

# تصفیه الکتروشیمیایی آب‌های آلوده به آرسنیک با استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی

علیرضا ختایی<sup>۱</sup>، مهدی گنجعلی خسروشاهی<sup>۲\*</sup>

۱- تبریز، دانشگاه تبریز، دانشکده شیمی، گروه شیمی کاربردی

۲- تبریز، دانشگاه علوم پزشکی تبریز، معاونت غذا و دارو، آزمایشگاه کنترل مواد غذایی و آشامیدنی

پست الکترونیکی: m\_ganjali@yahoo.com

## چکیده

آرسنیک فلز سمی و خطرناکی است که به طور طبیعی در آب‌های سطحی و زیرزمینی بسیاری از نقاط زمین یافت می‌شود و اثرات آن بر سلامتی انسان جبران‌ناپذیر است. با توجه به اینکه کارایی سیستم‌های تصفیه متداول برای دستیابی به استاندارد کمتر از  $10 \mu\text{g/l}$  مناسب نیست؛ لذا باید از روش‌های جدیدی استفاده کرد که هم اقتصادی بوده و هم بتواند غلظت آرسنیک را تا زیر این مقدار کاهش دهد. فرایند انعقاد الکتریکی از لحاظ اقتصادی و محیط زیستی، یک انتخاب برتر برای سیستم‌های تصفیه آب و فاضلاب می‌باشد. در فرایند انعقاد الکتریکی، الکتروکود فناشونده (آند) بتدریج از بین می‌رود تا مواد اولیه منعقدکننده بوجود آیند. در این مقاله، شیوه حذف آرسنیک از آب آشامیدنی به روش انعقاد الکتریکی و عوامل مؤثر بر آن مورد بررسی قرار گرفته‌اند. بررسی‌ها نشان می‌دهند که الکتروکود آهن بهترین جواب را در حذف آرسنیک داشته و نیز وجود آن در آب موجب بروز مشکل نمی‌شود.

کلمات کلیدی: انعقاد الکتریکی، تصفیه الکتروشیمیایی، تصفیه آب، فلزات سنگین، حذف آرسنیک

## ۱- مقدمه

مشکلات ناشی از آرسنیک در آب بسیار گسترده است. آرسنیک سرطان‌زا بوده و آشامیدن آب‌های آلوده به آن ممکن است اثرات زیانبخشی روی دستگاه گوارش، قلب، سیستم عروق و سیستم اعصاب مرکزی داشته باشد. به خاطر اثرات بسیار سمی آن بر روی سلامت انسان، اخیراً مؤسسه حفاظت محیط زیست آمریکا<sup>۱</sup> حداکثر میزان

مجاز آن را در آب آشامیدنی از  $50 \mu\text{g/l}$  به  $10 \mu\text{g/l}$  کاهش داده است

[۱].

آلودگی آرسنیکی آب‌های زیرزمینی به وسیله فرایندهای طبیعی همچون فرسایش و انحلال آن از کانی‌ها و خاک‌های حاوی آرسنیک و نیز فعالیت‌های بشری همچون تخلیه‌های کنترل نشده صنعتی از صنایع معدنی و متالوژی و کاربرد آفت‌کش‌های حاوی آرسنیک اتفاق می‌افتد. آرسنیک به دو شکل آلی و معدنی در آب یافت می‌شود. لیکن میزان آرسنیک معدنی در آب‌های آلوده بیشتر است [۲]. ظرفیت و

1. United States Environmental Protection Agency (USEPA)

و ترسیب، انعقاد و همترسیبی، روش جذب و فناوری غشاء تقسیم‌بندی و مزایا و معایب آنها را مقایسه شده است.

عیب بیشتر روش‌های متداول این است که کارایی آنها برای حذف As(III) پایین است. از این رو برای حذف مؤثر آرسنیک از آب بهتر است تا ابتدا As(III) به As(V) اکسید شود [۴ و ۲ و ۱]. در این راستا، استفاده از مواد اکسیدکننده خارجی موجب پایین رفتن کیفیت آب می‌شوند. بسیاری از این روش‌ها قادر به حذف آرسنیک تا میزان کمتر از  $50 \mu\text{g/l}$  هستند؛ ولی با در نظر گرفتن میزان  $10 \mu\text{g/l}$  به عنوان حداکثر میزان مجاز، ضروری است تا روش‌های تصفیه جدید مورد بررسی قرار گیرند.

روش انعقاد الکتریکی (EC) یکی از جدیدترین فناوری‌های شناخته شده در زمینه تصفیه آب است. این فناوری برای تصفیه انواع مختلف فاضلاب‌ها بکار رفته است. این روش برای تصفیه آب آشامیدنی، فاضلاب شهری، فاضلاب مملو از فلزات سنگین، فاضلاب رستوران‌ها و آب‌های رنگی بکار برده شده است. فرایند انعقاد، امکان اکسیداسیون آندی و تولید در جای<sup>۴</sup> جاذب‌های سطحی همچون هیدروکسیدهای فلزی و هیدروکسید آلومینیوم را بوجود می‌آورد. فرایند انعقاد الکتریکی بدون تزریق هوا در محدوده وسیع شرایط عملیاتی گزارش گردیده و مشاهده شده است که حذف کارآمد آرسنیک، حدود ۷ ساعت طول می‌کشد و سرعت حذف آرسنیک به روش انعقاد الکتریکی بستگی به غلظت اولیه آرسنیک دارد [۵].

استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی اصلاح شده با تزریق هوا برای افزایش حذف ترکیبات بسیار محلول As(III) و As(V) از آب‌های زیرزمینی نیز بررسی شده است. انعقاد الکتریکی با تزریق هوا موجب تلفیق کارایی بالای حذف آرسنیک با مزیت‌هایی همچون زمان ماند کوتاه و جرم باقی‌مانده حداقل شده و از این رو هزینه عملیات را کاهش می‌دهد [۶]. نکته جالب توجه این است که لجن حاصل از این فرایند، موجب تولید مواد با ارزشی برای فناوری‌های دیگر از جمله تولید سلول‌های خورشیدی می‌گردد [۷].

گونه‌های آرسنیک معدنی موجود در آب، وابسته به شرایط اکسایش و احیاء و pH آب است. به عنوان یک قاعده، شکل سه ظرفیتی احیایی [As(III)] معمولاً در آب‌های زیرزمینی (که شرایط بی‌هوازی فرض می‌شود) و شکل پنج ظرفیتی اکسیدی در آب‌های سطحی (که شرایط هوازی فرض می‌شود) یافت می‌شوند؛ هر چند که این دو شکل همیشه در کنار هم وجود دارند. شکل سه ظرفیتی را آرسنیت و شکل پنج ظرفیتی را آرسنات می‌نامند [۱].

As(III) دارای میزان تحرک بیشتری در آب‌های زیرزمینی بوده و ۶۰-۲۵ مرتبه سمی‌تر از As(V) می‌باشد. تحت شرایط pH پایین و احیاکنندگی متوسط (بیشتر از  $100 \text{ mV}$ )، As(III) از لحاظ ترمودینامیکی پایدار بوده و به پنج شکل  $H_3AsO_3^0$ ،  $H_4AsO_3^+$ ،  $H_2AsO_3^-$ ،  $HAsO_3^{2-}$  و  $AsO_3^{3-}$  یافت می‌شود. تحت شرایط اکسیدکنندگی، As(V) گونه غالب می‌باشد که به چهار شکل  $AsO_4^{3-}$ ،  $HAsO_4^{2-}$ ،  $H_2AsO_4^-$ ،  $H_3AsO_4$  وجود دارد [۱].

## ۲- نگرشی بر فناوری‌های تصفیه آب به منظور حذف آرسنیک

روش‌های نسبتاً زیادی جهت حذف آرسنیک از آب در مجلات علمی توصیف شده‌اند: انعقاد<sup>۱</sup> و همترسیبی با افزودن نمک‌های آهن یا آلوم و سپس انجام فیلتراسیون (به عبارت دیگر، اکسید و هیدروکسید آهن(III) باعث جذب As(V) و تشکیل  $Fe_2(AsO_4)_3$  و ترسیب آن می‌شود)، فناوری غشاء، تعویض یونی و اسمز معکوس، نرم کردن آب با آهک، حذف غیرفعال<sup>۲</sup> با آهن، جذب بر روی آلومینای فعال، کربن فعال و بوکسیت فعال و یا جذب سطحی بر روی سطوح ترکیبات معدنی (ژئولیت‌ها، خاک رس و غیره)، و برخی روش‌های دیگر از جمله اکسایش الکتروشیمیایی، احیا به وسیله آهن فلزی (با ظرفیت صفر)، احیاء توسط گیاهان<sup>۳</sup> و یا اکسایش با استفاده از باکتری‌ها [۳].

با وجود روش‌های یاد شده، به نظر می‌رسد که روش انعقاد الکتریکی با توجه به اینکه توانایی اکسایش همزمان As(III) را به As(V) و سپس جذب آنرا دارد روش بسیار کارآمدتری است [۴]. به عنوان مثال، این روش در ایالات متحده با موفقیت اجرا شده است [۵]. در جدول (۱) روش‌های متداول حذف آرسنیک را به چهار دسته کلی یعنی اکسایش

1. Coagulation
2. Passive
3. Phytoremediation

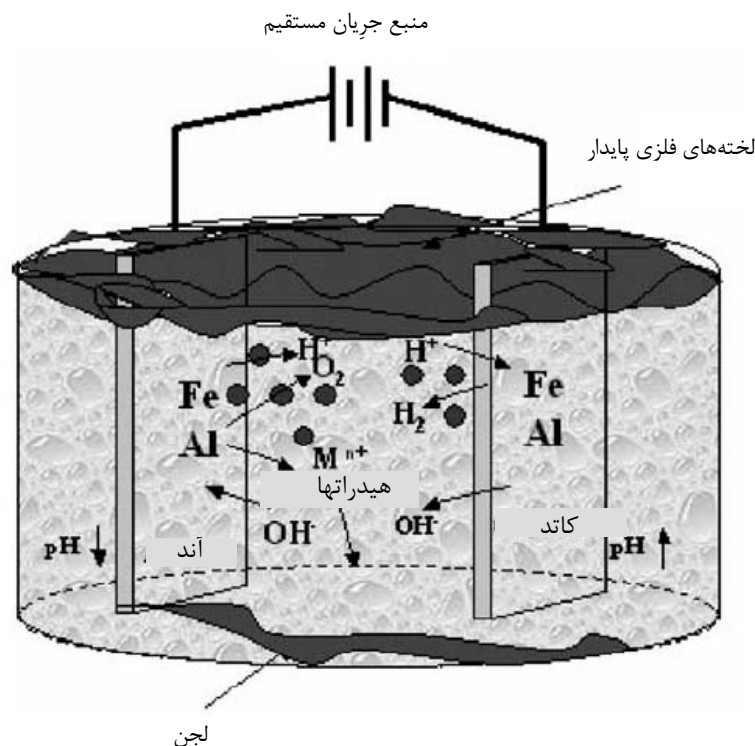
جدول ۱- مقایسه روش‌های بکاررفته برای حذف آرسنیک [۵]

