه راندمان حذف رنگزا به وسیله سیستم الکتروفتون در شرایط ثابت برای دو حالت الکتروود گرافیت با پوشش نانو لوله کربنی و بدون پوشش مورد بررسی قرار گرفت که نتایج آن در شکل (۳) آمده است.



شکل (۳) تاثیر پوشش نانو لوله کربنی بر سطح الکتروود گرافیت در راندمان حذف رنگزا ($[Dye]=100\text{ mg/L}$ ، $pH=7.5$ ، 1 mA/cm^2 چگالی جریان، $3/5\text{ L/min}$ نرخ هوادهی، $[Na_2SO_4]=0.1\text{ M}$ ، 30 cm^2 سطح الکتروود).

عملکرد سیستم الکتروفتون در حذف آلاینده های آلی در رابطه مستقیم با غلظت رادیکال هیدروکسیل تولید شده در سیستم است. یکی از عوامل موثر بر غلظت رادیکال هیدروکسیل، غلظت پراکسید هیدروژن تولید شده ناشی از احیای اکسیژن در سطح الکتروود کاتد (گرافیت) است. همان گونه که ملاحظه می شود، راندمان حذف رنگزا پس از گذشت ۱۲۰ دقیقه به ترتیب برای سیستم الکتروفتون با پوشش و بدون پوشش نانو لوله کربنی ۸۵ و ۶۸ درصد به دست آمد. استفاده از ترکیبات کربنی مانند نانو لوله کربنی موجب افزایش سطح و تخلخل الکتروود گرافیت و در نهایت عملکرد بهتر سیستم در احیای اکسیژن و تولید پراکسید هیدروژن می شود. هرچند با گذشت زمان این اختلاف کاهش یافته که ناشی از کاهش میزان آلاینده است [۲۵].

۳-۳- تعیین شدت جریان بهینه

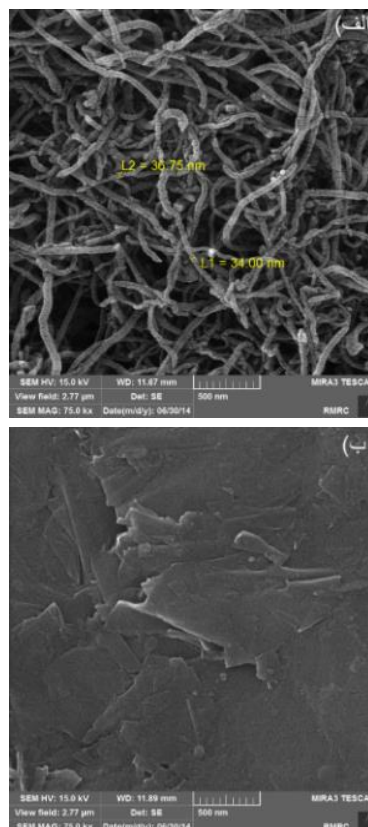
به منظور بررسی اثر شدت جریان بر راندمان حذف رنگزا، تحت شرایط ثابت، جریان های متفاوت در محدوده $0.5/1$ تا $1/8$ آمپر بر

تجهیزات مورد استفاده شامل دستگاه اسپکتروفتومتر Hach مدل DR 4000، منبع تغذیه Megatek مدل PM-3005D، همزن مغناطیسی IKA مدل RH-Basic 2، ترازوی دیجیتالی Mettler مدل PJ300 با دقت 0.001 گرم، هواده RS Electrica مدل RS610، pH متر Metrohm مدل 691، کوره الکتریکی DEM-ERD مدل F.69 میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مدل Mira3 Tescan برای آزمایش SEM و راکتور Hach COD مدل DRB200 بودند.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- بررسی مشخصات پوشش

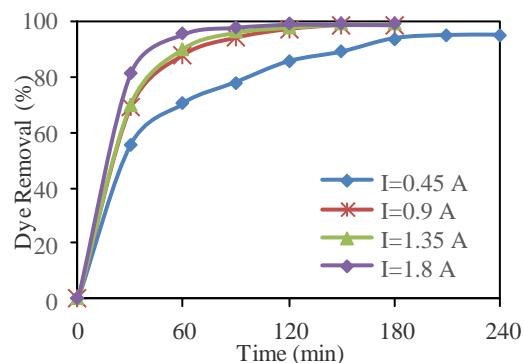
شکل (۲) نشان دهنده تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از سطح الکتروود گرافیت قبل و بعد از پوشش دهی با نانو لوله کربنی با قدرت بزرگ نمایی $75000\times$ می باشد. همان گونه که مشاهده می شود، نانو لوله های کربنی اندازه های حدود 30 تا 70 نانومتر داشته و سطح الکتروود به صورت نسبتاً یکنواخت پوشش داده شده است. همانطور که ملاحظه می شود، استفاده از نانو لوله کربنی موجب افزایش سطح الکتروود می شود.



