



## بررسی حذف متیلن بلو از محلول‌های آبی با روش انعقاد الکتریکی در راکتور با جریان پیوسته: مدل سازی و بهینه‌سازی متغیرهای عملیاتی

علی جعفری، منصور قادرپوری\*

گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت و تغذیه، دانشگاه علوم پزشکی لرستان، خرم آباد، ایران

| چکیده                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       | مقاله پژوهشی اصیل                                                                                                                                                                                                                                                   |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <p><b>مقدمه</b></p> <p>کاربرد وسیع و روز افزون مواد رنگی بویژه رنگ‌های سنتتیک و لزوم حذف این مواد از محلول‌های آبی یکی از چالش‌ها و نگرانی‌های زیست محیطی و بهداشتی جوامع صنعتی امروزی محسوب می‌شود. هدف از این مطالعه، بررسی استفاده از فرآیند انعقاد الکتریکی برای حذف رنگ متیلن بلو به عنوان یکی از رنگ‌های پرکاربرد و مشکل‌ساز از محلول‌های آبی بود.</p> <p><b>مواد و روش‌ها</b></p> <p>این مطالعه در مقیاس آزمایشگاهی و در یک راکتور انعقاد الکتریکی با جریان پیوسته انجام گرفت. به منظور آنالیز بهتر از روش سطح-پاسخ با استفاده از مدل باکس-بنکن استفاده گردید. همچنین، جهت درک بهتر فرایند، تاثیر متغیرهای عملیاتی و اثر متقابل آنها بر عملکرد فرایند، نیز بررسی شد. برای این منظور، سه پارامتر مستقل (هر یک در سه سطح) شامل دانسیته جریان (۵، ۷/۵ و ۱۰ میلی‌آمپر بر سانتی‌متر مربع)، غلظت رنگ (۵۰، ۱۰۰ و ۱۵۰ میلی‌گرم در لیتر) و زمان عملیاتی (۲۰، ۶۰ و ۱۰۰ دقیقه) استفاده شد.</p> <p><b>یافته‌ها</b></p> <p>نتایج آنالیز واریانس نشان داد حذف رنگ تحت تاثیر تمام متغیرهای مستقل و اثرات متقابل آنها قرار دارد. در شرایط بهینه و در محدوده مقدار متغیرهای انتخاب شده، دانسیته جریان (۷/۳۹ میلی‌آمپر بر سانتی‌متر مربع)، رنگ (۵۳/۲۱ میلی‌گرم در لیتر) و زمان واکنش (۸۶/۴۷ دقیقه)، ۹۹/۱۶ درصد رنگ متیلن بلو حذف گردید.</p> <p><b>نتیجه‌گیری</b></p> <p>یافته‌ها نشان داد که در شرایط عملیاتی بهینه، فرایند انعقاد الکتریکی می‌تواند به طور موثری رنگ متیلن بلو را از محلول‌های آبی حذف نماید. این روش به دلیل سادگی کاربرد و هزینه قابل تحمل آن می‌تواند در مقیاس واقعی مطالعه و مد نظر قرار گیرد.</p> <p><b>کلیدواژه‌ها</b></p> <p>رنگ، انعقاد الکتریکی، متیلن بلو، روش سطح-پاسخ</p> | <p>تاریخ دریافت: ۹۷/۱۰/۲۲</p> <p>تاریخ پذیرش: ۹۷/۱۲/۲۹</p> <p>*نویسنده مسئول: منصور قادرپوری، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت و تغذیه، دانشگاه علوم پزشکی لرستان، خرم آباد، ایران</p> <p>تلفن: ۰۶۶۳۳۴۰۸۱۷۶</p> <p>پست الکترونیک: mghaderpoori@gmail.com</p> |



## مقدمه

کاربرد وسیع و روز افزون مواد رنگی بویژه رنگ‌های سنتتیک (مصنوعی) یکی از چالش‌ها و نگرانی‌های زیست محیطی و بهداشتی جوامع صنعتی امروزی محسوب می‌شود. رنگ‌های مصنوعی بطور وسیع در صنایع مختلف از قبیل صنایع بهداشتی و آرایشی، صنعت کاغذسازی، صنعت نساجی، صنایع غذایی پلاستیک و ... بکار می‌روند (۱، ۲). تخلیه پساب‌های حاوی مواد رنگی باعث اثرات سوء بهداشتی و زیست محیطی می‌گردد (۳). از جنبه زیست محیطی، مشکلات مرتبط با این ترکیبات صرفاً از جنبه زیبایی شناختی آنها نمی‌باشد، بلکه این مواد رنگی مانع نفوذ نور خورشید به اعماق آب می‌گردد و در نتیجه عمل فتوسنتز گیاهان آبی را با مشکل مواجهه می‌نمایند. از طرف دیگر، وجود رنگ در آب باعث افت میزان اکسیژن محلول آب می‌گردد (۴).

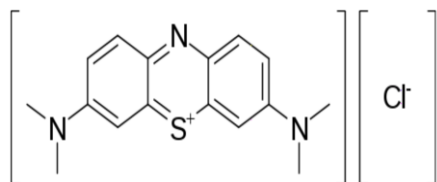
رنگ‌های مصنوعی معمولاً حاوی ترکیبات آروماتیک هستند که مقاومت آن‌ها را در برابر تجزیه طبیعی بالا می‌برد، بنابراین برای مدت‌ها می‌توانند در محیط باقی بمانند (۵، ۶). در بین انواع مختلف رنگ‌ها، متیلن‌بلو از رنگ‌های پرکاربرد می‌باشد که تقریباً در بیشتر صنایع مورد استفاده قرار می‌گیرد. اثرات بهداشتی مرتبط با این رنگ شامل سوزش چشم، التهاب سیستم گوارشی همراه با علائم تهوع، شوک، سیانوز، نکرور استفراغ و اسهال است. همچنین در صورت استنشاق مستقیم، ممکن است باعث متهموگلوبینمی، سیانوز و تنگی نفس شود. همچنین ممکن است باعث تحریک پوست گردد (۷، ۸). بنابراین لازم است که این رنگ‌ها قبل از ورود به محیط توسط روش‌های مناسب حذف گردند.