میزان حذف (%)	معایب	مزایا	فناوری بکار رفته	
۸۰	عمدتاً آرسنیک (V) را حذف، و فرایند اکسایش را تسریع می‌کند.	نسبتاً ساده، کم هزینه اما فرایند کند است حذف آرسنیک به صورت درجا همچنین سایر اجزای معدنی و آلی آب را اکسید می‌کند.	اکسایش با هوا	اکسایش/ترسیب
۹۰	کنترل دقیق pH و مرحله اکسایش نیاز است.	سایر ناخالصی‌ها را اکسید می‌کند و میکروب‌ها را می‌کشد. فرایند نسبتاً ساده و سریع است. جرم باقی مانده اندکی دارد.	اکسایش شیمیایی	
۹۰	لجن‌های سمی تولید می‌کند. حذف آرسنیک کم است. پیش اکسایش شاید لازم باشد.	مواد شیمیایی پودری با دوام در دسترس هستند. هزینه اولیه نسبتاً پایین و سادگی عملیات مؤثر در گستره وسیعی از pH	انعقاد با آلوم	انعقاد/همترسیبی
۹۴/۵	حذف متوسط As (III) ته نشین سازی و صاف کردن نیاز است.	مواد شیمیایی معمول در دسترس هستند. در مقیاس وزنی مؤثرتر از انعقاد با آلوم است.	انعقاد با آهن	
۹۱	تنظیم مجدد pH مورد نیاز است.	اغلب مواد شیمیایی معمول بطور تجاری در دسترس هستند.	نرم‌سازی با آهک	
۸۸	بعد از چهار یا پنج بار احیاء نیاز به تعویض دارد.	نسبتاً خوب شناخته شده و بطور تجاری قابل دسترس است.	آلومینای فعال	روش های جذبی
۹۳	هنوز نیاز به استاندارد شدن دارد. پسماندهای جامد سمی تولید می‌کند.	انتظار می‌رود که ارزان باشد. نیازی به احیاء نیست. هر دوی آرسنیک (III) و (V) را حذف می‌کند.	شن پوشیده شده با آهن	
۸۷	مواد اولیه گران قیمت نیاز به عملیات فنی و نگهداری با فناوری بالا احیاء رزین موجب مشکل دفع لجن را ایجاد می‌کند.	رزین با ظرفیت بالا و ماهیت مشخص، فرایند بستگی اندکی به pH آب دارد. رزین ویژه به صورت انتخابی جهت حذف آرسنیک	رزین تبادل یونی	
۹۵	هزینه اولیه بالا آماده‌سازی اولیه نیاز به تزریق زیاد آب	کارایی حذف بالا و شناخته شده	نانوفیلتراسیون	روش های غشایی
۹۶	عملیات فنی و نگهداری بالایی نیاز دارد.	پسماند جامد سمی تولید نمی‌شود.	اسمز معکوس	
۹۵	پساب سمی تولید می‌کند.	توانایی حذف سایر آلوده‌کننده‌ها	الکترو دیالیز	

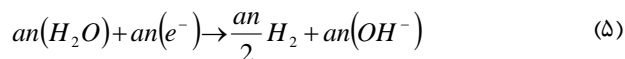
## ۳- ویژگی‌ها و مکانیسم فرایند انعقاد الکتریکی

روش انعقاد الکتریکی جهت انجام فرایند حذف آلودگی نیازمند افزایش مقدار کمی نمک به محلول است تا رسانایی آن افزایش یابد. نگهداری و کارکردن با سلول‌های انعقاد الکتریکی نسبتاً ساده می‌باشد. شرایط عملیاتی انعقاد الکتریکی بستگی شدیدی به شیمی محلول مورد تصفیه، بویژه رسانایی و pH آن دارد [۵]؛ البته در مورد pH نظرات متفاوتی اظهار شده است. سایر ویژگی‌های مهم همچون اندازه ذرات، نوع الکترودها، زمان ماند بین صفحات، طرز قرارگیری صفحات و غلظت مواد شیمیایی اجزاء تشکیل‌دهنده، عوامل اصلی مؤثر بر فرایند می‌باشند [۸]. فرایند انعقاد الکتریکی بر این اصل که کاتیون‌های تولید شده بطور الکتروشیمیایی از آند آهنی و یا آلومینیومی، انعقاد آلوده‌کننده‌ها را از یک محیط آبی افزایش می‌دهند استوار است. حرکت الکتروفورتیک موجب تجمع ذرات باردار منفی در ناحیه آند و

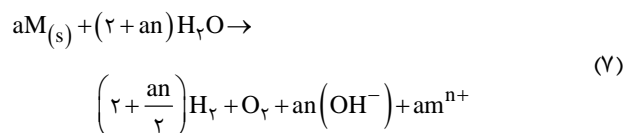
یون‌های باردار مثبت در ناحیه کاتد می‌شود. فلز مصرف‌شده یا فناشونده (آند)، برای تولید پیوسته کاتیون‌های فلزی چند ظرفیتی استفاده می‌شود. این کاتیون‌ها، بار ذرات حمل‌شده بطرف آند را به وسیله حرکت الکتروفورتیک خنثی می‌کنند و از این رو فرایند انعقاد را تسهیل می‌نمایند. به عبارت دیگر، در یک فرایند انعقاد الکتریکی کاتیون‌های چند ظرفیتی از اکسایش آند فناشونده (معمولاً آهن و آلومینیوم) و گازهای الکترولیز (هیدروژن و اکسیژن) از کاتد حاصل می‌شوند تا فرایند لخته‌سازی صورت گیرد. شکل (۱) بطور شماتیک فرایند انعقاد الکتریکی را نشان می‌دهد. حباب‌های گاز تولید شده به وسیله الکترولیز، آلوده‌کننده‌ها را به سطح محلول می‌برند که در آنجا بعد از تغلیظ و انباشتگی، موجب حذف آلوده‌کننده‌ها می‌شود. مکانیسم حذف در انعقاد الکتریکی ممکن است شامل اکسایش، احیاء، تخریب، ترسیب، انعقاد، جذب، رسوب‌دهی و لخته شدن باشد [۵].