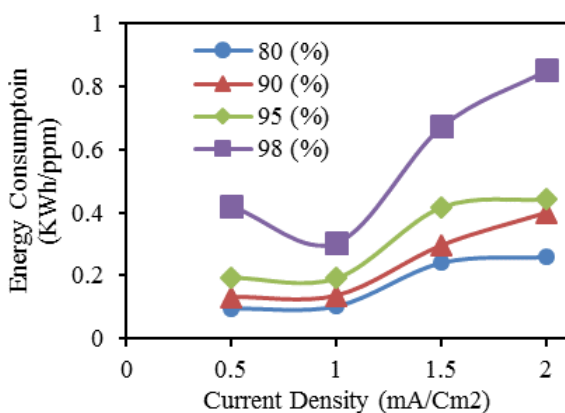
شکل (۲) تصویر SEM با بزرگنمایی $75000\times$ (الف) پوشش نانو لوله کربنی (ب) الکتروود گرافیت تنها

پایین حذف رنگزا در چگالی جریان 0.5 mA/cm^2 زمان مورد نیاز نسبت به چگالی 1 mA/cm^2 افزایش چشمگیری پیدا کرده که موجب ایجاد اختلاف در میزان انرژی مصرفی می‌شود. همچنین هر چند افزایش چگالی جریان به بیش از 1 mA/cm^2 موجب کاهش زمان آزمایش و افزایش راندمان می‌شود اما به دلیل افزایش اختلاف پتانسیل، افزایش انرژی مصرفی نیز اتفاق می‌افتد. با توجه به نتایج به دست آمده، چگالی جریان 1 mA/cm^2 با راندمان ۹۸ درصد و کمترین انرژی مصرفی (0.304 KWh/ppm) به عنوان چگالی جریان بهینه انتخاب شد.

سیستم اعمال شد که نتایج آن در شکل (۴) آمده است.



شکل (۴) تاثیر شدت جریان بر راندمان حذف رنگزا
 $[\text{Dye}] = 10 \text{ mg/L}$ ، $\text{pH} = 7.5$ ، $\text{L/min} = 3/5$ نرخ هوادهی،
 $[\text{Na}_2\text{SO}_4] = 0.1 \text{ M}$ ، $\text{cm}^2 = 90$ سطح الکترود،



شکل (۵) تاثیر چگالی جریان بر انرژی مصرفی نسبت به ppm رنگزا حذف شده در راندمان های مختلف حذف رنگزا $[\text{Dye}] = 10 \text{ mg/L}$ ،
 $\text{pH} = 7.5$ ، $\text{L/min} = 3/5$ نرخ هوادهی، $\text{cm}^2 = 90$ سطح الکترود، M
 $[\text{Na}_2\text{SO}_4] = 0.1$

۳-۴- تعیین pH اولیه بهینه

به منظور بررسی تاثیر pH اولیه بر راندمان حذف رنگزا، فرایند الکتروفوتون تحت شرایط ثابت و در pHهای اولیه ۲، ۳، ۴، ۵، ۶، ۷، ۸، ۹ بررسی شد که نتایج آن در شکل (۶) آمده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، به دلیل تولید مستقیم پراکسید هیدروژن در سیستم (واکنش ۳) راندمان حذف رنگزا در شرایط اسیدی از شرایط بهتری برخوردار است به گونه‌ای که راندمان حذف رنگزا برای pHهای ۲، ۳، ۴، ۵ و ۶ پس از ۳۰ دقیقه به ترتیب ۸۱، ۷۳، ۶۹ و ۶۶ درصد به دست آمد.

در pH اسیدی، قدرت اکسید کنندگی رادیکال هیدروکسیل افزایش می‌یابد و همچنین بهترین شرایط برای تشکیل این رادیکال در فرایند فتون مهیا است. با افزایش pH به سمت خنثی و حالت قلیایی

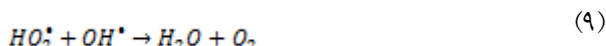
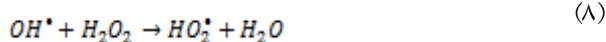
همان‌گونه که مشاهده می‌شود، افزایش شدت جریان موجب افزایش واکنش‌گرهای الکتروفوتون و تولید بیشتر رادیکال هیدروکسیل می‌شود (واکنش‌های ۱، ۶ و ۷) که در نتیجه موجب افزایش نرخ کاهش آلاینده می‌گردد به شکلی که پس از گذشت ۶۰ دقیقه راندمان حذف رنگزا برای شدت جریان‌های ۰/۴۵، ۰/۹، ۱/۳۵ و ۱/۸ آمپر به ترتیب به ۷۰، ۸۷، ۹۰ و ۹۵ درصد می‌رسد.



این روند با گذشت زمان به دلیل کاهش میزان آلاینده سیری نزولی به خود می‌گیرد و پس از ۱۸۰ دقیقه، راندمان نهایی حذف رنگزا به ترتیب به ۹۴، ۹۸، ۹۸ و ۹۸ درصد می‌رسد. در پژوهش Pajootan و همکاران (۲۰۱۴)، با افزایش شدت جریان از ۰/۱۲ به ۰/۳ آمپر نتایج مشابهی در حذف رنگزای اسید قرمز ۱۴ و اسید آبی ۹۲ بدست آمد [۱۲].