روش‌های متعددی از قبیل جذب، ازن‌زنی، اکسیداسیون پیشرفته، انعقاد الکتریکی، انعقاد و لخته‌سازی، روش‌های بیولوژیکی، روش‌های فتوشیمیایی و فرایندهای غشایی برای حذف انواع رنگ‌ها استفاده شده و مورد مطالعه قرار گرفته است (۹-۱۵). روش‌های مذکور هر یک دارای مزایا و معایبی نسبت به سایر فرایندها می‌باشند. در انتخاب گزینه مناسب عواملی همچون ایمنی برای سلامت انسان و محیط زیست، هزینه‌های سرمایه‌گذاری و بهره‌برداری، اثر بخشی فرایند، لجن تولیدی، مواد شیمیایی، وابستگی فرایند به شرایط محیطی و pH، تجهیزات و تخصص و سازگاری فرایند امکان بازیافت مواد و استفاده مجدد از آب موثر است.

اخیراً، فرایند انعقاد الکتریکی به عنوان یک روش امیدوار کننده ساده و موثر برای حذف اجزای مختلف از آب و فاضلاب مورد توجه قرار گرفته است. از این روش برای تصفیه آب آشامیدنی (۱۶، ۱۷)، فاضلاب (۱۸)، فلزات سنگین (۱۹) و همراه سایر فرایندها برای تصفیه آب (۲۰) استفاده شده است. مزایای مهم فرایند انعقاد الکتریکی شامل عدم نیاز به افزودن مواد شیمیایی، تولید کم لجن، نیاز به فضای کمتر در مقایسه با انعقاد شیمیایی متعارف، عدم نیاز به ذخیره‌سازی مواد شیمیایی، تجهیزات تزریق مواد شیمیایی و اختلاط سریع می‌باشند. همچنین تجهیزات ساده، بهره‌برداری آسان و زمان نگهداری کوتاه‌تر از مزایای دیگر این فرایند است (۲۱-۲۳). انعقاد الکتریکی ترکیبی از مکانیزم‌های مختلفی است که می‌توانند الکتروشیمیایی (تجزیه فلز و احیا آب، اکسیداسیون الکتریکی یا اکسیداسیون یا احیا الکتریکی مواد آلاینده و ...)، شیمیایی (ترسیب هیدروکسیدها، واکنش‌های اکسیداسیون و احیا در محلول و ...) و فیزیکی (جذب، انعقاد، شناورسازی و ...)



برای آزمایشات مورد استفاده قرار گرفت. شکل ۱ ساختار شیمیایی این رنگ را نشان می‌دهد. محلول استوک (مادر) رنگ با حل کردن مقدار مشخصی از رنگ متیلن‌بلو در آب مقطر با غلظت ۵۰۰ میلی‌گرم بر لیتر تهیه شد. برای تهیه غلظت‌های مختلف، از محلول استوک تهیه شده استفاده گردید. در تمام نمونه‌ها غلظت ۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر نمک طعام (مرک آلمان) به عنوان محلول الکترولیت استفاده شد و pH تمام نمونه در محدوده خنثی  $7 \pm 0.5$  تنظیم گردید.



شکل ۱ - ساختار شیمیایی رنگ متیلن‌بلو

### راکتور آزمایشگاهی

همچنان‌که در شکل ۲ نشان داده شده است، چهار الکترود آلومینیومی (۱۱ سانتی‌متر، ۲ سانتی‌متر و ۰/۲۳ سانتی‌متر) به صورت متناوب (آند-کاتد) با فاصله ۲ سانتی‌متر از یکدیگر در انتهای واحد انعقاد الکتریکی قرار داده شدند. سطح موثر کل صفحات الکترودها برابر ۲۰۰ سانتی‌متر مربع بود. قبل از استفاده، صفحات به صورت دستی و با استفاده از سمباده و اسیدکلریدریک رقیق (۰/۱ نرمال) تمیز شدند. در این مطالعه از یک سیستم منبع تغذیه با ۳۰-۰ ولت و ۲-۰ آمپر استفاده گردید (Dazheng PS-302D). فرآیند متشکل از دو جزء واحد رآکتور ( $10 \times 16 \times 13$ ) با حجم موثر ۲۰۰۰ میلی-لیتر است. آزمایش‌ها در حالت پیوسته انجام شد. برای پیدا کردن دامنه مناسب متغیر مستقل (زمان تماس، دانسیته جریان و غلظت اولیه رنگ) یک مطالعه اولیه انجام شد. تمام

باشند که بطور همزمان یا متوالی انجام می‌گیرد (۲۴). سه متغیر اصلی در فرایند انعقاد الکتریکی عبارتند از دانسیته جریان، زمان و غلظت اولیه رنگ. در فرآیندهای تصفیه آب و فاضلاب، بهینه‌سازی و تعیین مقادیر مناسب متغیرهای موثر بر فرآیند کمک شایانی در عملیات بهره‌برداری فرآیند و همچنین کاهش هزینه‌ها می‌نماید. بهینه‌سازی مبتنی بر روش سطح پاسخ<sup>۱</sup> جهت بهینه‌سازی انواعی از فرآیندهای تصفیه و جداسازی بکار برده شده است (۲۵-۲۷). روش RSM به عنوان یک ابزار مفید، مجموعه‌ای از روش‌های ریاضی و آماری است که جهت بهینه‌سازی و مدل‌سازی و بررسی اثر متقابل متغیرها در فرایندهایی که پاسخ یا عملکرد مورد نظر تحت تاثیر چندین متغیر قرار می‌گیرد، بکار می‌رود. روش سطح پاسخ دارای مزایای مختلفی می‌باشد که از آن جمله می‌توان به سریع و قابل اعتماد بودن، کمک به فهم اثرات مستقل و متقابل پارامترها بر روی یکدیگر، کاهش تعداد آزمایش‌های قابل قبول و در نتیجه آن صرفه جویی قابل ملاحظه در وقت و هزینه‌های مرتبط اشاره کرد (۲۸-۳۱). بنابراین، هدف اصلی این مطالعه بررسی حذف رنگ متیلن بلو از محیط آبی با استفاده از روش انعقاد الکتریکی و بهینه‌سازی و مدل‌سازی این فرایند با استفاده از روش سطح پاسخ می‌باشد.