شکل ۱- شماتیک فرایند انعقاد الکتریکی [۵]



واکنش کلی:



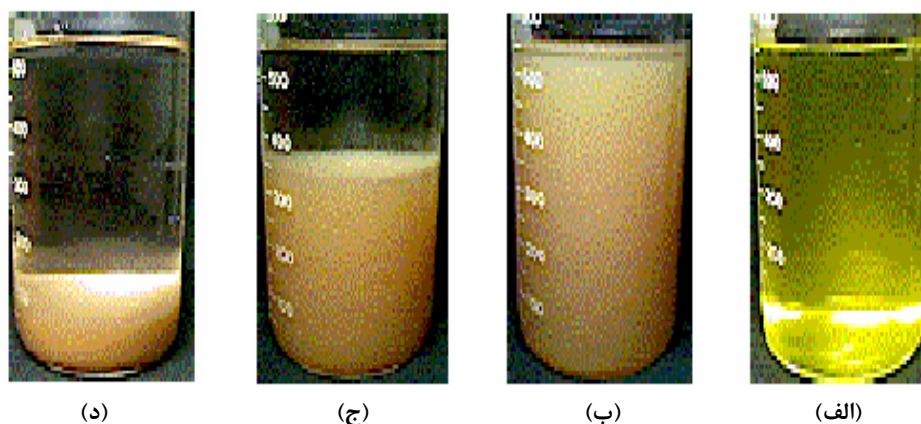
در روابط فوق ثابت  $a$ ، ضریب استوکیومتری و  $n$  تعداد الکترون‌هاست.  $M_{(s)}$  نیز الکتروود فلزی نظیر آهن می‌باشد.

شکل (۲) وضعیت لخته‌سازی یک محلول سوسپانسیونی حاصل از فرایند انعقاد الکتریکی را نشان می‌دهد [۸]. عموماً در فرایند انعقاد الکتریکی الکترودهای دوقطبی استفاده می‌شوند. گزارش شده است که سلول‌هایی با الکترودهای دوقطبی که بطور متوالی به هم متصل شده‌اند در دانسیته جریان‌های پایین، منعقدکننده‌های آهنی یا آلومینیومی را تولید می‌کنند که در مقایسه با انعقاد شیمیایی، مؤثرتر، بسیار اقتصادی‌تر و سریع‌تر است [۵].

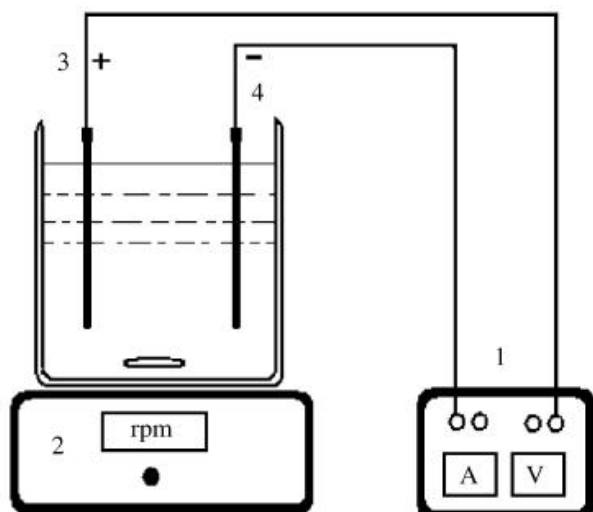
کاتیون‌های فلزی  $As(III)$  و  $As(V)$  با  $OH^-$  تولید شده در کاتد واکنش می‌دهند و تولید هر دو نوع هیدروکسیدهای محلول و نامحلول را می‌کنند که به ترتیب آلوده‌کننده‌ها را از محلول جذب خواهند کرد و یا با آنها واکنش خواهند داد. به عبارت دیگر، این هیدروکسیدها موجب انجام فرایند انعقاد، به وسیله ذرات کلوئیدی باردار منفی خواهند شد که ممکن است در شرایط pH خنثی یا قلیایی وجود داشته باشند. بدین ترتیب، ذرات تحت تأثیر نیروهای جاذبه و اندروالسی به هم نزدیک شده و بشکل توده در می‌آیند. واکنش‌های شیمیایی که برای توصیف مکانیسم انعقاد الکتریکی و تولید  $H_{2(g)}$  و  $OH^-_{(aq)}$  در کاتد و  $H^+_{(aq)}$  در آند پیشنهاد شده‌اند عبارتند از [۵]:



کاتد:



شکل ۲- وضعیت لخته‌سازی محلول سوسپانسیون در اثر فرایند انعقاد الکتریکی: (الف) قبل از فرایند انعقاد الکتریکی، (ب) حین فرایند انعقاد الکتریکی (ج) بعد از ۵ دقیقه از فرایند انعقاد الکتریکی، (د) بعد از ۱۰ دقیقه از فرایند انعقاد الکتریکی [۸]



