

بهینه‌سازی فرایند انعقاد الکتریکی در تصفیه فاضلاب نساجی با استفاده از روش سطح پاسخ

سمانه قدرتی^۱، سید غلامرضا موسوی^۲

پذیرش: ۹۲/۰۶/۲۳

دریافت: ۹۲/۰۳/۲۷

چکیده

زمینه و هدف: انعقاد الکتریکی (EC) به عنوان یک روش الکتروشیمیایی جهت غلبه بر مشکلات تکنولوژی‌های رنگ‌زدایی متعارف توسعه یافته و یک جایگزین مناسب برای تصفیه رنگ‌های نساجی است. هدف این مطالعه بهینه‌سازی فرایند EC برای رنگ‌زدایی و حذف COD از یک فاضلاب نساجی واقعی است.

روش بررسی: در این تحقیق، مقیاس آزمایشگاهی راکتور انعقاد الکتریکی جهت تصفیه فاضلاب نساجی طراحی، ساخته و مورد مطالعه قرار گرفت. متغیرهای بهره‌برداری اصلی شامل شدت جریان، زمان ماند، pH اولیه و جنس الکترود به عنوان متغیرهای مستقل و رنگ و COD به عنوان متغیرهای وابسته در نظر گرفته شد. مراحل آزمایش با استفاده از متغیرهای انتخابی توسط نرم‌افزار Design Expert ۷/۰ طراحی شد و فرایند برای رنگ‌زدایی و حذف COD با استفاده از روش سطح پاسخ بهینه‌سازی گردید.

یافته‌ها: شرایط بهینه بهره‌برداری در فرایند انعقاد الکتریکی جهت دستیابی به حداکثر رنگ‌زدایی و حذف COD شدت جریان ۰/۹۷ A، pH اولیه ۴/۰۴ و زمان ماند ۴۸ min و الکترود آهن بدست آمد. فاکتور مطلوبیت برای الکترود Fe، رنگ‌زدایی و حذف COD به ترتیب برابر ۱، ۰/۷۶۳ و ۰/۷۵۶ بود که با یافته‌های تجربی منطبق هستند.

نتیجه‌گیری: نتایج تجربی نشان داد که فرایند انعقاد الکتریکی یک فرایند کارآمد و امیدبخش برای رنگ‌زدایی و حذف COD جهت پساب‌های نساجی است. تحت شرایط بهره‌برداری بهینه، مقادیر تجربی با مقادیر پیش‌بینی شده همبستگی خوبی داشت که نشان‌دهنده تناسب مدل و موفقیت RSM در بهینه‌سازی فرایند انعقاد الکتریکی در تصفیه فاضلاب نساجی با حداکثر حذف رنگ و COD تحت شرایط انتخاب شده جهت متغیرهای مستقل است.

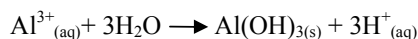
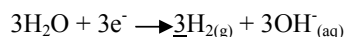
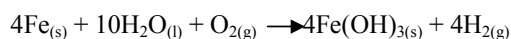
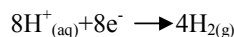
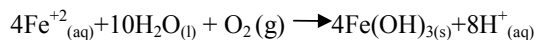
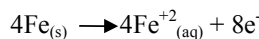
واژگان کلیدی: انعقاد الکتریکی، فاضلاب نساجی، رنگ‌زدایی، بهینه‌سازی، روش سطح پاسخ

۱-دانشجوی کارشناسی ارشد دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران

۲-(نویسنده مسئول): دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده علوم پزشکی دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران

مقدمه

ثانویه و کاهش میزان لجن تولیدی نیازمند دفع، زمان واکنش کم و بنابراین اندازه کوچک راکتور و بهره‌برداری و نگهداری ساده، قابلیت انتخاب، انعطاف‌پذیری، سازگار با محیط‌زیست، ایمنی و از نظر اقتصادی مقرون به صرفه است (۹-۱۸). در ایران نیز تحقیقات زیادی در رابطه با کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی در حذف آلاینده‌هایی همچون حذف فنل از محیط آبی (۱۹)، ترکیبات نفتی از آب‌های زیرزمینی (۲۰) و کاهش بار آلی شیرابه (۲۱) و تصفیه فاضلاب کشتارگاه دام (۹) صورت گرفته است. بنابراین، با توجه به مزایای منحصر به فرد فرآیند انعقاد الکتریکی، اثربخشی این فرآیند در تصفیه فاضلاب واقعی نساجی سودمند است. مکانیسم فرآیند انعقاد الکتریکی در محل الکترودهای Fe و Al به شرح زیر است (۲۲):



فاضلاب ناشی از فرایندهای رنگ‌رزی و تکمیلی در صنعت نساجی، منبعی قابل توجه از آلودگی است که دارای رنگ شدید، اکسیژن مورد نیاز شیمیایی بالا، pH متغیر (اسیدی یا بازی بسته به فرآیند مورد استفاده)، دمای بالا، ذرات معلق و اکسیژن مورد نیاز شیمیایی بالاست (۱، ۲). فاضلاب‌های رنگی حاوی مواد شیمیایی سمی و سرطان‌زای منتشر شده به محیط زیست تحت واکنش‌های شیمیایی و بیولوژیکی و مصرف اکسیژن محلول آب‌ها، منبع آلودگی زیباشناختی است و با جلوگیری از نفوذ نور در آب باعث اختلال در زندگی آبزیان می‌شود و به دلیل مقاومت نسبت به نور، فعالیت بیولوژیکی و دیگر شرایط زیست‌محیطی تجزیه‌کننده، عامل آلودگی جدی محیط‌زیست به‌شمار می‌روند (۳). این در حالیست که سالانه حدود ۱۰۰ هزار نوع رنگ مختلف در سرتاسر دنیا به میزان حدود ۷۰۰۰۰۰ ton تولید می‌گردد (۴، ۵). بنابراین، این‌ها بایستی قبل از تخلیه نهایی جهت دستیابی به استانداردهای قانونی و زیباشناختی تصفیه گردند (۲، ۶).