### مواد و روش‌ها

#### تهیه و آماده سازی محلول رنگی

در این مطالعه متیلن بلو (مرک آلمان با درجه خلوص ۹۹ درصد) با فرمول شیمیایی  $C_{16}H_{18}N_3SCl$ ، وزن مولکولی ۳۱۶/۸۶ گرم بر مول و حلالیت ۵۰ گرم در لیتر در ۲۰ درجه سانتی‌گراد) بدون هیچگونه پالایش و خالص‌سازی اضافی

<sup>۱</sup>Response Surface Methodology: RSM

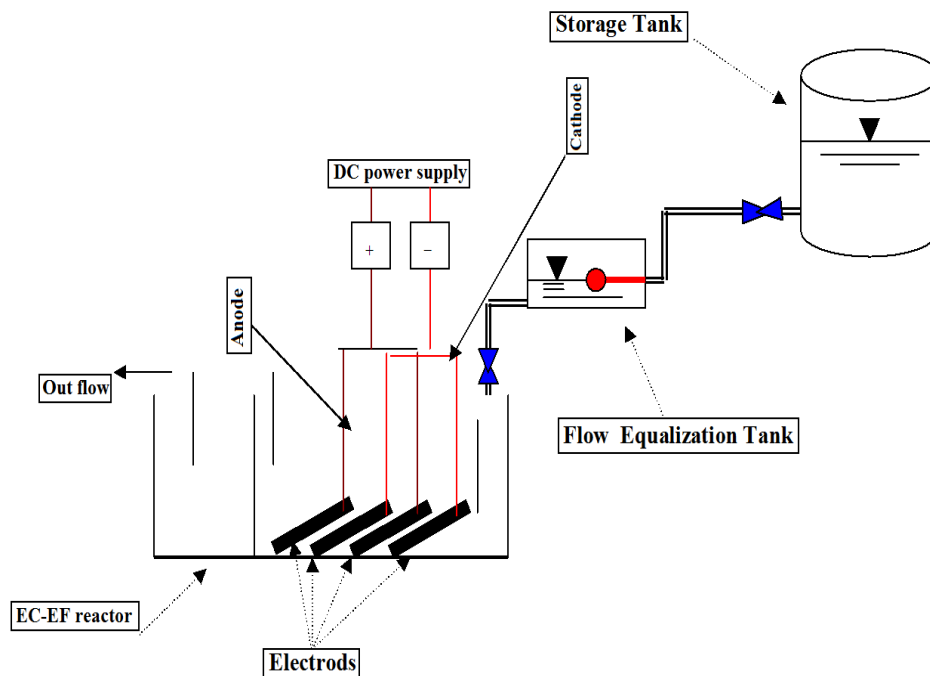


راندمان حذف رنگ از معادله ۱ به صورت زیر محاسبه شد  
(۳۳، ۳۲):

$$R(\%) = \left(1 - \frac{C_f}{C_0}\right) \times 100 \quad \text{معادله ۱}$$

که در اینجا،  $C_0$  و  $C_f$  به ترتیب غلظت رنگ قبل و بعد از آزمایش است (برحسب میلی گرم بر لیتر).

آزمایش‌ها با pH حدود ۷ و در دمای اتاق (۲۵ درجه سانتی‌گراد) انجام شد. نمونه‌ها به صورت دوره‌ای از خروجی راکتور پس از سپری شدن مدت زمان تعیین شده گرفته شدند. سپس نمونه‌ها با کاغذ صافی واتمن ۰/۴۵ میکرون صاف شدند. اندازه‌گیری‌ها با حداکثر طول موج جذب ۶۶۳ نانومتر، با استفاده از اسپکتروفتومتر (Jenway 6305) انجام شد. غلظت رنگ متیلن بلو از جدول کالیبراسیون قبلاً ساخته شده با استفاده از قانون Beer-Lambert مشخص شد.



شکل ۲- طرح شماتیک راکتور انعقاد الکتریکی مورد استفاده در مطالعه

### طراحی آزمایشات

برای طراحی آزمایشات و همچنین آنالیز داده‌ها و رسم نمودارها، از نرم‌افزار طراحی آزمایشات (دیزاین ایکسپرت، نسخه هفتم)، استفاده شد. در میان روش‌های مختلف RSM، روش طراحی باکس-بنکن برای مدل‌سازی و بهینه

سازی در این مطالعه مورد استفاده قرار گرفت. در این روش، سه متغیر مستقل یعنی دانسیته جریان، زمان تماس و غلظت رنگ در سه سطح (مقدار) مورد مطالعه قرار گرفتند. در جدول ۱ هر یک از این متغیرها (دانسیته جریان (A)، غلظت رنگ (B)، زمان تماس (C)) و سطوح انتخاب شده



آنها ارائه شده است. جهت تعیین اثر متغیرها بر متغیر وابسته یا پاسخ (درصد حذف رنگ)، متغیرهای مستقل در محدوده (۱- و ۱+) کد گذاری شده و همچنین بر اساس مطالعات قبلی مشابه و پیش‌آزمون‌های انجام گرفت. در این کار، یک محدوده برای این متغیرها تعیین گردید (جدول ۱). طبق همین روش، تعداد آزمایشات با شرایط گفته شده و سه تکرار در نقطه، کلاً ۱۵ آزمایش مطابق جدول ۲ بطور تصادفی فهرست گردید (۳۰). به منظور مدل‌سازی فرایند و تاثیر متغیرهای مستقل بر پاسخ مورد نظر، معادله درجه دو زیر استفاده گردید (۳۴).

## معادله ۲

$$Y = b_0 + b_1A + b_2B + b_3C + b_{11}A^2 + b_{22}B^2 + b_{33}C^2 + b_{12}AB + b_{13}AC + b_{23}BC$$

که در این رابطه، Y پاسخ پیش‌بینی شده،  $b_0$  ضریب ثابت،  $b_1$ ،  $b_2$  و  $b_3$  ضرایب خطی،  $b_{11}$ ،  $b_{22}$  و  $b_{33}$  ضرایب درجه دوم و  $b_{12}$ ،  $b_{13}$  و  $b_{23}$  اثرات متقابل و A، B و C متغیرهای مستقل می‌باشند (۳۵-۳۷).

## یافته‌ها

در جدول ۲ کارایی فرایند در حذف رنگ متیلن بلو با استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی نشان داده شده است.

میزان حذف رنگ متیلن بلو با این فرایند در گستره بین ۲۵-۹۸/۴ درصد گزارش گردید. کارایی فرایند به طور متوسط ۷۷ درصد گزارش گردید. در جدول ۳ نتایج آنالیز واریانس مدل برازش یافته بر داده‌های پاسخ ارائه شده است. مقدار  $P < 0.05$  است که از نظر آماری قابل قبول می‌باشد. همچنین مقدار P-value در Lack of fit باید بزرگتر از ۰/۰۵ باشد که در اینجا برابر ۰/۱۳۰۲ است در نتیجه این مقدار نیز قابل قبول می‌باشد. ضرایب همبستگی، همبستگی تعدیل‌یافته و همبستگی قابل پیش‌بینی نیز بررسی گردید. ضریب همبستگی مدل انتخابی برابر ۰/۹۹۰۵ است که نشان از دقت بالای مدل انتخابی دارد.