شکل ۳- سیستم واکنشگاه ناپیوسته برای فرایند انعقاد الکتریکی:  
۱- منبع جریان مستقیم، ۲- بهمن مغناطیسی، ۳- آند، ۴- کاتد [۹]

آرسنیک باقی مانده در نمونه‌های آب با استفاده از روش کمپلکس آبی مولیبدنیوم تعیین می‌گردد. این شیوه برای تخمین غلظت‌های  $As(III)$  و  $As(V)$  در نمونه‌های تصفیه شده آب جهت ارزیابی کارایی مرحله اکسیداسیون و مرحله حذف آرسنیک استفاده شده است. برای اندازه‌گیری آرسنیک از روش اسپکتروفوتومتری در طول موج  $865 \text{ nm}$  با سل‌هایی به طول  $5 \text{ cm}$  استفاده می‌شود. منحنی کالیبراسیون برای کل آرسنیک با استفاده از محلول‌های حاوی  $As(III)$  یا  $As(V)$  حل شده در آب مقطر تهیه می‌شود. اندازه‌گیری یون‌های آهن در حضور شناساگر  $1,10$ - فناترولین که در روش‌های استاندارد توصیف شده انجام می‌گیرد.

#### ۵-۱- مقایسه جنس الکترودها

در هر فرایند الکتروشیمیایی، جنس الکتروود تأثیر چشمگیری در کارایی تصفیه دارد. از این رو، انتخاب جنس الکتروود مهم می‌باشد. جنس الکترودهای مورد استفاده برای تصفیه آب آشامیدنی باید طوری باشد که به سلامتی انسان لطمه نزنند. از این رو، الکترودهای آهن و آلومینیوم که براحتی در دسترس می‌باشند برای حذف آرسنیک طی فرایند انعقاد الکتریکی مناسب هستند.

#### ۴- طراحی و عملکرد واکنشگاه انعقاد الکتریکی

طراحی مهندسی واکنشگاه انعقاد الکتریکی بیشتر بر مبنای کارهای تجربی و مطالعات تئوری صورت گرفته است. تفاوت اصلی مابین طراحی‌های مختلف، پیوسته یا ناپیوسته بودن سیستم می‌باشد. در سیستم‌های پیوسته شرایط عملیاتی ثابت بوده و خوراک (آب آلوده) با شدت ثابت وارد سیستم می‌گردد که این امر دارای جنبه‌های مثبتی در مراحل طراحی و عملیات سیستم خواهد بود. واکنشگاه‌های ناپیوسته با حجم ثابتی از آب آلوده عمل می‌کنند که از نقطه نظر طراحی و عملیات دارای معایبی می‌باشد؛ زیرا شرایط راکتور نسبت به زمان تغییر می‌کند. دومین تفاوت اساسی مابین طراحی‌های مختلف، نقش شناورسازی می‌باشد [۹]. با در نظر گرفتن نتایج کارهای تجربی قبلی، بطور کلی برای طراحی واکنشگاه‌های انعقاد الکتریکی، عوامل سه گانه زیر در انتخاب نوع واکنشگاه و طراحی آن در نظر گرفته می‌شوند [۹]:

- شرایط عملیاتی پیوسته یا ناپیوسته

- نقش ایفاء شده توسط حباب‌های تولیدی طی فرایندهای الکتریکی

- چگونگی جداسازی آلاینده‌ها

#### ۵-۲- بررسی عوامل مؤثر بر فرایند انعقاد الکتریکی

به منظور تعیین عوامل مؤثر بر فرایند انعقاد الکتریکی، بررسی‌های متعددی در شرایط مختلف توسط پژوهشگران مختلف صورت گرفته است [۱]. آزمایش‌های مختلف گزارش شده، با سه نوع الکتروود مختلف از جنس‌های آهن، آلومینیوم و تیتانیوم انجام شده‌اند. بدین منظور، دو الکتروود با جنس یکسان به فاصله  $0.5 \text{ cm}$  از هم در یک بشر  $1/5$  لیتری که حاوی یک لیتر از آب حاوی آرسنیک وارد گردیده است. قبل از هر آزمایش، الکترودها با سمباده ساییده شد تا پوسته‌ها از بین رفته و سپس با اسید سولفوریک  $1 \text{ N}$  و آب شستشو داده شد. بدین منظور، می‌توان از یک واکنشگاه ناپیوسته مطابق شکل (۳) استفاده کرد.