روش متداول برای حذف رنگ از فاضلاب صنعتی عمدتاً شامل تصفیه‌های بیولوژیکی و فیزیکوشیمیایی و ترکیبی از آن‌هاست. تصفیه‌های بیولوژیکی ارزان‌تر از دیگر روش‌ها هستند، اما سمیت رنگ معمولاً از رشد باکتریایی جلوگیری کرده و بنابراین راندمان رنگ‌زدایی را محدود می‌کند (۷). روش‌های فیزیکوشیمیایی شامل جذب سطحی (مثلاً کربن فعال)، انعقاد-لخته‌سازی (با استفاده از نمک‌های معدنی یا پلیمرها)، اکسیداسیون شیمیایی (کلر و ازن‌زنی)، تجزیه نوری، اکسیداسیون پیشرفته، اسمز معکوس و اولترافیلتراسیون است (۸). با این حال، این فناوری‌ها معمولاً به مواد شیمیایی اضافی نیاز دارند که گاهی اوقات آلودگی ثانویه و حجم زیادی لجن تولید می‌کند. فرآیند انعقاد الکتریکی نوع خاصی از فرآیند انعقاد متعارف است که در آن عوامل انعقاد در محل از طریق انحلال آند قربانی با اعمال جریان بین الکترودهای آند-کاتد تشکیل می‌شوند (۹). در مقایسه با انعقاد شیمیایی متداول، انعقاد الکتریکی دارای مزایای ویژه از جمله، میزان کمتر یون‌های انعقادی مورد نیاز، میزان بیشتر حذف آلاینده، عدم نیاز به اضافه کردن مواد شیمیایی، در نتیجه جلوگیری از آلودگی

الکتروُد، یک منبع تغذیه مستقیم برق و سیم‌های حامل، یک سیستم هوادهی مجهز به یک دیفیوزر حباب ریز جهت انجام اختلاط و نیز اکسیداسیون یون‌های Fe^{2+} و Al^{3+} و در نهایت تسریع در عمل رسوب این یون‌ها و هم‌چنین لوازم جانبی مورد نیاز بود. جنس آلومینیوم و آهن به عنوان الکترودهای آند و کاتد به صورت یک ورق نازک مستطیل شکل مورد استفاده قرار گرفت. ابعاد صفحه الکتروُد $10 \times 2 \text{ cm}$ بود. الکترودها به صورت موازی نسبت به یکدیگر درون سلول در یک فاصله ثابت 3 cm قرار گرفتند. حجم کاری سلول الکتروشیمیایی در طی مطالعه، 100 mL ثابت نگه داشته شد. در طی این تحقیق، فرایند الکتروشیمیایی در حالت بسته بهره‌برداری گردید. متغیرهای بهره‌برداری اصلی در مراحل مختلف (مشخص شده در جدول ۲) جهت تعیین اثراتشان بر روی تصفیه رنگ فاضلاب نساجی توسط فرایند الکتروشیمیایی مورد بررسی قرار گرفت. این متغیرها شامل جنس الکتروُد (آهن و آلومینیوم)، pH فاضلاب، دانسیته جریان و زمان واکنش بود. برای هر آزمون الکتروشیمیایی، 100 mL نمونه فاضلاب به داخل سلول منتقل شد. الکترودها به منبع تغذیه جریان مستقیم با چگالی جریان مورد نظر متصل شد و واکنش در حالی که سیستم هوادهی با دیفیوزر حباب ریز شروع به هوادهی کرد، آغاز شد. در پایان آزمون، سوسپانسیون بعد از مدتی ته‌نشین شدن توسط سانتریفیوژ با 5000 rpm به مدت 10 min از صافی عبور داده شد و سپس مایع رویی آن مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت.

تمامی آزمایشات در دمای آزمایشگاه انجام گرفت ($3 \pm 23^\circ \text{C}$). pH آب تاسطح مورد نیاز با استفاده از NaOH و 0.1 M HCl تنظیم گردید. در آغاز هر آزمون الکتروشیمیایی، سطوح الکترودها جهت حذف ناخالصی‌ها، نخست با اسیدکلریدریک و سپس آب شیر شسته شد، و سرانجام قبل از فرو بردن در سلول، خشک گردید. همه آزمایشات در حالت بسته سه بار تکرار شد و مقادیر میانگین داده‌ها گزارش و بحث شده‌اند.

آهن و آلومینیوم به دلیل قیمت مناسب و دسترسی آسان بیشترین کاربرد را در انعقاد الکتریکی دارا هستند (۲۳). هیدروکسید این فلزات باعث انعقاد و ایجاد لخته و در نهایت حذف رنگ و مواد آلی می‌گردد. قبل از اجرای فرایند انعقاد الکتریکی در مقیاس کامل، نیاز به تعیین شرایط بهینه کارکرد فرایند در مقیاس آزمایشگاهی است. بر این اساس، هدف اصلی این تحقیق، بررسی اثرات عوامل اصلی عملیاتی بر روی راندمان فرایند الکتروشیمیایی در تصفیه فاضلاب رنگی صنایع نساجی است. در این مطالعه، از روش سطح پاسخ (Response Surface Methodology) جهت طراحی آزمایشات و شرایط بهینه استفاده شده است. RSM یک شاخه مهمی از طراحی تجربی و یک ابزار اساسی در توسعه فرایندهای جدید، بهینه‌سازی عملکرد آن‌ها، و بهبود طراحی و فرمول‌بندی فرآورده‌های جدید است (۲۴). این روش روی اثرات و رابطه بین متغیرهای فرایند جهت به حداکثر رساندن راندمان‌های رنگ‌زدایی و حذف COD تمرکز می‌کند و هدف آن تعیین شرایط بهینه است. سیستم آزمایشی مورد استفاده از نوع ناپیوسته و متغیرها شامل جنس الکتروُد، pH فاضلاب، دانسیته جریان و زمان واکنش بود. در این تحقیق، نتایج آنالیز RSM به صورت میزان رنگ‌زدایی و حذف COD با در نظر گرفتن این متغیرها نشان داده شده است.

مواد و روش‌ها

- نمونه فاضلاب

نمونه‌های فاضلاب مورد استفاده برای آزمایشات انعقاد الکتریکی از خروجی فاضلاب یک کارخانه نساجی تهیه گردید. نمونه‌های فاضلاب در ظروف پلی اتیلن جمع‌آوری و در یخچال نگهداری شد. در شروع تحقیق، نمونه‌های جمع‌آوری شده به منظور تعیین ویژگی‌های اصلی، مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت. مقادیر متوسط این مشخصات در جدول ۱ آورده شده است.