همچنین تفاوت ضریب همبستگی تعدیل یافته (۰/۹۸۰۹) با مقدار قابل پیش‌بینی (۰/۹۳۴۷) باید کمتر از ۰/۲ باشد که این شرط نیز برآورده شده است. همچنین شکل ۳ اثرات برهمکنشی بین تغییرات دانسیته جریان و غلظت اولیه رنگ در فرایند انعقاد الکتریکی را نشان می‌دهد. در شکل ۴ اثرات برهمکنشی بین تغییرات دانسیته جریان و زمان ماند در فرایند انعقاد الکتریکی مشاهده می‌شود. اثرات برهمکنشی بین تغییرات غلظت رنگ و زمان ماند در فرایند انعقاد الکتریکی در شکل ۵ نشان داده شده است.

جدول ۱- متغیرهای مستقل و سطوح آنها در طرح باکس-بنکن برای حذف با استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی

| کد | متغیر مستقل        | واحد               | سطح   |           |      |
|----|--------------------|--------------------|-------|-----------|------|
|    |                    |                    | پایین | نقطه مرکز | بالا |
| A  | دانسیته جریان (CD) | mA/cm <sup>2</sup> | ۵     | ۷/۵       | ۱۰   |
| B  | غلظت رنگ (C)       | mg/l               | ۵۰    | ۱۰۰       | ۱۵۰  |
| C  | زمان (T)           | min                | ۲۰    | ۶۰        | ۱۰۰  |



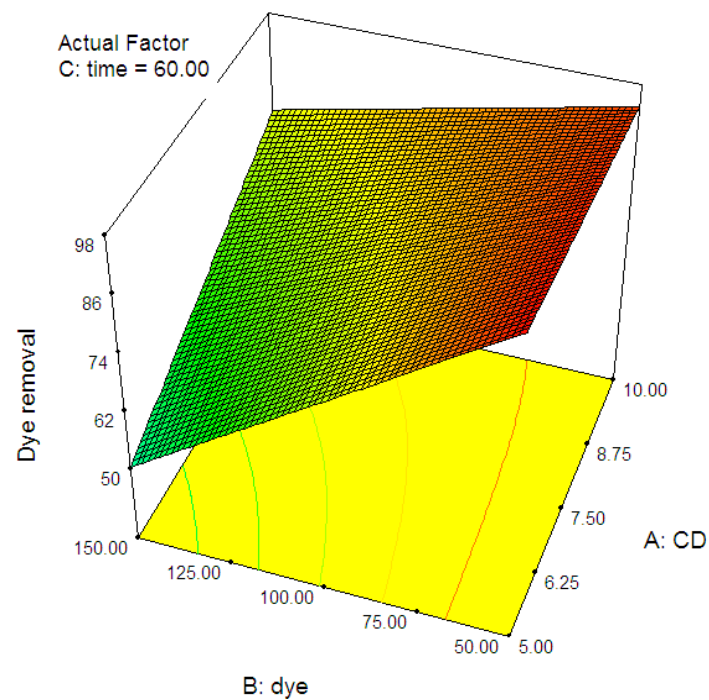
جدول ۲- متغیرهای مستقل و مقادیر واقعی آنها در طرح باکس-بنکن و ترتیب آزمایشات برای حذف MB با استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی

| حذف رنگ<br>(درصد) | زمان<br>(دقیقه) | غلظت رنگ<br>(میلی گرم در لیتر) | دانسیته جریان<br>(میلی آمپر بر سانتی متر مربع) |
|-------------------|-----------------|--------------------------------|------------------------------------------------|
| ۱                 | ۸۸              | ۱۰۰                            | ۷/۵                                            |
| ۲                 | ۴۷/۲            | ۲۰                             | ۵                                              |
| ۳                 | ۹۴/۴            | ۶۰                             | ۵                                              |
| ۴                 | ۷۹/۴            | ۶۰                             | ۷/۵                                            |
| ۵                 | ۸۱              | ۶۰                             | ۷/۵                                            |
| ۶                 | ۹۶/۱۵           | ۱۰۰                            | ۱۰                                             |
| ۷                 | ۶۲/۲۵           | ۲۰                             | ۱۰                                             |
| ۸                 | ۷۸/۵            | ۲۰                             | ۷/۵                                            |
| ۹                 | ۴۸              | ۶۰                             | ۵                                              |
| ۱۰                | ۹۴/۸            | ۶۰                             | ۱۰                                             |
| ۱۱                | ۹۶/۱۵           | ۱۰۰                            | ۵                                              |
| ۱۲                | ۲۵              | ۲۰                             | ۷/۵                                            |
| ۱۳                | ۹۸/۴            | ۱۰۰                            | ۷/۵                                            |
| ۱۴                | ۸۲              | ۶۰                             | ۷/۵                                            |
| ۱۵                | ۸۰              | ۶۰                             | ۱۰                                             |

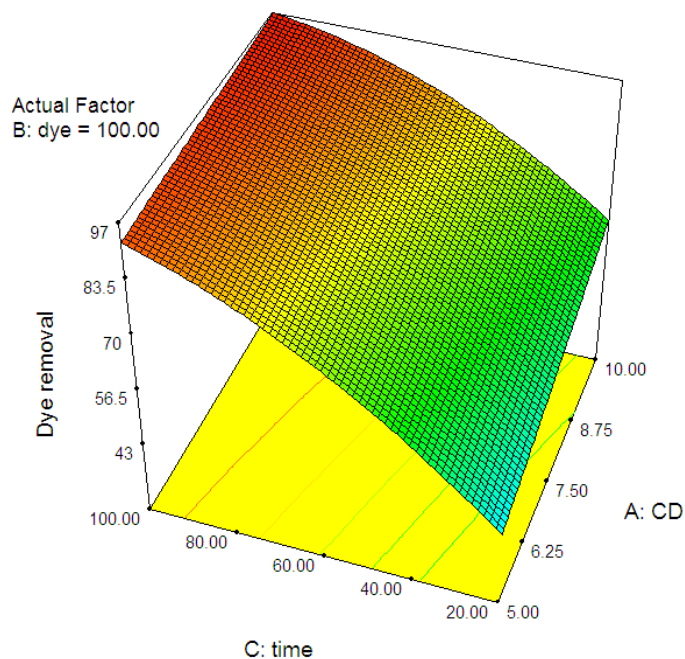
جدول ۳ - نتایج آنالیز واریانس (ANOVA) برای مدل باکس بنکن براساس داده های آزمایشگاهی