با توجه به تاثیر قابل توجه افزایش شدت جریان (چگالی جریان) بر میزان انرژی مصرفی، انرژی مصرفی به ازای هر ppm رنگزای حذف شده تحت شرایط بهینه به دست آمده و در راندمان‌های مختلف حذف رنگزا مورد بررسی قرار گرفت که نتایج آن در شکل (۵) ارائه شده است. همان‌گونه که ملاحظه می‌شود، برای راندمان‌های کمتر از ۹۵ درصد، افزایش چگالی جریان از 0.5 mA/cm^2 به ۱ تاثیر چندانی در مصرف انرژی به ازای هر ppm رنگزای حذف شده ندارد. اما برای دستیابی به راندمان‌های بالاتر به دلیل کاهش آلاینده و نرخ

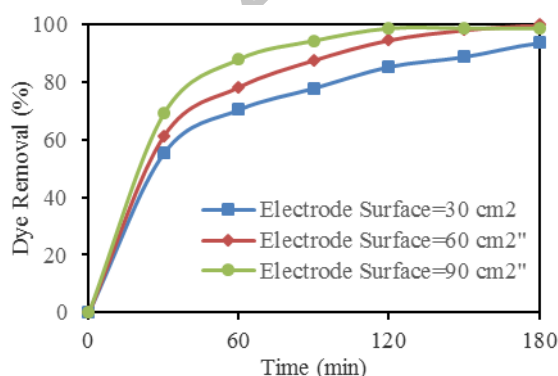
از آنجا که پوشش دهی نانو کربن موجب افزایش سطح تماس گاز اکسیژن با الکتروود و تولید بیشتر پراکسید هیدروژن طبق واکنش ۱ می‌شود، با افزایش نرخ هوادهی از صفر به ۳/۵ لیتر بر دقیقه، راندمان حذف رنگزا پس از ۶۰ دقیقه الکتروولیز از ۷۱ به ۸۷ درصد می‌رسد ولی با افزایش هوادهی به ۷ لیتر بر دقیقه، راندمان حذف پس از مدت زمان یکسان به ۷۵ درصد کاهش می‌یابد. این کاهش احتمالاً ناشی از عملکرد ممانعتی پراکسید هیدروژن اضافی در واکنش با رادیکال هیدروکسیل تولید شده و تولید دوباره پراکسید هیدروژن طبق واکنش‌های (۸) تا (۱۰) است [۳۲ و ۳۳]. Pajootan و همکاران (۲۰۱۴) با افزایش نرخ هوادهی به نتایج متفاوتی رسیدند به گونه‌ای که با افزایش نرخ هوادهی از ۰/۳۳ به ۰/۹۹ لیتر بر ساعت راندمان حذف رنگزای اسید رد ۱۴ و اسید بلو ۹۲ به ترتیب از ۹۰ به ۶۵ درصد و از ۶۰ به ۴۰ درصد کاهش یافت [۱۲].



با توجه به نتایج حاصل و به دلیل کاهش تاثیر هوادهی با گذشت زمان و به منظور کاهش انرژی مصرفی پمپ هوادهی، سیستم بدون هوادهی با راندمان ۹۸ درصدی حذف رنگزا پس از ۳۰۰ دقیقه آزمایش به عنوان حالت بهینه انتخاب شد.

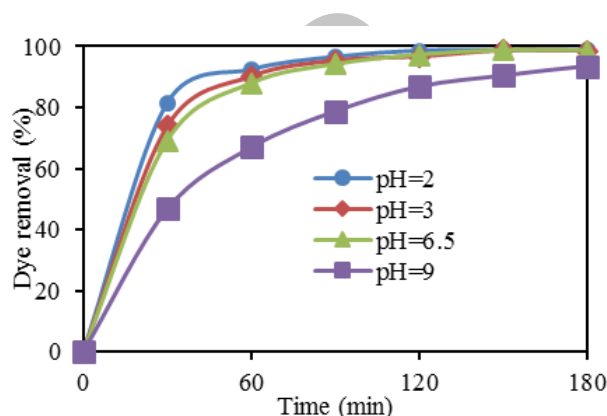
۳-۶- تعیین سطح الکتروود بهینه

به منظور بررسی سطح الکتروود بر راندمان حذف رنگزا، تاثیر تغییرات سطح الکتروود در شرایط بهینه به دست آمده از مراحل قبل مورد بررسی قرار گرفت که نتایج آن در شکل (۸) ارائه شده است.



شکل (۸) تاثیر سطح الکتروود بر راندمان حذف رنگزا بدون هوادهی، $[Na_2SO_4]=0/01 M$ ، $pH=7/5$ ، $[Dye]=100 mg/L$ ، چگالی جریان، $1 mA/cm^2$

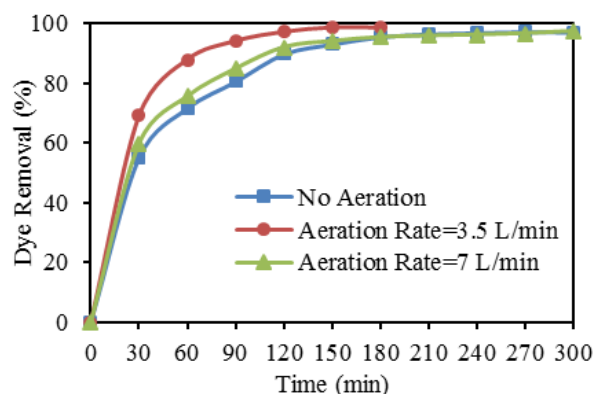
کارایی فرایند الکتروفتون در حذف رنگزا کاهش می‌یابد که ناشی از تشکیل گونه‌های فریک به شکل هیدروکسید $Fe(OH)_2$ است. این مسئله باعث کاهش باز تولید یون فرو و در نتیجه تجزیه سریع H_2O_2 به اکسیژن و آب شده و از تولید بیشتر رادیکال هیدروکسیل جلوگیری می‌کند [۱، ۳۰ و ۳۱]. در پایان به دلیل تغییر ناچیز pH در طول واکنش و به منظور کاهش مصرف مواد شیمیایی و هزینه‌های ناشی از آن برای خشتی سازی فاضلاب برای محیط پذیرنده، pH طبیعی رنگزا معادل ۶/۵ با راندمان ۹۷ درصدی پس از ۱۲۰ دقیقه آزمایش به عنوان pH بهینه انتخاب شد.