- سیستم الکتروشیمیایی و روش

سیستم آزمایشی مطابق شکل ۱ متشکل از یک سلول شیشه‌ای استوانه‌ای به ارتفاع 30 cm و قطر داخلی 5 cm ، یک جفت

جدول ۱. مشخصات اصلی نمونه فاضلاب کارخانه نساجی

پارامتر	میزان	واحد
هدایت الکتریکی	۹۶۱	μs/cm
pH	۷/۵	-
کدورت	۲۳/۱	NTU
میزان اکسیژن مورد نیاز شیمیایی	۵۲۸	mg/L
طول موج حداکثر جذب	۵۲۰	nm

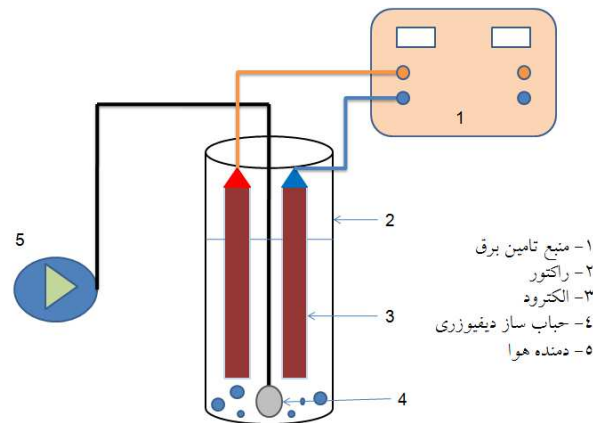
بنابراین، این میزان طول موج برای اندازه‌گیری میزان حذف رنگ انتخاب گردید. راندمان حذف رنگ با استفاده از معادله (۱) تعیین گردید:

$$\% \text{ کاهش جذب} = \frac{(A_0 - A)}{A_0} \times 100 \quad (1)$$

که در آن A_0 و A میزان جذب نوری رنگ، قبل و بعد از فرایند انعقاد الکتریکی است (۱). میزان اکسیژن مورد نیاز شیمیایی نیز توسط دستگاه راکتوری (مدل WTW-CR۲۲۰۰) طبق روش استاندارد متد (Closed reflex, Colorimetric) از دستگاه ORION و کدورت توسط دستگاه HACK تعیین شد، و pH توسط pH متر (JENWAY-۳۵۰۵) مورد سنجش قرار گرفت. شدت جریان توسط دستگاه با قدرت DC (SANJESH, TEKA۸۰۵۱) تامین گردید.

طراحی تجربی با روش سطح پاسخ (Response Surface Method)

در این تحقیق، عملکرد رنگ‌زدایی و حذف COD فاضلاب نساجی با استفاده از فرایند الکتروشیمیایی با روش سطح پاسخ توسط نرم‌افزار Design Expert v/۰ بهینه‌سازی گردید. آزمایشات مطابق با D-optimal طراحی شد و به صورت بسته انجام گردید. معیار D-optimal می‌تواند جهت انتخاب نقطه‌ها برای طراحی ترکیبی در یک ناحیه محدود شده به کار



شکل ۱. تصویر شماتیک سیستم مورد استفاده در فرایند انعقاد الکتریکی

- تجزیه و تحلیل

نمونه‌های فاضلاب جهت تعیین میزان جذب در طول موج حداکثر، pH، هدایت الکتریکی، کدورت و میزان اکسیژن مورد نیاز شیمیایی در قبل و بعد از فرایند انعقاد الکتریکی مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفتند. عملکرد فرایند انعقاد الکتریکی در تصفیه فاضلاب رنگی صنعت نساجی از طریق کاهش درصد میزان جذب و اکسیژن مورد نیاز شیمیایی مورد مطالعه قرار گرفت. یک دستگاه تیفسنج فرابنفش- مرئی (UNICO) جهت تعیین میزان حذف رنگ از طریق کاهش درصد جذب در حداکثر طول موج مورد استفاده قرار گرفت. مشخص گردید که فاضلاب در طول موج ۵۲۰ nm حداکثر جذب را دارد.

در فرایند بهینه‌سازی، پاسخ‌ها می‌توانند به طور ساده به شکل فاکتورهای انتخابی مدل‌های خطی و درجه دوم در بیابند. یک مدل درجه دوم، که شامل مدل خطی نیز هست در رابطه (۲) اشاره شده است:

$$\eta = \beta_0 + \sum_{j=1}^k \beta_j x_j + \sum_{j=1}^k \beta_{jj} x_j^2 + \sum_{i < j=2}^k \sum_{i=1}^k \beta_{ij} \beta_i \beta_j + \epsilon_i \quad (2)$$

رود. این معیار، نقطه‌های طراحی را از فهرستی از نقاط کاندید انتخاب می‌کند، به طوری که واریانس‌های ضرایب رگرسیون مدل به حداقل برسد (۲۴). در تحقیق حاضر، متغیرهای مستقل شامل شدت جریان، زمان واکنش، pH و جنس الکتروود در دو سطح بالا و پایین در طراحی D-optimal کدگذاری شد، در حالی که رنگ‌زدایی و حذف COD پاسخ بود. متغیرهای

جدول ۲. تجزیه و تحلیل آماری مربوط به متغیرهای مستقل فرایند انعقاد الکتریکی

متغیر	نام	واحدها	نوع	حد پایین	حد بالا	میانگین	انحراف معیار
X ₁	شدت جریان	A	کمی	۰/۵	۱	۰/۵۳	۰/۳۹
X ₂	زمان	min	کمی	۱۰	۶۰	۳۲/۳	۲۰/۲
X ₃	pH	-	کمی	۴	۱۰	۶/۸۳	۲/۲
X ₄	جنس الکتروود	۲	کیفی	آهن	آلومینیوم	سطوح	۲

جدول ۳. تجزیه و تحلیل آماری متغیرهای وابسته

مدل	انحراف معیار استاندارد	میانگین	حداکثر	حداقل	واحدها	نام	پاسخ
مربعی	۲۴/۱۵	۴۸/۹۲	۷۵/۹۵	۰	%	رنگ‌زدایی	Y ₁
مربعی	۱۶/۶۱	۵۰/۲۸	۷۴/۷۵	۲۳	%	حذف COD	Y ₂