| منبع           | میانگین<br>مربعات | درجه آزادی | مجموع<br>مربعات | F      | P-value<br>Prob> F |
|----------------|-------------------|------------|-----------------|--------|--------------------|
| مدل            | ۹۳۹/۴۷            | ۷          | ۶۵۷۶/۳۹         | ۱۰۳/۷۴ | <۰/۰۰۰۱            |
| A-CD           | ۲۸۱/۴۴            | ۱          | ۲۸۱/۴۴          | ۳۱/۰۸  | ۰/۰۰۰۸             |
| B-dye          | ۱۹۵۶/۲۵           | ۱          | ۱۹۵۶/۲۵         | ۲۱۶/۰۳ | <۰/۰۰۰۱            |
| C-time         | ۳۴۳۴/۱۳           | ۱          | ۳۴۳۴/۱۳         | ۳۷۹/۲۳ | <۰/۰۰۰۱            |
| AB             | ۲۴۹/۶۴            | ۱          | ۲۴۹/۶۴          | ۲۷/۵۷  | ۰/۰۰۱۲             |
| AC             | ۵۶/۶۳             | ۱          | ۵۶/۶۳           | ۶/۲۵   | ۰/۰۴۱۰             |
| BC             | ۴۶۴/۴۰            | ۱          | ۴۶۴/۴۰          | ۵۱/۲۸  | ۰/۰۰۰۲             |
| C <sup>2</sup> | ۱۳۳/۸۰            | ۱          | ۱۳۳/۸۰          | ۱۴/۷۸  | ۰/۰۰۶۳             |
| باقیمانده      | ۹/۰۶              | ۷          | ۶۳/۳۹           |        |                    |
| عدم برازش      | ۱۱/۹۹             | ۵          | ۵۹/۹۵           | ۶/۹۷   | ۰/۱۳۰۲             |
| خطای خالص      | ۱/۷۲              | ۲          | ۳/۴۴            |        |                    |

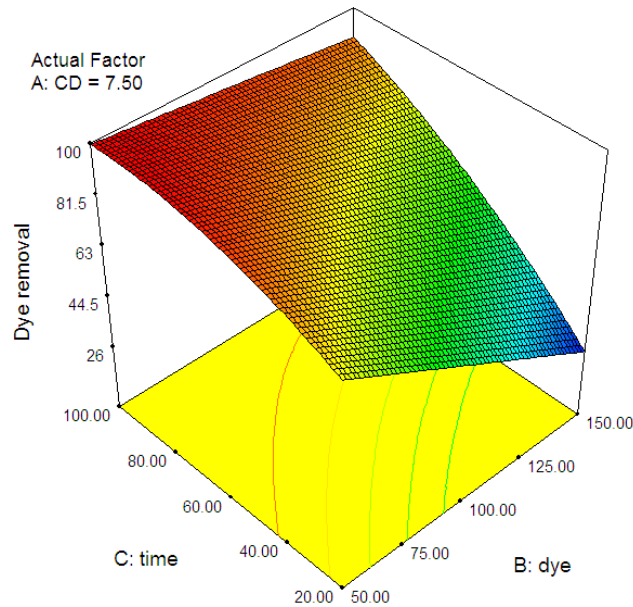
$R^2 = ۰/۹۹$      $adj-R^2 = ۰/۹۹$      $C.V. \% = ۳/۲$      $Std. Dev. = ۳/۰۱$   
 $Pred R^2 = ۰/۹۹$      $Mean = ۷۶/۷۵$



شکل ۳- نمودار اثر برهمکنشی دانسیته جریان در مقابل غلظت اولیه رنگ در حذف رنگ متیلن بلو با فرایند انعقاد الکتریکی



شکل ۴- نمودار اثر برهمکنشی دانسیته جریان در مقابل زمان در حذف رنگ متیلن بلو با فرایند انعقاد الکتریکی



شکل ۵- نمودار اثر برهمکنشی زمان ماند در مقابل غلظت رنگ در حذف رنگ متیلن بلو با فرایند انعقاد الکتریکی

#### بحث

#### تأثیر تغییرات دانسیته جریان بر روی کارایی فرایند انعقاد الکتریکی در حذف رنگ متیلن بلو

میزان حذف رنگ متیلن بلو به طور عمده وابسته به جریان در یک پتانسیل ثابت است. انتشار یون های آهن در محلول از آند آهنی از قانون فارادی تبعیت می کند. همان طور که مشخص است، قانون فارادی رابطه بین دانسیته جریان و مقدار ماده آندی که به داخل محلول رها می شود را بیان می کند (معادله ۳) (۱۷).

#### معادله ۳

$$w = \frac{iTM}{ZF}$$

که در این رابطه،  $w$  میزان انحلال مواد آند (بر حسب گرم بر سانتی متر مربع)،  $T$  زمان (بر حسب دقیقه)،  $i$  دانسیته

جریان (بر حسب آمپر بر سانتی متر مربع)،  $M$  وزن ملکولی مواد آند و  $Z$  تعداد الکترون های دخیل در واکنش اکسیداسیون-احیا است. همچنین،  $F$  ثابت فارادی است. بر اساس این رابطه، تعداد هیدروکسیدهای فلزی تولید شده با افزایش دانسیته جریان افزایش می یابد. بنابراین، روشن است که جریان های بالاتر، مقدار قابل توجهی از یون های آهن تولید می کنند که به نوبه خود مولکول های رنگی را به دام می اندازد و در نتیجه باعث افزایش راندمان حذف می شود. اثر دانسیته جریان بر راندمان حذف رنگ متیلن بلو در شکل ۳ نشان داده شده است. همانطور که ملاحظه می شود با افزایش زمان، راندمان حذف رنگ افزایش می یابد. در دانسیته جریان ۵ میلی آمپر بر سانتی متر مربع در مدت زمان ۲۰ دقیقه حدود ۴۵ درصد رنگ حذف می شود، در حالیکه با افزایش زمان به ۶۰ دقیقه در همین مقدار دانسیته جریان