شکل (۶) تاثیر pH اولیه بر راندمان حذف رنگزا $[Dye]=100 mg/L$ ، چگالی جریان، $1 mA/cm^2$ ، نرخ هوادهی، $3/5 L/min$ ، $[Na_2SO_4]=0/01 M$ ، الکتروود، $90 cm^2$ ابعاد

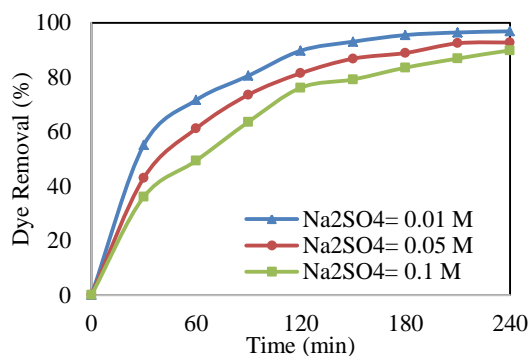
۳-۵- تعیین نرخ هوادهی بهینه

به منظور تعیین نرخ هوادهی بهینه، اثر هوادهی بر راندمان حذف رنگزا در شرایط ثابت در نرخ هوادهی صفر، ۳/۵ و ۷ لیتر بر دقیقه مورد بررسی قرار گرفت که نتایج آن در شکل (۷) آمده است.



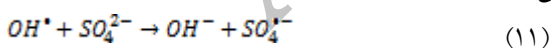
شکل (۷) تاثیر هوادهی بر راندمان حذف رنگزا $[Dye]=100 mg/L$ ، چگالی جریان، $1 mA/cm^2$ ، $pH=6/5$ ، $[Na_2SO_4]=0/01 M$ ، سطح الکتروود، $90 cm^2$

غلظت رنگزا، چگالی جریان، نرخ هوادهی، pH و سطح الکترود به دست آمده مورد بررسی قرار گرفت که نتایج حاصل در شکل (۱۰) ارائه شده است



شکل (۱۰) بررسی تاثیر غلظت الکترولیت بر راندمان حذف رنگزا بدون هوادهی، 90 cm^2 = سطح الکترود، $[\text{Na}_2\text{SO}_4] = 0.01 \text{ M}$ ، $[\text{Dye}] = 100 \text{ mg/L}$ ، $\text{pH} = 7.5$ ، 1 mA/cm^2 = چگالی جریان،

افزایش غلظت الکترولیت موجب افزایش قابلیت هدایت الکتریکی و در نتیجه شدت انتقال الکترودها در سیستم‌های الکتروشیمیایی به ویژه سیستم‌هایی که قابلیت هدایت الکتریکی در آنها بسیار پایین است، می‌شود [۳۴]. افزایش غلظت الکترولیت موجب کاهش راندمان حذف رنگزا شده به گونه‌ای که با افزایش از 0.01 M به 0.1 M نرخ حذف رنگزا پس از 60 دقیقه از 71 به 49 درصد کاهش یافته است. زیرا افزایش غلظت الکترولیت موجب افزایش نرخ واکنش (۱۱) می‌شود که در اثر افزایش غلظت یون SO_4^{2-} رادیکال هیدروکسیل تولیدی با آن واکنش داده و به یون هیدروکسید و رادیکال سولفات تبدیل می‌شود که از اکسندگی ضعیف‌تری به شمار می‌آیند.



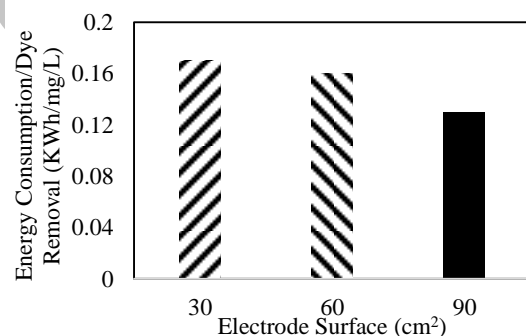
از طرف دیگر افزایش غلظت الکترولیت موجب افزایش نرخ تولید واکنش‌گرهای الکتروفنتون شده و سرعت واکنش‌های مخرب در این سیستم را نیز افزایش می‌دهد [۳۳]. با توجه به نتایج به دست آمده غلظت 0.01 M به عنوان مقدار بهینه انتخاب شد.

۳-۸- تعیین دمای بهینه

دما یکی از پارامترهای موثر در سیستم الکتروشیمیایی است که تاثیر آن با بررسی سیستم الکتروشیمیایی اصلاح شده در

همان‌گونه که مشاهده می‌شود، افزایش سطح الکترود موجب افزایش سرعت واکنش و حذف سریع‌تر آلاینده می‌شود به گونه‌ای که پس از 120 دقیقه الکترولیز، راندمان حذف برای الکترودهای با سطح 30 ، 60 و 90 سانتی‌متر مربع به ترتیب به 85 ، 94 و 97 درصد می‌رسد. این امر نشان دهنده تولید بیشتر H_2O_2 و رادیکال هیدروکسیل به دلیل افزایش تماس اکسیژن با سطح الکترود گرافیت و افزایش یون‌های آهن در سلول، در زمانی کوتاه‌تر است. البته با گذشت زمان به دلیل کاهش غلظت آلاینده نرخ حذف آلاینده کاهش می‌یابد و اختلاف بین سه سطح ناچیز می‌شود به گونه‌ای که پس از گذشت 180 دقیقه آزمایش، راندمان حذف رنگزا برای هر سه حالت به مقدار تقریبی 98 درصد می‌رسد.