که در آن η پاسخ پیش‌بینی شده، X_1 و X_j متغیرها، β ضریب ثابت، β_j ، β_{jj} و β_{ij} به ترتیب ضرایب متقابل خطی، مربعی و درجه دوم، و ϵ_i خطا است (۲۵). در این تحقیق، داده‌های مربوط به رنگ‌زدایی و حذف COD در معادله (۳) نشان داده شده است که شامل ANOVA جهت به دست آوردن تعامل بین متغیرهای فرایند و پاسخ‌ها است.

$$R^2 = 1 - \frac{SS_{\text{residual}}}{SS_{\text{model}} + SS_{\text{residual}}} \quad (3)$$

مستقل عبارت بودند از شدت جریان: A ۱ - ۰/۵، زمان واکنش: min ۱۰ - ۶۰، pH در محدوده ۴ - ۱۰ و جنس الکتروودها (آهن و آلومینیوم) که در جدول ۲ نشان داده شده است. آزمایشات طراحی شده به وسیله D-optimal در ۲۴ مرحله با دو تکرار جهت کاهش خطای خالص انجام گردید. عملکرد فرایند با تجزیه و تحلیل پاسخ درصد رنگ‌زدایی و حذف COD مورد بررسی قرار گرفت.

یافته‌ها

مناسب برای دستیابی به درصد بالایی از رنگ‌زدایی و حذف COD فاضلاب نساجی بود. آزمایشاتی به صورت بسته در D-optimal جهت مشاهده اثرات متغیرهای مستقل بر روی پاسخ و نتایج، طراحی و انجام شد. نتایج آزمایشات ارزیابی گردید و عملکرد تقریبی درصد حذف رنگ و اکسیژن مورد نیاز شیمیایی به ترتیب طبق معادلات (۴) و (۵) به دست آمد:

در اولین مرحله از تحقیق، اثر متغیرهای بهره‌برداری شدت جریان، زمان واکنش، pH و جنس الکتروود بر عملکرد رنگ‌زدایی و اکسیژن مورد نیاز شیمیایی با استفاده از روش سطح پاسخ مطابق با طراحی D-optimal مورد بررسی قرارگرفت. در جدول ۴ متغیرهای وابسته فرآیند نشان داده شده است: در دومین مرحله، اهداف اصلی شامل انتخاب شدت جریان، زمان واکنش، pH بهینه و جنس الکتروود

$$y_1 = 16.19 x_1 + 1.27 x_2 + 3.47 x_3 + 4.96 x_4 + 7.87 x_1 x_{12} + 9.95 x_1 x_3 - 5.44 x_1 x_4 - 2.38 x_2 x_3 \quad (4)$$

$$-5.54 x_2 x_4 + 9.76 x_3 x_4 + 9.05 x_1^2 - 24.65 x_2^2 - 5.09 x_3^2 + 58.8$$

$$y_2 = 4.41 x_1 + 7.31 x_2 - 6.15 \quad (5)$$

$$x_3 - 2.68 x_4 - 1.79 x_1 x_2 + 5.6 x_1 x_3 + 0.6 x_1 x_4 - 4.31 x_2 x_3 - 7.4 x_2 - 0.15 x_3 x_4 + 51.43$$

جدول ۴. نتایج ANOVA مربوط به مدل‌های مربعی

منبع	مجموع مربعات	مربع میانگین	F- Value	P > F
رنگ‌زدایی ^۱				
مدل	۱۱۴۱۲/۳	۸۷۷/۹	۳/۳۹	۰/۰۲۹۹
باقیمانده	۲۵۸۶/۹	۲۵۸/۷		
عدم تناسب	۲۴۷۹/۹	۴۹۶	۲۳/۱۷	۰/۰۰۱۸
درصد حذف COD ^۲				
مدل	۵۶۰۷/۸	۴۳۱/۴	۴/۲۶	۰/۰۱۳۷
باقیمانده	۱۰۱۲/۷	۱۰۱/۳		
عدم تناسب	۸۷۷/۳	۱۷۵/۴	۶/۴۸	۰/۰۳۰۶

^۱ R² = ۰/۸۲; R_{adj} = ۰/۵۸; adequate precision = ۷/۲

^۲ R² = ۰/۸۵; R_{adj} = ۰/۶۵; adequate precision = ۶/۷

محلول به شکل سوسپانسیونی ژلاتینی درمی‌آید که می‌تواند مواد زائد را از فاضلاب به وسیله تشکیل کمپلکس سطحی یا جذب الکترواستاتیک و در نهایت انعقاد جداسازی نماید. $Fe(OH)_3$ نسبت به $Fe(OH)_2$ دارای مشخصات انعقادی مطلوب‌تریست (۸).

در مورد الکتروآلومینیوم نیز در محدوده pH ۴ تا ۹ به ویژه در $pH < 6$ راندمان قابل قبولی در رنگ‌زدایی و حذف COD مشاهده شد. نتایج مشابهی توسط تحقیقات Kim و همکاران (۲۷) و هم‌چنین Alaton و همکاران (۲۸) مشاهده گردید. در pH محدوده ۴-۹، انعقاد، جذب سطحی، خنثی‌سازی بار و تراکم در بالاترین میزان خود برای کمپلکس‌های هیدروکسیدآلومینیوم است. $Al(OH)_3$ گونه جامد آلومینیومی غالب در pH محدوده ۴-۹ است و به شکل رسوب از محلول واکنش در طی فرایند جدا می‌گردد، این در حالیست که گونه‌های غالب هیدروکسیدآلومینیومی در pH‌های بالاتر از ۹ چندان در حذف رنگ موثر نیستند (۲۷). علت برتری الکتروآهن را می‌توان اثر جمعی انعقاد الکتریکی و الکترواکسیداسیون در حذف مواد آلی و رنگ برشمرد (۱۱، ۱۴). با توجه به نمودارها مشخص می‌گردد که راندمان حذف COD بیشتر از تغییرات pH متاثر می‌شود که در تحقیقات Kobya و همکاران (۱۴) نیز این نتیجه حاصل شد.