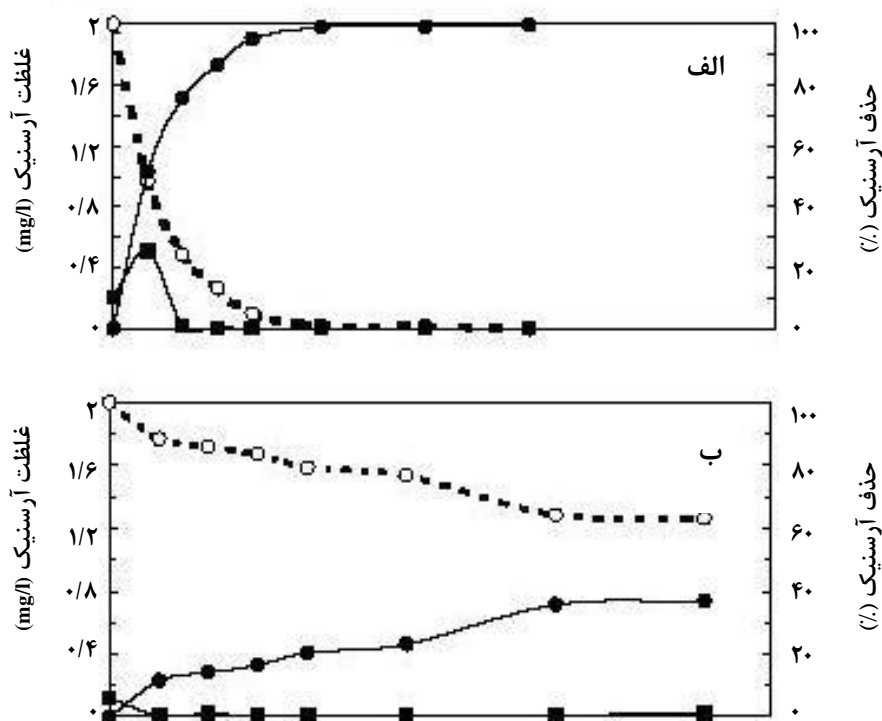
معمولاً یک جریان برق مستقیم از منبع تغذیه DC به الکترودها اعمال می‌شود که در آن، میزان جریان با یک مبدل متغیر کنترل می‌شود. از آنجایی که اغلب آب‌های حاوی آرسنیک دارای pH در محدوده ۶-۸ هستند بنابراین، اکثر آزمایش‌ها نیز در این محدوده از pH انجام شده‌اند [۶-۱].

### ۵-۱-۱- الکترو د آهنی

شکل ۴ (الف) میزان حذف کل آرسنیک [As(III)+As(V)] را با دانسیته جریان نشان می‌دهد. با توجه به این شکل مشاهده می‌شود، در صورتی که حذف آرسنیک بیش از ۹۹٪ باشد غلظت نهایی کمتر از  $10 \mu\text{g/l}$  خواهد بود. در این فرایند، ابتدا غلظت As(V) افزایش پیدا کرده و سپس کاهش می‌یابد. دلیل احتمالی این رفتار ممکن است این باشد که در ابتدای فرایند انعقاد کتریکی (یعنی فاز تأخیر)، سرعت اکسیداسیون As(III) به As(V) بیشتر از سرعت جذب As(V) بر روی هیدروکسیدهای فلزی باشد. همانطوری که مشاهده می‌شود، در صورتی که زمان به اندازه کافی داده شود، هیدروکسیدهای فلزی آبی تولید می‌شوند و آرسنیک بر سطح آنها جذب می‌شود [۱].

### ۵-۱-۲- الکترو د آلومینیومی

شکل ۴ (ب)، تغییرات میزان حذف As(V) و حذف کل آرسنیک را با میزان بار عبوری در محلول برای الکترو د آلومینیومی را نشان می‌دهد. از این شکل می‌توان مشاهده کرد که غلظت As(V) در شروع آزمایش  $0.53 \text{ mg/l}$  بوده و در انتهای آزمایش به  $0.053 \text{ mg/l}$  کاهش پیدا کرده است. حذف آرسنیک به میزان ۳۷٪ به دست آمده که با مقایسه آن با میزان حذف آرسنیک توسط الکترودهای آهنی کم می‌باشد. دلیل احتمالی برای حذف کمتر آرسنیک به وسیله الکترو د آلومینیومی در مقایسه با الکترو د آهنی می‌تواند به ظرفیت جذب کمتر As(III) توسط هیدروکسید آلومینیوم در مقایسه با هیدروکسید آهن نسبت داده شود [۱].



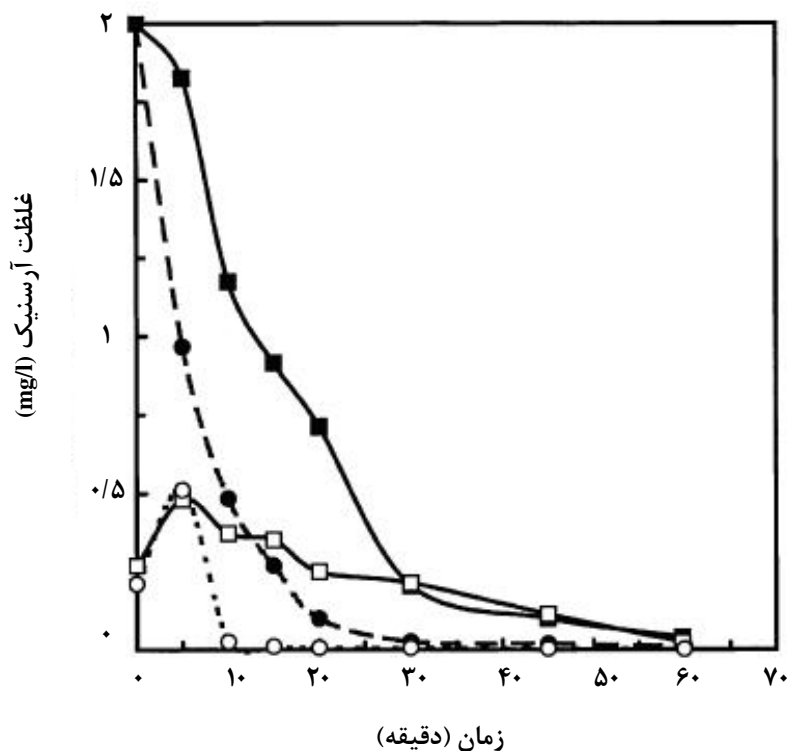
شکل ۴- حذف آرسنیک با الکترودهای (الف) آهن، (ب) آلومینیوم، (●) حذف کلی آرسنیک، (○) غلظت کلی آرسنیک، (■) غلظت As(V) [۱]