با توجه به تاثیر سطح الکترود بر انرژی و همچنین اهمیت بسیار زیاد میزان انرژی مصرفی، تاثیر سطح الکترود بر انرژی مصرفی تحت شرایط بهینه مورد بررسی قرار گرفت که نتایج آن در شکل (۹) آمده است.

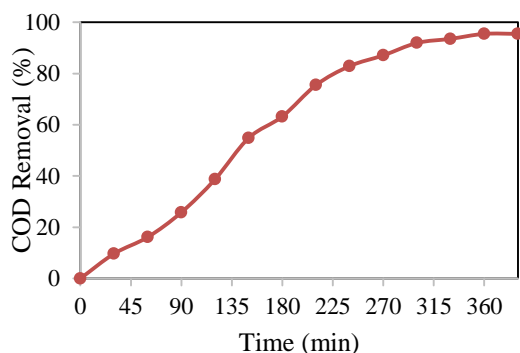


شکل (۹) تاثیر سطح الکترود بر میزان مصرف انرژی به ازای هر ppm رنگزای حذف شده $[\text{Dye}] = 100 \text{ mg/L}$ ، $\text{pH} = 7.5$ ، 1 mA/cm^2 = چگالی جریان، بدون هوادهی، $[\text{Na}_2\text{SO}_4] = 0.01 \text{ M}$

همان‌گونه که ملاحظه می‌شود، میزان انرژی مصرفی به ازای هر ppm رنگزای حذف شده در الکترودهای با سطح 90 سانتی‌متر مربع کمترین میزان (0.13 KWh/ppm) را داشته که به همین دلیل به عنوان سطح بهینه انتخاب شد.

۳-۷- تعیین غلظت الکترولیت بهینه

غلظت الکترولیت از دیگر پارامترهای موثر در سیستم الکتروشیمیایی الکتروفنتون به شمار می‌رود. به منظور بررسی تاثیر غلظت الکترولیت بر راندمان حذف رنگزا، تاثیر این پارامتر در شرایط بهینه



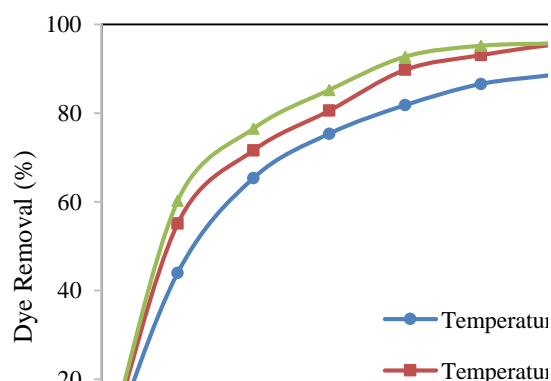
شکل (۱۲) بررسی حذف COD رنگزا در سیستم الکتروشیمیایی اصلاح شده $\text{pH}=7.5$, $[\text{Dye}]=100 \text{ mg/L}$
 1 mA/cm^2 چگالی جریان، بدون هوادهی، 90 cm^2 سطح الکتروود، M $[\text{Na}_2\text{SO}_4]=0.1$

۴- نتیجه گیری

استفاده از روش‌های الکتریکی به ویژه فرایند الکتروفتون به دلیل کاهش مصرف انرژی (نسبت به سایر روش‌های الکتروشیمیایی و فتوکاتالیستی تولید کننده رادیکال‌های مشابه)، قدرت تجزیه بالای ترکیبات سمی و تولید ترکیبات دوستدار محیط زیست (پراکسید هیدروژن) توجه زیادی را به خود جلب کرده است.

در این پژوهش، کاربرد پوشش نانو لوله کربنی منجر به افزایش راندمان سیستم در اثر افزایش سطح دسترسی اکسیژن به سطح کربنی و تولید بیشتر پراکسید هیدروژن و در نهایت رادیکال هیدروکسیل شد. طبق نتایج حاصل، سیستم فتوالکتروفتون پژوهش شده پس از گذشت ۳۶۰ دقیقه به ترتیب منجر به حذف ۹۸ و ۹۵ درصدی رنگزا و COD تحت شرایط بهینه غلظت اولیه رنگزا ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر، $\text{pH}=7.5$ ، چگالی جریان ۱ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، بدون هوادهی، سطح الکتروود 90 cm^2 ، غلظت الکتروولیت M 0.1 با مصرف 0.13 kWh انرژی به ازای هر ppm رنگزا شد که نشان از کارایی بالای فرایند الکتروفتون با پوشش نانولوله کربنی روی الکتروود گرافیت در حذف رنگزا و ترکیبات آلی مقاوم از محیط آبی دارد و همچنین از آنجایی که میزان انرژی مصرفی برای افزایش راندمان حذف رنگزا با کاهش غلظت آلاینده در طول زمان آزمایش زیاد می‌شود، به منظور کاهش میزان انرژی مصرفی می‌توان از این سیستم به عنوان پیش تصفیه ترکیبات سمی و سخت تجزیه پذیر استفاده کرد.