۲. اثر شدت جریان

در شکل‌های (۲) و (۳) با توجه به نمودارهای سه بعدی که نشان‌دهنده تاثیر شدت جریان در رنگ‌زدایی و حذف COD به وسیله الکتروآهن و آلومینیوم است، دیده می‌شود که به طور کلی با افزایش شدت جریان عملکرد رنگ‌زدایی و حذف COD افزایش می‌یابد. در مطالعات پیشین نشان داده شده است که شدت جریان به شدت عملکرد انعقاد الکتریکی را تحت تاثیر قرار می‌دهد و موثر بر عملکرد و اقتصاد فرایند است در همه فرایندهای الکتروشیمیایی، شدت جریان، میزان تولید منعقدکننده و بنابراین سرعت تولید و اندازه حباب‌ها را تعیین می‌کند و بنابراین بر روی رشد فلاک‌ها موثر است (۲۹). مقادیر بیشتر آهن و آلومینیوم حل شده در آند باعث کارایی بالاتر انعقاد و حذف قابل ملاحظه رنگ و آلاینده‌های آلی می‌گردد. هم‌چنین، تولید بیشتر هیدروژن ناشی از شدت جریان‌های

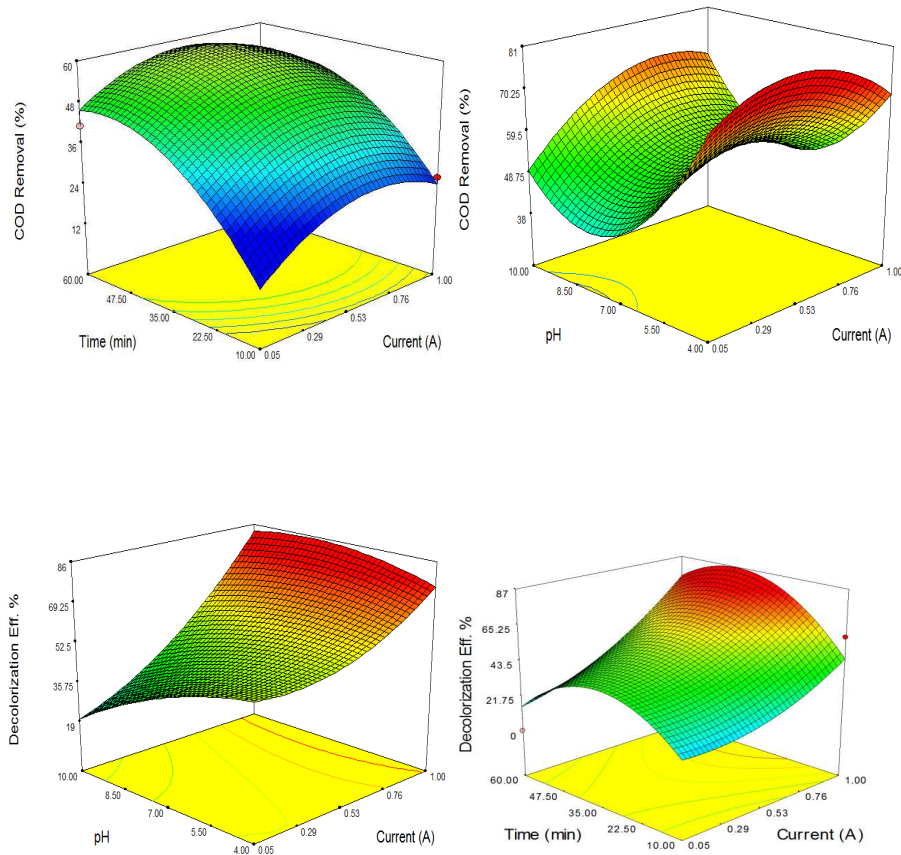
در معادله (۴) و (۵)، Y_1 و Y_2 به ترتیب پاسخ درصد رنگ‌زدایی و حذف COD، X_1 ، X_2 ، X_3 و X_4 به ترتیب مربوط به متغیرهای مستقل شدت جریان (A)، زمان (min)، pH و جنس الکتروآهن (آهن و آلومینیوم) است. نتایج ANOVA این مدل‌های مربعی در جدول ۵ نشان می‌دهد که این مدل‌ها می‌توانند جهت هدایت فضای طراحی به کار روند. در جدول (۴) (ANOVA)، F-value مدل مربعی $3/39$ و $4/26$ به ترتیب تاکید می‌کند که مدل برای رنگ‌زدایی و حذف COD قابل توجه است. دقت کافی (Adequate Precision) نسبت سیگنال به نویز را اندازه‌گیری می‌کند و به طور کلی نسبت بیشتر از ۴ مطلوب است. بنابراین، در مدل مربعی (Quadratic) مربوط به حذف رنگ و COD، به ترتیب نسبت‌های $7/163$ و $6/637$ نشان می‌دهد که سیگنال کافی برای مدل جهت هدایت فضای طراحی وجود دارد. مقادیر $Prob > F$ بیشتر از $0/05$ نشان می‌دهد که مدل معنی‌دار است، بنابراین هر دو مدل، معنی‌دار است. معادلات (۱۰) و (۱۱) جهت چک کردن اثرات متغیرهای آزمایش بر روی پاسخ‌های رنگ‌زدایی و حذف COD به کار می‌رود. چک کردن دقت مدل یک بخش مهم از تجزیه و تحلیل داده است، به طوری که اگر به اندازه کافی مناسب نباشد نتایج ضعیف و گمراه‌کننده‌ای را به دست خواهد داد.

بحث

- اثر متغیرهای کمی بر فرایند

۱. اثر pH

pH با توجه به تحقیقات گذشته (۲، ۲۶) اثر قابل توجهی بر روی سینتیک‌های رنگ‌زدایی و حذف COD در فرایند انعقاد الکتریکی داراست. در این تحقیق با توجه به شکل‌های (۲) و (۳)، مشاهده می‌گردد که به طور کلی pH‌های پایین‌تر ($pH < 6$) در رنگ‌زدایی و حذف COD عملکرد بالاتری را با استفاده از الکتروآهن و آلومینیوم دارا است و نتایجی هم که با بهینه‌سازی توسط نرم‌افزار RSM در D-Optimal مشخص گردید موید همین مطلب است. یون‌های Fe^{2+} و Fe^{3+} به طور معمول در اثر انحلال الکتروآهن در آند تولید می‌شوند. در مقابل، یون‌های OH^- در محل کاتد شکل می‌گیرد. در آب حاوی اکسیژن با توجه به هوادهی در این تحقیق و در pH‌های پایین، Fe^{2+} به آسانی به Fe^{3+} تبدیل می‌شود که $Fe(OH)_{3(s)}$ تشکیل شده در



شکل (۲). نمودارهای سه بعدی مقایسه اثرات متغیرهای کمی با استفاده از الکترود آهن

افزایش دانسیته جریان باعث افزایش کارایی حذف رنگ و COD می‌گردد.