تا ۸۳ درصد راندمان حذف افزایش می‌یابد. همانطور که دانسیته جریان اعمال شده از ۵-۲۰ میلی آمپر بر سانتی‌متر مربع افزایش یافته است، راندمان حذف رنگ به طور قابل توجهی در زمان‌های الکترولیز بالاتر خیلی تغییر نکرده است. به خوبی مشخص شده است که مقدار دانسیته جریان میزان انعقاد را تعیین می‌کند و همچنین میزان و اندازه تولید حباب‌های داخل راکتور را تنظیم می‌کند و بنابراین بر رشد لخته‌ها تأثیر می‌گذارد (۳۸، ۳۹). با این حال، توصیه می‌شود دانسیته جاری برای جلوگیری از تغییر بیش از حد اکسیژن و نیز حذف سایر اثرات نامطلوب مانند تولید گرما، محدود گردد (۳۳). با افزایش دانسیته جریان، مقدار آهن اکسید شده و تولید حباب افزایش می‌یابد و در نتیجه مقدار پلیمرهای هیدروکسیل موجود برای جذب مولکول رنگ نیز افزایش می‌یابد (۴۰). همچنین مشاهده شد که لخته‌ها در دانسیته‌های کم، تمایل به سکونت دارند و در دانسیته جریان بالا جابجا می‌شوند.

### تأثیر تغییرات غلظت اولیه رنگ بر روی کارایی فرایند انعقاد الکتریکی در حذف رنگ متیلن بلو

همانطور که در شکل ۳ مشاهده می‌شود راندمان حذف بیشتر در غلظت پایین‌تر رنگ وجود دارد. برای مدت زمان ۲۰ دقیقه با غلظت اولیه ۵۰ میلی گرم در لیتر و دانسیته جریان ثابت ۷/۵ میلی آمپر بر سانتی‌متر مربع، راندمان حذف برابر ۷۳/۳ درصد بود (شکل ۵). با افزایش غلظت رنگ متیلن بلو در همین شرایط (زمان ۲۰ دقیقه و دانسیته جریان ۷/۵ میلی آمپر بر سانتی‌متر مربع) راندمان حذف به مقدار قابل ملاحظه‌ای کاهش می‌یابد. بدیهی است افزایش غلظت رنگ نیازمند توان و یا انرژی بیشتر و زمان بیشتر برای رنگ‌زدایی می‌باشد. همواره بایستی بین متغیرهای

موثر بر فرایند شیمیایی یا الکتروشیمیایی، حالت بهینه وجود داشته باشد که کارایی مورد نظر را حاصل کند. در این حالت بدلیل کمبود هیدروکسیدهای فلزی مورد نیاز و متناسب با تعداد مولکول‌های رنگی، راندمان حذف پایین است (۳۳). ملاحظه می‌شود که در آمپر ثابت (۷/۵ میلی آمپر بر سانتی‌متر مربع) در غلظت رنگ ۵۰ میلی گرم در لیتر راندمان حذف تا حدود ۱۰۰ درصد افزایش می‌یابد (شکل ۳). در این حالت با افزایش غلظت رنگ متیلن بلو از ۵۰ به ۱۵۰ میلی گرم بر لیتر کاهش چشمگیری در میزان کاهش راندمان حذف مشاهده نمی‌شود. به عبارت دیگر، غلظت بالای رنگ تقریباً هیچ تغییری در عملکرد حذف رنگ ندارد. زمان کافی در این حالت می‌تواند شرایط مناسب برای تجزیه و حذف رنگ را فراهم آورد. بنابراین با افزایش زمان الکترولیز به علت افزایش اکسید شدن آهن، در نتیجه تجمع هیدروکسید آهن افزایش می‌یابد.

### تأثیر زمان تماس بر میزان حذف رنگ بر روی کارایی فرایند انعقاد الکتریکی در حذف رنگ متیلن بلو

زمان تماس عامل مهمی در تکمیل فرایند انعقاد می‌باشد. همان‌طور که در شکل‌های ۴ و ۵ ملاحظه می‌شود با افزایش زمان تماس در راکتور، میزان یا راندمان حذف متیلن بلو به مقدار قابل ملاحظه‌ای افزایش یافته است و تقریباً با شیب تندی افزایش یافته است. در تمام شرایط انجام مطالعه با گذشت زمان تماس (حداکثر ۱۲۰ دقیقه)، راندمان حذف رنگ تقریباً به بالاتر از ۸۵ درصد رسیده است که نشان‌دهنده نقش مهم این پارامتر می‌باشد. در طراحی راکتورها در شرایط واقعی نیز زمان تماس بسیار مهم است، بطوریکه بهره‌برداری در زمان‌های تماس کوتاه مدت با کارایی مورد نظر می‌تواند به کاهش هزینه‌های بهره‌برداری و سرمایه-



از لحاظ آماری معنی‌دار بوده و مقادیر ضریب تعیین نیز این موضوع را تایید نمودند. بطور کلی فرایند بر اساس داده‌های تجربی و شرایط انجام این مطالعه و همچنین بر اساس مدل ایجاد شده در شرایط بهینه قابلیت حذف درصد بالایی از رنگ متیلن بلو را داراست. این روش می‌تواند بطور موثری برای حذف رنگ‌های مشابه و در شرایط واقعی مورد بررسی و استفاده قرار گیرد.

### تشکر و قدردانی

این مطالعه در قالب یک پروژه درسی دانشجویی و در آزمایشگاه گروه بهداشت محیط دانشکده بهداشت و تغذیه در دانشگاه علوم پزشکی لرستان انجام گرفت. روش کار و نتایج حاصل در جلسه پژوهشی گروه بهداشت محیط مورد تایید قرار گرفته است.

گذاری (حجم راکتور و تاسیسات و ...) کمک شایانی نماید. گولدر<sup>۱</sup> و همکاران حذف متیلن بلو در یک راکتور بسته انجام دادند و نشان دادند که با گذشت زمان، میزان حذف افزایش می‌یابد (۴۱). نتایج مشابه علی‌رغم تفاوت فاحش در راکتورهای بکار رفته در این مطالعه و آن مطالعات مذکور وجود دارد (۴۲).

### مدل‌های توسعه یافته برای حذف رنگ متیلن بلو با فرایند انعقاد الکتریکی

مدل ایجاد شده برحسب پارامترهای کدگذاری شده برای حذف رنگ به شرح زیر می‌باشند:

#### معادله ۴

$$= \text{راندمان حذف (درصد)} \\ 79/94 + (5/39 * A) - (15/74 * B) + (20/72 * C) + (7/9 * A * B) - \\ (3/76 * A * C) - (5/99 * C^2)$$

با توجه به نتایج جدول ANOVA (جدول ۳) مدل دو جمله‌ای حاصل معنی‌دار می‌باشد ( $P < 0/05$ ).