## ۵-۲- اثر زمان و دانسیته جریان

وابستگی زمانی حذف آرسنیک به وسیله فرایند انعقاد الکتریکی در pH برابر ۷ در شکل (۵) نشان داده شده است. می توان مشاهده کرد که تا بیش از ۶۰-۵۰٪ غلظت اولیه آرسنیک در ۵ دقیقه اولیه فرایند حذف شد و غلظت باقی مانده آرسنیک در آب کمتر از  $10 \mu\text{g/l}$  است که در محدوده مجاز جدید تعیین شده از سوی سازمان بهداشت جهانی می باشد. در ابتدای فرایند، حذف آرسنیک سریع است و بعداً بتدریج کاهش می یابد تا فرایند کاملاً به پایان برسد. در ابتدای فرایند، انعقاد الکتریکی یون های آرسنیک و هیدروکسیدهای آهن تولید شده به علت خوردگی آند به وفور یافت می شوند، به طوری که کمپلکس هایی با آرسنیک تشکیل شده و حذف سریع آرسنیک مشاهده می شود. با ادامه فرایند انعقاد الکتریکی، غلظت آرسنیک در فاز آبی کاهش می یابد و بطور همزمان غلظت هیدروکسیدهای آهن

بالا می رود و از این رو فراوانی هیدروکسیدهای فلزی در پایان فرایند مشاهده می گردد، پس منحنی ها در انتهای آزمایش ها شبیه یکدیگر هستند [۱].

برخی محققان گزارش کرده اند که در انعقاد الکتریکی، دانسیته جریان می تواند کارایی فرایند تصفیه را تحت تأثیر قرار دهد [۱۱-۱۰]. در حالی که پژوهشگران دیگر گزارش کرده اند که دانسیته جریان اثر چشمگیری بر فرایند حذف ندارد [۱۲]. با توجه به بررسی های انجام گرفته توسط آقای کومار و همکارانشان می توان نتیجه گرفت که دانسیته جریان اثر چشمگیری بر فرایند حذف کلی آرسنیک ندارد؛ اما ممکن است دانسیته جریانی وجود داشته باشد که واقعاً کارایی تصفیه را تحت تأثیر قرار می دهد. نتیجه گیری بالا مزیت استفاده از دانسیته جریان بالا را برای کاهش زمان نگهداری آب نفی نمی کند [۱۲].



شکل ۵- اثر دانسیته جریان بر حذف آرسنیک (●) غلظت کلی آرسنیک ( $1.53 \text{ mAcm}^{-2}$ )، (○) غلظت  $\text{As(V)}$  ( $1.53 \text{ mAcm}^{-2}$ )، (■) غلظت کلی آرسنیک ( $0.65 \text{ mAcm}^{-2}$ )، (◻) غلظت  $\text{As(V)}$  ( $0.65 \text{ mAcm}^{-2}$ )



### ۳-۵- اثر مقدار منعقدکننده

گزارش شده است که حذف آرسنیک با افزایش مقدار منعقدکننده آهن در انعقاد شیمیایی، افزایش می‌یابد [۱۱]. طبق قانون فارادی، میزان بار عبوری از محلول مستقیماً با مقدار آهن حل شده متناسب است. این دلیل بر این است که حذف آرسنیک به وسیله انعقاد الکتریکی ممکن است به وسیله تشکیل کمپلکس‌های آرسنیک - هیدروکسیدهای آهن تحت تأثیر قرار گیرد [۱۱]. بطوری که از جدول (۲) مشاهده می‌شود با افزایش مقدار ماده منعقدکننده راندمان حذف افزایش می‌یابد. دلیل این امر تشکیل هر چه بیشتر عوامل منعقدکننده می‌باشد [۱۳، ۱۴].

### ۶- مکانیسم حذف آرسنیک طی فرایند انعقاد الکتریکی

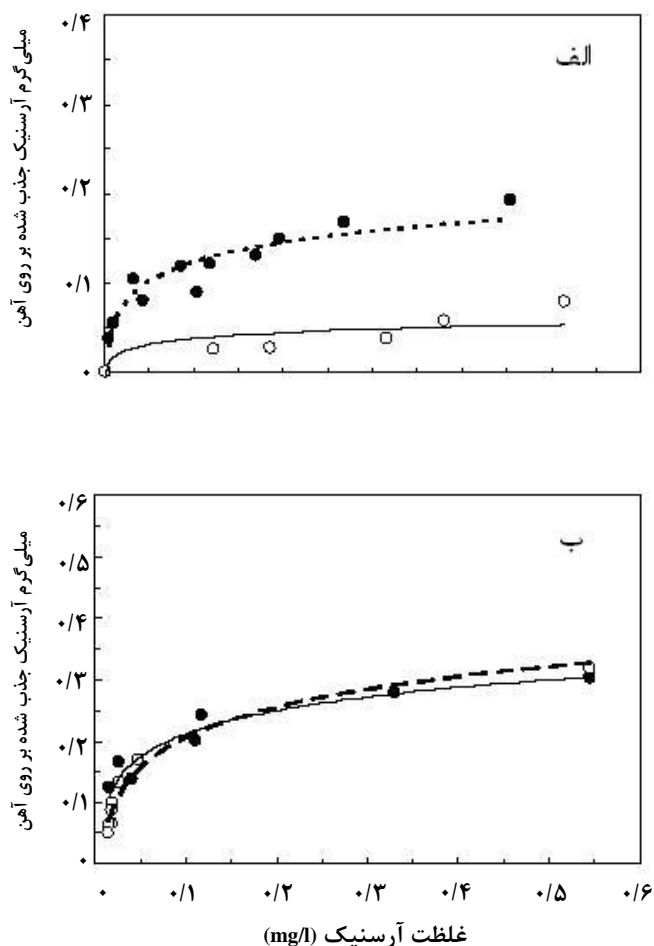
از آنجایی که As(III) تحرک بیشتری از As(V) داشته و سمی‌تر می‌باشد، بنابراین تبدیل As(III) به As(V) یک مزیت به حساب می‌آید. همچنین به علت حذف ضعیف‌تر As(III) از آب به توسط روش‌های متداول، اکسایش As(III) به As(V) به عنوان یک مرحله پیش تصفیه توصیه می‌شود و در ادامه As(V) حذف می‌گردد. اما به