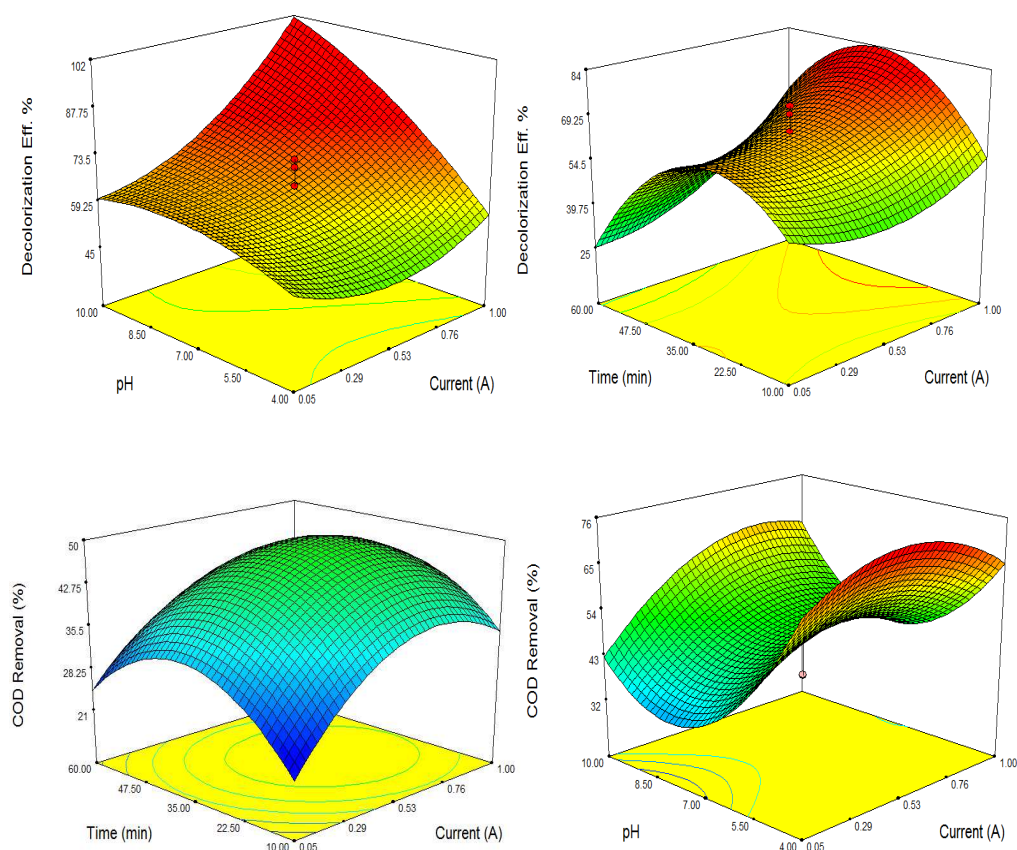
۳. اثر زمان واکنش

زمان واکنش نیز کارایی تصفیه فرآیند انعقاد الکتریکی را تحت تاثیر قرار می‌دهد. زمان الکترولیز، میزان تولید یون‌های Fe^{+2} یا Fe^{+3} را از الکترودهای آهن و Al^{+3} را از الکترود آلومینیوم تعیین می‌کند. راندمان حذف آلاینده‌ها به‌طور مستقیم به غلظت هیدروکسید و یون‌های فلزی تولید شده در سطح الکترودها بستگی دارد (۳۱، ۳۲). با توجه به شکل ۳ در مورد الکترود Fe مشاهده می‌گردد که با افزایش زمان هیدرولیز، راندمان حذف رنگ و COD نیز افزایش می‌یابد. که در تحقیقات Golder و همکاران (۳۳) نیز نتایج مشابهی به‌دست آمد. نتایج تحقیق حاضر مشخص نمود که رنگ‌زدایی و حذف COD با

بالتر، باعث شناور شدن مطلوب مواد لخته‌شده می‌گردد. قانون فارادی جهت تعیین رابطه شدت جریان با میزان یون‌های آهن و آلومینیوم تولید شده از طریق سلول الکتروشیمیایی ارائه شده که میزان تئوریک برای کل آن طبق رابطه ۶ عبارتست از:

$$m = \frac{I \cdot t \cdot M}{z \cdot F} \quad (6)$$

که F و M ، z به ترتیب تعداد الکترون‌های منتقل شده در واکنش در سطح الکترود، وزن مولکولی (g/mol) و ثابت فارادی ($96500 C/mol$) است (۱). در تحقیقاتی که توسط Daneshvar و همکاران (۲۲، ۳۰) بر روی رنگ‌زدایی محلول‌های رنگی basic, orange II و Daneshvar Acid Yellow ۲۳ به وسیله فرآیند انعقاد الکتریکی انجام گردید نشان داد که



شکل ۳. نمودارهای سه بعدی اثر متغیرهای کمی فرایند با استفاده از الکترود آلومینیوم

استفاده از الکترود آلومینیوم با گذشت زمان و افزایش شدت جریان بهبود می یابد و بعد از حدود ۴۸ min راندمان شروع به کاهش می کند که ممکنست به دلیل افزایش سرعت میزان تولید $Al(OH)_3$ در سیستم و احتمالاً ایجاد اختلال در لخته شدن و شناور شدن و به دنبال آن کاهش راندمان باشد (۲).