### نتیجه‌گیری

در این مطالعه حذف رنگ متیلن‌بلو با استفاده از روش انعقاد الکتریکی مورد بررسی قرار گرفت. تاثیر متغیرهای موثر بر فرایند (دانسیتته جریان، زمان تماس و غلظت رنگ) با استفاده از روش سطح-پاسخ بررسی گردید. مشخص گردید که تاثیر همه متغیرهای مورد بررسی بر روی فرایند معنی‌دار بود. همچنین اثرات برهمکنشی آنها نیز بر روی فرایند حذف رنگ معنی‌دار بود. مدل ارائه شده برای پیش‌بینی فرایند بر اساس آنالیزهای آماری عددی و گرافیکی تایید شد که کفایت لازم برای پیش‌بینی فرایند را دارا بود. مدل حاصل

<sup>۱</sup>Golder



## References

1. Gulnaz O, Kaya A, Matyar F, Arikan B. Sorption of basic dyes from aqueous solution by activated sludge. *J Hazard Mater* 2004;108(3):183-8.
2. Rodríguez Couto S. Dye removal by immobilized fungi. *Biotechnol Adv* 2009;27(3):227-35.
3. Shedbalkar U, Dhanve R, Jadhav J. Biodegradation of triphenylmethane dye Cotton blue by *Penicillium ochrochloron* MTCC 517. *J Hazard Mater* 2008;157(2-3):472-9.
4. Annuar MSM, Adnan S, Vikineswary S, Chisti Y. Kinetics and energetics of azo dye decolorization by *Pycnoporus sanguineus*. *Water Air Soil Pollut* 2009;202(1-4):179-88.
5. Barragán BE, Costa C, Carmen Marquez M. Biodegradation of azo dyes by bacteria inoculated on solid media. *Dyes and Pigments* 2007;75(1):73-81.
6. dos Santos AB, Cervantes FJ, van Lier JB. Review paper on current technologies for decolourisation of textile wastewaters: Perspectives for anaerobic biotechnology. *Bioresour Technol* 2007;98(12):2369-85.
7. Senthilkumaar S, Varadarajan PR, Porkodi K, Subbhuraam CV. Adsorption of methylene blue onto jute fiber carbon: kinetics and equilibrium studies. *J Colloid Interface Sci* 2005;284(1):78-82.
8. Ghosh D, Bhattacharyya K. Adsorption of Methylene blue on kaolinite. *Appl Clay Sci* 2002;20(6):295-300.
9. Órfão JJM, Silva AIM, Pereira JCV, Barata SA, Fonseca IM, PCC Faria, *et al.* Adsorption of reactive dyes on chemically modified activated carbons-Influence of pH. *J Colloid Interface Sci* 2006;296(2):480-9.
10. Tarasov VV, Barancova GS, Zaitsev NK, Dongxiang Z. Photochemical kinetics of organic dye oxidation in water. *Process Saf Environ Prot* 2003;81(4):243-9.
11. Ciardelli G, Corsi L, Marussi M. Membrane separation for wastewater reuse in the textile industry. *Resource Conservation and Recycling* 2001;31(2):189-97.
12. Yildiz YŞ. Optimization of Bomaplex Red CR-L dye removal from aqueous solution by electrocoagulation using aluminum electrodes. *J Hazard Mater* 2008;153(1-2):194-200.
13. Lourenço ND, Novais JM, Pinheiro HM. Effect of some operational parameters on textile dye biodegradation in a sequential batch reactor. *J Biotechnol* 2001;89(2-3):163-74.
14. Inanloo K, Naddafi K, Mesdaghinia A, Nasser S, Nodehi RN, Rahimi A. Optimization of operational parameters for decolorization and degradation of ci reactive blue 29 by ozone. *Iran. J Environ Health Sci Eng* 2011;8(3):227-34
15. Ehrampoush M, Ghanizadeh G, Ghaneian M. Equilibrium and kinetics study of reactive red 123 dye removal from aqueous solution by adsorption on eggshell. *J Environ Health Sci Eng* 2011;8(2):101-6.
16. Holt PK, Barton GW, Wark M, Mitchell CA. A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp* 2002;211(2-3):233-48.
17. Vik EA, Carlson DA, Eikum AS, Gjessing ET. Electrocoagulation of potable water. *Water Res* 1984;18(11):1355-60.
18. Pouet MF, Grasmick A. Urban wastewater treatment by electrocoagulation and flotation. *Water Sci Technol* 1995;31(3-4):275-83.
19. Ratna Kumar P, Chaudhari S, Khilar KC, Mahajan SP. Removal of arsenic from water by electrocoagulation. *Chemosphere* 2004;55(9):1245-52.
20. Jiang J-Q, Graham N, André C, Kelsall GH, Brandon N. Laboratory study of electro-coagulation-flotation for water treatment. *Water Res* 2002;36(16):4064-78.
21. Mills D. A new process for electrocoagulation. *J Am Water Works Assoc* 2000;92(6):34-43.
22. Daneshvar N, Ashassi Sorkhabi H, Kasiri MB. Decolorization of dye solution containing Acid Red 14 by electrocoagulation with a comparative investigation of different electrode connections. *J Hazard Mater* 2004;112(1-2):55-62.