سه حالت ۱۵، ۲۵ و ۳۵ درجه سلسیوس تحت شرایط ثابت غلظت رنگزا، شدت جریان، pH، نرخ هوادهی، سطح الکتروود و غلظت الکتروولیت بررسی شد. نتایج حاصل در شکل (۱۱) ارائه شده است.



شکل (۱۱) تاثیر دما بر راندمان حذف رنگزا $[\text{Dye}]=100 \text{ mg/L}$ ، $\text{pH}=7.5$ ، 1 mA/cm^2 چگالی جریان، 90 cm^2 سطح الکتروود، $[\text{Na}_2\text{SO}_4]=0.1 \text{ M}$

همان‌گونه که مشاهده می‌شود، افزایش دما موجب افزایش راندمان حذف رنگزا در دقایق اولیه می‌شود که ناشی از افزایش سرعت واکنش‌ها در اثر افزایش فعل و انفعالات و افزایش تولید رادیکال‌های هیدروکسیل است [۳۳] ولی با گذشت زمان به دلیل کاهش غلظت رنگزا، این افزایش نرخ با سیری نزولی همراه می‌شود و پس از گذشت ۲۴۰ دقیقه تفاوت چندان در راندمان حذف رنگزا در دماهای مختلف ملاحظه نمی‌شود. در پژوهش Panizza (۲۰۰۹)، افزایش دما از ۲۵ به ۳۵ درجه موجب افزایش حذف رنگزا از ۷۵ به ۸۰ شد ولی با افزایش بیشتر دما به ۴۵ درجه تغییری در حذف رنگزا مشاهده نشد [۳۵].

۳-۹- بررسی تغییرات حذف COD

پس از مشخص شدن شرایط بهینه سیستم الکتروشیمیایی با پوشش نانو لوله کربنی، راندمان حذف COD رنگزا بررسی شد که نتایج آن در شکل (۱۲) آمده است.

همان‌گونه که مشاهده می‌شود، راندمان حذف COD پس از ۳۶۰ دقیقه ثابت شده و به ۹۵ درصد رسیده است. زیرا رادیکال هیدروکسیل تولید شده حاصل از واکنش پراکسید هیدروژن با یون آهن بعنوان یکی از قوی‌ترین اکسندرها، در واکنش با آلاینده‌ها منجر به شکسته شدن پیوندهای رنگزا، کاهش بار آلی و تولید ترکیبات ساده‌تر و معدنی می‌شود.

coated stainless steel electrode prepared by electrophoretic deposition, *Applied Catalysis B: Environmental*, 140-14 (2013) 32-41.

9. Peng, Y.P. Yassitepe, E. Yeh, Y.T. Ruzybayev, I. Ismat Shah, S. Huang, C.P. Photoelectrochemical degradation of azo dye over pulsed laser deposited nitrogen-doped TiO₂ thin film. *Applied Catalysis B: Environmental*, 125 (2012) 465-472.

10. Turolla, A., Fumagalli, M., Bestetti, M., & Antonelli, M. (2012). Electrophotocatalytic decolorization of an azo dye on TiO₂ self-organized nanotubes in a laboratory scale reactor. *Desalination*, 285, 377-382.

11. Oturan, M. A., Oturan, N., Edelahi, M. C., Podvorica, F. I., & Kacemi, K. E. (2011). Oxidative degradation of herbicide diuron in aqueous medium by Fenton's reaction based advanced oxidation processes. *Chemical Engineering Journal*, 171(1), 127-135.

12. Pajootan, E., Arami, M., and Rahimdokht, M. (2014). Discoloration of wastewater in continuous electro-Fenton process using modified graphite electrode with multi-walled carbon nanotubes/surfactant. *Separation and Purification Technology*, 130, 34-44.

13. Wang, C. T., Hu, J. L., Chou, W. L., & Kuo, Y. M. (2008). Removal of color from real dyeing wastewater by Electro-Fenton technology using a three-dimensional graphite cathode. *Journal of Hazardous Materials*, 152(2), 601-606.

14. Serra A. Domenech X. Arias C. Brillas E. Parel J. Oxidation of α -methylphenylglycine under Fenton and electro-Fenton conditions in the dark and in the presence of solar light. *Applied Catalysis B: Environmental*, 89 (2009) 12-21.

15. Montanaro D. Pertucci E. Meril C. Anodic, cathodic and combined treatment for the electrochemical oxidation of an effluent from the flame retardant industry. *Journal of Applied Electrochemistry*, 38 (2008) 947-957.

16. Oturan M.A., Brillas E. Electrochemical advanced oxidation processes for environmental applications. *Portugaliae Electrochimica Acta*, 25 (2007) 1-18.

17. Brillas E. Sires I. Cabot P.L. Use of both anode and cathode reaction in wastewater treatment. In: Comminellis C, Chen G, editors. *Electrochemistry for the environment*. New York, Springer Science Business Media, 2010.

18. Zhou, L., Zhou, M., Zhang, C., Jiang, Y., Bi, Z., & Yang, J. (2013). Electro-Fenton degradation of p-nitrophenol using the anodized graphite felts. *Chemical Engineering Journal*, 233, 185-192.