- بهینه سازی فرایند با استفاده از D-optimal نتایج تجربی با استفاده از تابع تقریبی حذف رنگ و COD در معادلات (۵) - (۴) بهینه سازی گردید. در این تحقیق، در فرایند بهینه سازی، متغیرهای مستقل شدت جریان، زمان واکنش و pH اولیه فاضلاب در محدوده مورد مطالعه و راندمان های حذف رنگ و COD، حداکثر در نظر گرفته شد. هدف، تعیین شدت جریان، زمان واکنش و pH بهینه جهت دستیابی به راندمان های بهتر رنگ و مواد آلی بر حسب COD بود. چندین حالت به منظور پیدا کردن شرایط مطلوب و نتایج بهینه مورد بررسی قرار گرفت. در جدول (۶)، شرایط بهینه با ۶۰ راه حل توسط Design Expert ۷/۰ ارائه شد. بهترین راه حل در شرایط بهینه با شدت جریان ۰/۹۷ A، زمان ۴۷/۷ min، pH ۴/۰۴ و با استفاده از الکتروود آهن بدست آمد. در این شرایط بهینه راندمان رنگ زدایی ۷۶/۳٪ و حذف COD ۷۵/۶٪ پیش بینی گردید. سپس تعداد خاصی آزمایش تحت این شرایط بهینه جهت آزمون عملکرد نهایی حذف رنگ و COD انجام شد و به ترتیب راندمان های ۷۴/۲٪ و ۷۳٪ بدست آمد که دلالت بر پیش بینی معقول مدل است. هم چنین این نتایج نشان داد که رابطه توسعه یافته ای بین متغیرهای مستقل در معادلات (۴) و (۵) وجود دارد.

نتیجه گیری

تصفیه فاضلاب صنعتی کارخانه نساجی با استفاده از الکترودهای آهن و آلومینیوم در یک فرایند انعقاد الکتریکی در راکتور بسته الکتروشیمیایی مورد مطالعه قرار گرفت. در این آزمایشات، بالاترین حذف در شرایط مورد مطالعه برای COD و رنگ به ترتیب ۷۵/۹۵٪ و ۷۴/۷۵٪ به دست آمد. تابع تقریبی برای میزان حذف رنگ و COD با استفاده از الکترودهای آهن و آلومینیوم با درجات رضایت بخشی از تناسب بدست آمد. با استفاده از این توابع، تصفیه فاضلاب صنعتی نساجی با استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی با در نظر گرفتن همه پارامترها در محدوده مورد مطالعه و حداکثر راندمان جهت حذف رنگ و COD بهینه گردید. شرایط بهینه در شدت جریان ۰/۹۷ A و pH= ۴ و زمان حدود ۴۸ min با استفاده از الکترودهای آهن مشخص گردید. تحت این شرایط، راندمان حذف رنگ و COD به ترتیب ۷۶/۳٪ و ۷۵/۶٪ پیش بینی گردید که در آزمایش تجربی ۷۴/۲٪ و ۷۳٪ بدست آمد. به عبارتی فاکتور مطلوبیت برای الکترودهای Fe، رنگزدایی و حذف COD به ترتیب برابر ۱، ۰/۷۶۳ و ۰/۷۵۶ بود که با یافته‌های تجربی منطبق بود. طبق این نتایج، فرایند انعقاد الکتریکی می‌تواند یکی از بهترین گزینه‌های روش‌های فیزیکیوشیمیایی برای تصفیه فاضلاب نساجی صنعتی با تحقیقات بیشتر به‌شمار رود.

تشکر و قدردانی

تحقیق حاضر با حمایت مالی دانشکده علوم پزشکی دانشگاه تربیت مدرس انجام گرفته است.

منابع

- 1- Pajootan E, Arami M, Mahmoodi NM. Binary system dye removal by electrocoagulation from synthetic and real colored wastewaters. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*. 2012;43(2):282-90.
- 2- Essadki A, Bennajah M, Gourich B, Vial C, Azzi M, Delmas H. lectrocoagulation/electroflotation in an external-loop airlift reactor—application to the decolorization of textile dye wastewater: A case study. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*. 2008;47(8):1211-23.
- 3-Du L-N, Yang Y-Y, Li G, Wang S, Jia X-M, Zhao Y-H. Optimization of heavy metal-containing dye Acid Black 172 decolorization by *Pseudomonas sp. DY1* using statistical designs. *International Biodeterioration & Biodegradation*. 2010;64(7):566-73.
- 4-Asilian H, RMoussavi G, Mahmoudi M. Adsorption of reactive red 198 azo dye from aqueous solution onto the waste coagulation sludge of the water treatment plants. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2010;3(1):93-102 (in Persian).
- 5-Dalvand A, Jonidi jafari A, Gholami M, Ameri A, Mahmoodi NM. Treatment of synthetic wastewater containing reactive red 198 by electrocoagulation process. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2011;4(1):11-22 (in Persian).
- 6-Daneshvar N, Khataee A, Amani Ghadim A, Rasoulifard M. Decolorization of CI Acid Yellow 23 solution by electrocoagulation process: Investigation of operational parameters and evaluation of specific electrical energy consumption (SEEC). *Journal of Hazardous Materials*. 2007;148(3):566-72.
- 7-Eslami A, Massoudinejad MR, Ghanbari F, Moradi M. Study on treatability of real textile wastewater by electrochemically generated fenton reagent using graphite felt cathode. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2012;5(3):273-82 (in Persian).
- 8-Zaroual Z, Azzi M, Saib N, Chaïnet E. Contribution to the study of electrocoagulation mechanism in basic textile effluent. *Journal of Hazardous Materials*. 2006;131(1):73-78.
- 9-Bazrafshan E, Kord Mostafapour F, Farzadkia M, Ownagh K, Jaafari Mansurian H. Application of combined chemical coagulation-electro coagulation process for treatment of the zahedan cattle slaughterhouse wastewater. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2012;5(3):283-94 (in Persian).
- 10-Bayramoglu M, Eyvaz M, Kobya M. Treatment of the textile wastewater by electrocoagulation: Economical evaluation. *Chemical Engineering Journal*. 2007;128(2):155-61.
- 11-Kobya M, Can OT, Bayramoglu M. Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation using iron and aluminum electrodes. *Journal of Hazardous Materials*. 2003;100(1):163-78.
- 12-Bayramoglu M, Kobya M, Can OT, Sozibir M. Operating cost analysis of electrocoagulation of textile dye wastewater. *Separation and Purification Technology*. 2004;37(2):117-25.
- 13-Can O, Kobya M, Demirbas E, Bayramoglu M. Treatment of the textile wastewater by combined electrocoagulation. *Chemosphere*. 2006;62(2):181-87.
- 14-Kobya M, Demirbas E, Can O, Bayramoglu M. Treatment of levafix orange textile dye solution by electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials*. 2006;132(2):183-88.
- 15-Zongo I, Maiga AH, Wéthé J, Valentin G, Leclerc J-P, Paternotte G, et al. Electrocoagulation for the treatment of textile wastewaters with Al or Fe electrodes: Compared variations of COD levels, turbidity and absorbance. *Journal of Hazardous Materials*. 2009;169(1):70-76.
- 16- Merzouk B, Yakoubi M, Zongo I, Leclerc J-P, Paternotte G, Pontvianne S, et al. Effect of modification of textile wastewater composition on electrocoagulation efficiency. *Desalination*. 2011;275(1):181-86.
- 17-Kabdashlı I, Vardar B, Arslan-Alaton I, Tünay O. Effect of dye auxiliaries on color and COD removal from simulated reactive dyebath effluent by electrocoagulation. *Chemical Engineering Journal*. 2009;148(1):89-96.
- 18-Moussavi G, Majidi F, Farzadkia M. The influence of operational parameters on elimination of cyanide from wastewater using the electrocoagulation process. *Desalination*. 2011;280(1):127-33.
- 19-Biglari H, Bazrafshan E. Performance evaluation of electrochemical process using iron and aluminum electrodes in phenol removal from synthetic aqueous environment. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2013;5(4):445-56 (in Persian).
- 20-Khosravi R, Moussavi G, Farzadkia M. Investigation