23. 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.
24. Hakizimana JN, Gourich B, Chafi M, Stiriba Y, Vial C, Drogui P, *et al.* Electrocoagulation process in water treatment: A review of electrocoagulation modeling approaches. *Desalination* 2017;404:1-21.
25. Koo N, Jo H-J, Lee S-H, Kim J-G. Using response surface methodology to assess the effects of iron and spent mushroom substrate on arsenic phytotoxicity in lettuce (*Lactuca sativa* L.). *J Hazard Mater* 2011;192(1):381-7.
26. Jain M, Garg VK, Kadirvelu K. Investigation of Cr(VI) adsorption onto chemically treated *Helianthus annuus*: Optimization using Response Surface Methodology. *Bioresour Technol* 2011;102(2):600-5.
27. Im J-K, Cho I-H, Kim S-K, Zoh K-D. Optimization of carbamazepine removal in O<sub>3</sub>/UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> system using a response surface methodology with central composite design. *Desalination* 2012;285(31):306-14.
28. Ferreira SLC, Bruns RE, Ferreira HS, Matos GD, David JM, Brandão GC, *et al.* Box-Behnken design: An alternative for the optimization of analytical methods. *Anal Chim Acta* 2007;597(2):179-86.
29. Khayet M, Zahrim AY, Hilal N. Modelling and optimization of coagulation of highly concentrated industrial grade leather dye by response surface methodology. *Chemical Engineering Journal* 2011;167(1):77-83.
30. Jafari A, Mahvi AH, Godini H, Rezaee R, Hosseini SS. Process optimization for fluoride removal from water by moringa oleifera seed extract. *Fluoride* 2014;47(2):152-60.
31. Jafari A, Rezaee R, Nasser S, Mahvi AH, Maleki A, Safari M, *et al.* Application of micellar enhanced ultrafiltration (MEUF) for arsenic (v) removal from aqueous solutions and process optimization. *J Dispers Sci Technol* 2017;38(11):1588-93.
32. Mohsenibandpei A, Alinejad A, Bahrami H, Ghaderpoori M. Water Solution Polishing Of Nitrate Using Potassium Permanganate Modified Zeolite: Parametric Experiments, Kinetics And Equilibrium Analysis. *Global Nest Journal* 2016;18(3):546-58.
33. Mollah MYA, Pathak SR, Patil PK, Vayuvegula M, Agrawal TS, Gomes JAG, *et al.* Treatment of orange II azo-dye by electrocoagulation (EC) technique in a continuous flow cell using sacrificial iron electrodes. *J Hazard Mater* 2004;109(1-3):165-71.
34. Rezaee R, Maleki A, Jafari A, Mazloomi S, Zandsalimi Y, Mahvi AH. Application of response surface methodology for optimization of natural organic matter degradation by UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> advanced oxidation process. *J Environ Health Sci Eng* 2014;12(1):67.
35. Massoudinejad M, Ghaderpoori M, Shahsavani A, Amini MM. Adsorption of fluoride over a metal organic framework UiO-66 functionalized with amine groups and optimization with response surface methodology. *J Mol Liq* 2016;221:279-86.
36. Massoudinejad M, Ghaderpoori M, Shahsavani A, Jafari A, Kamarehie B, Ghaderpoury A, *et al.* Ethylenediamine-functionalized cubic ZIF-8 for arsenic adsorption from aqueous solution: Modeling, isotherms, kinetics and thermodynamics. *J Mol Liq* 2018;255:263-8.
37. Massoudinejad M, Shahsavani A, Kamarehie B, Jafari A, Ghaderpoori M, Amini MM, *et al.* Highly efficient adsorption of fluoride from aqueous solutions by metal organic frameworks: Modeling, isotherms, and kinetics. *Fluoride* 2018;51(4):355-65.
38. Chen G. Electrochemical technologies in wastewater treatment. *Sep Purif Technol* 2004;38(1):11-41.
39. Mollah MYA, Morkovsky P, Gomes JAG, Kesmez M, Parga J, Cocke DL. Fundamentals, present and future perspectives of electrocoagulation. *J Hazard Mater* 2004;114(1-3):199-210.
40. Augugliaro V, Baiocchi C, Bianco Prevot A, García-López E, Loddo V, Malato S, *et al.* Azo-dyes photocatalytic degradation in aqueous suspension of TiO<sub>2</sub> under solar irradiation. *Chemosphere* 2002;49(10):1223-30.
41. Golder AK, Hridaya N, Samanta AN, Ray S. Electrocoagulation of methylene blue and eosin yellowish using mild steel electrodes. *J Hazard Mater* 2005;127(1-3):134-40.



42. I. Ayhan S, Mahmut O. The decolorization of C.I. Reactive Black 5 in aqueous solution by electrocoagulation using sacrificial iron electrodes. J Hazard Mater 2009;161(2-3):1369-76.



## Methylene blue removal from aqueous solutions by electrocoagulation in continuous flow reactor: Modeling and optimization of operating parameters

Ali Jafari, Mansour Ghaderpoori\*

Department of Environmental Health Engineering, Faculty of health and nutrition, Lorestan University of Medical Sciences, Khorramabad, Iran

### Original Article

**Received:** 22 Jan, 2019

**Accepted:** 20 Mar, 2019

#### \*Corresponding Author:

Mansour Ghaderpoori,  
Department of Environmental  
Health Engineering, Faculty  
of health and nutrition,  
Lorestan University of  
Medical Sciences,  
Khorramabad, Iran  
**TEL:** 066-33408176  
**Email:**  
mghaderpoori@gmail.com

### ABSTRACT

#### Introduction

The application and increasingly produce of colorants, particularly, synthetic dyes, are one of the main environmental and health concerns especially in industrialized countries. If this type of dyes is discharged into the environment without any control, many problems will arise. Therefore, it is necessary to remove the dyes from aqueous solutions using appropriate methods. The purpose of this study was to investigate the use of the electrocoagulation process to remove methylene blue as one of the most widely used and problematic dyes from aqueous solution.

#### Methods & Materials

This study was conducted using a lab scale electrocoagulation reactor operating at a continuous flow. To better analyze and set the minimum reasonable number of experimental runs, the study was carried out using response surface methodology using the Box-Behnken model. For better understanding, the process, the effect of operating variables and their interactions on the process performance was also analyzed using the model. For this purpose, three independent parameters (at three levels) including current density (5, 7.5 and 10 mA/cm<sup>2</sup>), dye concentration (50, 100 and 150 mg/L) and operating time (20, 60 and 100 min) were used.

#### Results

ANOVA test results showed that dye removal was affected by all independent variables and their interactions ( $P < 0.05$ ). In optimal conditions, in the range of the levels of the selected variables, the current density of 39.7 mA/cm<sup>2</sup>, dye concentration of 21.23 mg/l and reaction time of 86.47 min the removal of methylene blue obtained 99.16%.

#### Conclusion

This study showed that in the optimal operating conditions, the process can effectively remove the methylene blue dye. This method can be examined and considered for a real scale condition because of its simple application and affordable.

#### Keywords

dye, electrocoagulation, methylene blue, response surface methodology

► Please cite this article as: Jafari A, Ghaderpoori M. Methylene blue removal from aqueous solutions by electrocoagulation in continuous flow reactor: Modeling and optimization of operating parameters. J Neyshabur Univ Med Sci 2019;7(2):34-47.