19. Lei, H., Li, H., Li, Z., Li, Z., Chen, K., Zhang, X., & Wang, H. (2010). Electro-Fenton degradation of cationic red X-GRL using an activated carbon fiber cathode. *Process Safety and Environmental Protection*, 88(6), 431-438.

20. Ahmad, A. A., & Hameed, B. H. (2010). Effect of preparation conditions of activated carbon from

۵- تشکر و قدردانی

بدین وسیله از ستاد ویژه توسعه فناوری نانو به لحاظ حمایت مالی و معاونت محترم پژوهشی دانشگاه تشکر و قدردانی می‌شود.

۶- مراجع

- اسلامی اکبر، مسعودی نژاد محمد رضا، قنبری فرشید، مرادی مهسا، (۱۳۹۱). «بررسی تصفیه پذیری فاضلاب واقعی صنعت نساجی به وسیله فرایند تولید الکتروشیمیایی واکنش گر فتون با استفاده از کاتد گرافیت فلت». *مجله سلامت و محیط، فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایران، دوره پنجم، شماره سوم، صفحات ۲۷۳ تا ۲۸۲*.
- Pekakis, P. A., Xekoukoulotakis, N. P., & Mantzavinou, D. (2006). Treatment of textile dyehouse wastewater by TiO₂ photocatalysis. *Water Research*, 40(6), 1276-1286.
- De Souza, S. M. D. A. G. U., Bonilla, K. A. S., & de Souza, A. A. U. (2010). Removal of COD and color from hydrolyzed textile azo dye by combined ozonation and biological treatment. *Journal of Hazardous Materials*, 179(1), 35-42.
- Merzouk B. Gourich B. Sekki A. Madani K. Vial C. Barkaoui M. Studies on the decolorization of textile dye wastewater by continuous electro-coagulation process. *Chemical Engineering Journal*, 149 (2009) 207-214.
- همزه یحیی، ایزدیار سهیلا، آزاده الهام، ابیض علی، اسداللهی یوسف، (۱۳۹۰). «استفاده از پسماند کانولا به عنوان جاذب رنگ اسید اورانژ ۷ از محلول آبی»، *فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط ایران، دوره چهارم، شماره اول، صفحات ۴۹-۵۶*.
- ضرابی منصور، رحمانی علیرضا، سمرقندی محمدرضا، برجسته عسکری فاطمه، (۱۳۹۱). «بررسی کارایی پودر آهن صفر ظرفیتی (ZVI) در حضور نور UV و پراکسید هیدروژن در حذف رنگهای اسید اورانژ ۷ و راکتیو بلک ۵ از محلول آبی»، *مجله سلامت و محیط زیست، فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت محیط زیست، دوره پنجم، شماره چهارم، صفحات ۴۶۹-۴۷۸*.
- Ertugay, N. Acar, F. N., Removal of COD and color from Direct Blue 71 azo dye wastewater by Fenton's oxidation: Kinetic study, *Arabian Journal of Chemistry*, 6 (2013) 136-142.
- Lin W. C. Chen C. H. Tang H. Y. Hsiao. Y. C. Pan J. R. Hu C. Huang C. Electrochemical Photocatalytic degradation of dye solution with a TiO₂ -

28. Lin, H., Zhang, H., Wang, X., Wang, L., & Wu, J. (2014). Electro-Fenton removal of Orange II in a divided cell: Reaction mechanism, degradation pathway and toxicity evolution. *Separation and Purification Technology*, 122, 533-540.
29. APHA, AWWA, WEF (2012). *Standard Methods for the Examination of water and wastewater*. USA: Washington EC.
۳۰. باقری امیر، موسوی غلامرضا، خوانین علی. بررسی کارایی فرایند الکتروفتون در تصفیه صنعتی. انجمن علمی بهداشت محیط ایران، دوره پنجم، شماره دوم، تابستان ۱۳۹۱. ص ۱۴۳-۱۵۶.
۳۱. سمرقندی محمد رضا، شعبانلو امیر، شمسی خدیجه، مهرعلی پور جمال، پورعشق یوسف، بررسی کارایی فرایند الکتروفتون در حذف سیانید در حضور مداخله گر اسید هیومیک از محیط های آبی، مجله سلامت و بهداشت، دوره چهارم، شماره چهارم، زمستان ۱۳۹۲، ص ۲۹۳-۳۰۳.
32. Daneshvar N., Aber S., Vatanpour V., Rasoulifard M. H. (2008). Electro-fenton treatment of dye solution containing Orange II: Influence of operational parameters. *Journal of Electroanalytical Chemistry*. 615, 165-174.
33. Nidheesh, P. V., & Gandhimathi, R. (2012). Trends in electro-Fenton process for water and wastewater treatment: an overview. *Desalination*, 299, 1-15.
34. Zhang, T., Yu, S. R., & Feng, H. X. (2012). Fenton-like mineralization of anion surfactant by Fe₂O₃/attapulgite catalyst. *Advanced Materials Research*, 399, 1392-1395.
35. Panizza, M., & Cerisola, G. (2009). Electro-Fenton degradation of synthetic dyes. *Journal of Water Research*, 43(2), 339-344.
- bamboo waste for real textile wastewater. *Journal of Hazardous Materials*, 173(1), 487-493.
21. Özcan, A., Şahin, Y., Kopalal, A. S., & Oturan, M. A. (2008). Degradation of picloram by the electro-Fenton process. *Journal of Hazardous Materials*, 153(1), 718-727.
22. Oturan, M. A., Pimentel, M., Oturan, N., & Sirés, I. (2008). Reaction sequence for the mineralization of the short-chain carboxylic acids usually formed upon cleavage of aromatics during electrochemical Fenton treatment. *Electrochimica Acta*, 54(2), 173-182.
23. Özcan, A., Şahin, Y., Savaş Kopalal, A., & Oturan, M. A. (2008). Carbon sponge as a new cathode material for the electro-Fenton process: Comparison with carbon felt cathode and application to degradation of synthetic dye basic blue 3 in aqueous medium. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 616(1), 71-78.
24. Zhou, M., Tan, Q., Wang, Q., Jiao, Y., Oturan, N., & Oturan, M. A. (2012). Degradation of organics in reverse osmosis concentrate by electro-Fenton process. *Journal of Hazardous Materials*, 215, 287-293.
25. Khataee, A. R., Safarpour, M., Zarei, M., & Aber, S. (2011). Electrochemical generation of H₂O₂ using immobilized carbon nanotubes on graphite electrode fed with air: Investigation of operational parameters. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 659(1), 63-68.
۲۶. ملکوتیان محمد، اسدی مهدی، محوی امیر حسین، (۱۳۹۰). ارزیابی عملکرد فرایند الکتروفتون در حذف COD و رنگ راکتیو بلو ۱۹ از محلول آبی، مجله سلامت و محیط، فصلنامه علمی پژوهشی انجمن علمی بهداشت ایران، دوره پنجم، شماره چهارم صفحات ۴۳۳ تا ۴۴۴.
۲۷. یزدی مریم، امین زاده بهنوش، ترابیان علی، (۱۳۹۲). «تصفیه فاضلاب خشکشویی با استفاده از فرایندهای انعقاد و شناورسازی الکتریکی و الکتروفتون». محیط شناسی، سال سی و نهم شماره ۳، صفحات ۱-۱۲.