of the effect of electro-coagulation process using iron and stainless steel electrodes on removal of petroleum compounds from groundwater. *Journal of Health and Hygiene*. 2011;2(3):24-32 (in Persian).

21-Malakootian M, Izanloo H, Messerghany M, Emamjomeh MM. Electro coagulation efficiency in removal of cod from the Qom landfill leachate. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2012;5(2):201-10 (in Persian).

22-Daneshvar N, Oladegaragoze A, Djafarzadeh N. Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: an investigation of the effect of operational parameters. *Journal of Hazardous Materials*. 2006;129(1):116-22.

23- Asadi Habib M, Alavi Moghaddam SMR, Arami M, Hashemi SH. Optimization of the electrocoagulation process for removal of Cr (VI) using taguchi method. *Journal of Water & Wastewater*. 2011;22(4):2-8 (in Persian).

24-Körbahti BK, Rauf M. Response surface methodology (RSM) analysis of photoinduced decoloration of toludine blue. *Chemical Engineering Journal*. 2008;136(1):25-30.

25-Kobyra M, Demirbas E, Bayramoglu M, Sensoy M. Optimization of electrocoagulation process for the treatment of metal cutting wastewaters with response surface methodology. *Water, Air, & Soil Pollution*. 2011;215(1-4):399-410.

26- Merzouk B, Madani K, Sekki A. Using electrocoagulation – electroflotation technology to treat synthetic solution and textile wastewater, two case studies. *Desalination*. 2010;250(2):573-77.

27-Kim T-H, Park C, Shin E-B, Kim S. Decolorization of disperse and reactive dyes by continuous electrocoagulation process. *Desalination*. 2002;150(2):165-75.

28-Arslan-Alaton I, Kabdaşlı I, Hanbaba D, Kuybu E. Electrocoagulation of a real reactive dye bath effluent using aluminum and stainless steel electrodes. *Journal of Hazardous Materials*. 2008;150(1):166-73.

29-Linares-Hernández I, Barrera-Díaz C, Roa-Morales G, Bilyeu B, Ureña-Núñez F. Influence of the anodic material on electrocoagulation performance. *Chemical Engineering Journal*. 2009;148(1):97-105.

30-Daneshvar N, Ashassi-Sorkhabi H, Tizpar A.

Decolorization of orange II by electrocoagulation method. *Separation and Purification Technology*. 2003;31(2):153-62.

31-Şengil İA, Özacar M. The decolorization of CI Reactive Black 5 in aqueous solution by electrocoagulation using sacrificial iron electrodes. *Journal of Hazardous Materials*. 2009;161(2):1369-76.

32-Aoudj S, Khelifa A, Drouiche N, Hecini M, Hamitouche H. Electrocoagulation process applied to wastewater containing dyes from textile industry. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*. 2010;49(11):1176-82.

33-Golder A, Hridaya N, Samanta A, Ray S. Electrocoagulation of methylene blue and eosin yellowish using mild steel electrodes. *Journal of Hazardous Materials*. 2005;127(1):134-40.

The optimization of electrocoagulation process for treatment of the textile wastewater by Response surface Methodology (RSM)

Samaneh Ghodrati, Gholamreza Moussavi*

Department of Environmental Health, faculty of Medical Sciences, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran

Received; 17 June 2013

Accepted; 14 September 2013

Abstract

Background and objectives: Electrocoagulation (EC) as an electrochemical method was developed to overcome the drawbacks of conventional decolorization technologies and is an attractive alternative for the treatment of textile dyes. This study was aimed at the optimization of the EC process for decolorization and COD removal of a real textile wastewater using response surface methodology (RSM). RSM is an important branch of experimental design and a critical technology in developing new processes, optimizing their performance, and improving design and formulation of a new products.

Materials and Methods: In this study, a bench scale EC reactor was designed, constructed, and studied for treatment of a textile wastewater. The main operational variables were current intensity, residence time, initial pH, and electrode materials as independent variables; color and COD removal were considered as dependent variables. The experimental runs were designed using selected variables using Design Expert 7.0 software and the process was optimized for decolorization and COD removal using the response surface method.

Results: The optimal operational conditions in the EC process for attaining the maximum decolorization and COD removal were current density of 0.97 A, initial pH of 4.04, residence time of 48 min, and Fe electrode. The desirability factor for Fe electrode was 1, while decolorization and COD removal were predicted 76.3 and 75.6% respectively, which was confirmed by the experimental results.

Conclusion: The experimental results indicated that the EC process is an efficient and promising process for the decolorization and COD removal of textile effluents. Under the optimized conditions, the experimental values had a good correlation with the predicted ones, indicating suitability of the model and the success of the RSM in optimizing the conditions of EC process in treating the textile wastewater with maximum removals of color and COD under selected conditions of independent variables.

Keywords: Electrocoagulation; textile wastewater; optimization; response surface methodology

*Corresponding Author: moussavi@modares.ac.ir

Tel: +9821 82883827