Analysis of degradation of Acid Orange 7 by Electro-Fenton process with graphite cathode coated by carbon nanotubes

M. Ghalebizade¹, B. Ayati^{2*}

- 1- M.Sc. Student of Environmental Eng., Tarbiat Modares University.
- 2- Associate Professor, Civil and Environmental Eng. Faculty, Tarbiat Modares University.

ayati_bi@modares.ac.ir

Abstract

Azo dyes are widely used in a variety of industries such as textile. These compounds constitute the largest class of dyes and contains one or various azo groups conjugated with aromatic systems such as acid azo dyes which have sulfonic groups causing strong attachment to the cationic groups of fibers. The characteristics of these materials are high color intensity and visibility in very low concentrations, complex chemical structures, and light resistance and hard to biodegradability, variability in pH range and above of these they have high carcinogenic and mutagenic potential. Generally, the physical, chemical and biological methods are considered as textile wastewater treatment techniques such as electrocoagulation, absorption, advanced oxidation, Fenton, photo-Fenton, photoelectrochemical and photoelectrocatalytic. Electro-Fenton is an indirect oxidation process and is based on in situ electrochemical generation of peroxide hydrogen due to electrochemical reduction of dissolved oxygen next to graphite cathode. In this process hydroxide radicals are generated by reaction of hydrogen peroxide and iron ions in acidic condition. Hydroxide radicals are the most powerful radicals with high oxidation potential lead to degrade organic matters into simple compounds like water and carbon dioxide. Recently carbonic material like carbon felt, graphite, activated carbon fibers, carbon nanotubes, carbonic sponge and graphite-PTFE are used to improve electro-Fenton process. Enhancement of surface area, reaction rate and electron transfer are the main reasons which Carbon nanotubes are used to improve electrochemical production of hydrogen peroxide in electro-Fenton process. Dye removal increased at initial reaction time by increasing current intensity, aeration rate and electrode surface due to enhancing electro-Fenton reagents, meanwhile it decreased with increasing pH and electrolyte concentration. Reduction in dye degradation is usually caused by scavenging role of hydrogen peroxide and iron ions due to reaction of these compounds with hydroxyl radicals which decreased its concentration in reactor. Dye degradation increase by enhancement of Initial dye concentration from 35 to 100 mg/L but when initial dye concentration increased further to 200 mg/L, degradation rate was reduced. On the other hand energy consumption reduced by decreasing current intensity from 2 to 1 mA/cm² and enhancing electrode surface from 30 to 90 cm². It has been shown that carbon nanotubes coated on graphite cathode could enhance dye removal rate by increasing hydrogen peroxide concentration due to increase electrode surface area, electron transfer and reaction rate. The results showed that dye and COD removal efficiency was obtained 98% and 95% after 180 and 360 minutes respectively at the optimal condition of effective parameters such as current density of 1 mA/cm², pH of 6.5, no aeration, initial dye concentration of 100 mg/L, electrode surface of 90 cm², electrolyte concentration of 0.01 M, temperature of 25 °C and energy consumption of 0.13 KWh/ppm. Electro-Fenton process seems to be an economic and environmental friendly process to remove the toxicity of the persistent organic pollutants from water due to generation of hydrogen peroxide and hydroxyl radicals. It has been demonstrated that electro-Fenton process with the use of stainless steel anode and graphite cathode coated with carbon nanotube is a very effective and operative method to degrade Acid Orange 7.

Keywords: electrochemical, pH, electrode surface, current intensity, energy consumption