نظر می‌رسد که در فرایند انعقاد الکتریکی، اکسایش As(III) به As(V) اتفاق می‌افتد و این عمل را می‌توان از افزایش غلظت As(V) با گذشت زمان (در ابتدای آزمایش) مشاهده کرد. همان تغییر، همچنین به وسیله ظرفیت بالاتر جذب شدگی<sup>۱</sup> حاصل شده برای As(III) در فرایند انعقاد الکتریکی توجیه می‌شود (شکل ۶). غلظت As(V) در ابتدای آزمایش افزایش می‌یابد و بعد از آن بتدریج کاهش می‌یابد و در نهایت، غلظت کلی آرسنیک کاهش می‌یابد. این کاهش در غلظت‌های As(III) و As(V) ممکن است به علت جذب آنها بر روی هیدروکسیدهای آهن تازه تشکیل شده در واکنشگاه باشد. آزمایش انعقاد الکتریکی با آب بدون آرسنیک نیز تکرار و هیدروکسید آهن III تولید شده بود، جهت حذف As(III) آزمایش مورد استفاده قرار گرفت. نتایج این عمل نشان دادند که حذف As(III) به وسیله هیدروکسیدهای فلزی خیلی کمتر می‌باشد. از این رو، به نظر می‌رسد که مکانیسم حذف As(III) شامل اکسایش آن به As(V) و سپس جذب آن بر روی هیدروکسیدهای آهن III می‌باشد.

جدول ۲- تأثیر مقدار منعقدکننده آهن در حذف آرسنیک طی فرایند انعقاد الکتریکی [۱]

مقدار منعقدکننده آهن ( $\text{mg l}^{-1}$ )					نوع آرسنیک	pH
۴/۳۸	۰/۱۷	۳/۱۰	۳/۴	۸/۱		
حذف آرسنیک (%)						
۹۹	۹۵	۸۶	۵۴	۱۴	As(III)	۶
۹۹	۹۸	۹۵	۴۴	۲۱	As(V)	
۹۹	۹۵	۹۰	۵۲	۱۰	As(III)	۷
۹۹	۹۹	۹۰	۵۶	۳۵	As(V)	
۹۹	۹۰	۷۴	۵۱	۱۱	As(III)	۸

1. Sorptive



شکل ۶- ایزوترم‌های جذب به دست آمده برای الف)  $As(III)$  و ب)  $As(V)$ ، انعقاد الکتریکی، (●) انعقاد شیمیایی [۱]

## ۷- نتیجه‌گیری

- ۱) میزان حذف آرسنیک با الکترودهایی از جنس‌های مختلف به ترتیب: آهن < آلومینیوم می‌باشد.
- ۲) فرایند انعقاد الکتریکی قادر به حذف آرسنیک از آب تا بیش از ۹۹٪ می‌باشد.
- ۳) استفاده از تزریق هوا موجب افزایش کارایی فرایند، کاهش زمان ماند و کاهش هزینه‌ها می‌شود.
- ۴) مکانیسم حذف  $As(III)$  از آب، شامل تبدیل اولیه آن به  $As(V)$  و سپس جذب  $As(V)$  بر روی هیدروکسیدهای آهن III می‌باشد.

## تقدیر و تشکر

از آقایان سید حبیب زمزمی، داود حسن‌پور، اکبر صمدی قره‌بابا، روح‌اله مهدی‌نواز اقدم، محمدحسین رسولی‌فرد، نادر جعفرزاده، رامین زاد غفاری، مهدی چیت‌ساز و خانم‌ها پروین علیزاده و طاهره مقدم رنجبران کمال تقدیر و تشکر را داریم.

## مراجع

- [1] Kumar P.R., Chaudhari S., Khilar K.C., and Mahajan S.P., "Removal of Arsenic from water by Electrocoagulation", *Chemosphere*, 55, 1245-1252, (2004).
- [2] Krishna, B., Chadraseran, K., Karunasagar, D., and Arunachalam, J., "A combined treatment approach using Fenton's reagent and zero-valent iron for the removal of arsenic from drinking water", *J. Hazardous Materials B* 84, 229-240, (2001).

- [3] Leupin O. X., "Arsenic Removal at the Household Level", PhD Thesis, Swiss Federal Institute of Technology ZURICH, Zurich, *Diss, ETH No. 15783*, (2004).
- [4] Balasubramanian N., and Madhavan K., "Arsenic Removal from Industrial Effluent through Electrocoagulation", *Chem. Eng. Technol.* 24, 519-521, (2001).
- [5] Parga J. R., Cocke D. L., Valenzuela J. L., Gomes J. A., Kesmez M., Irwin G., Moreno H., and Weir M., "Arsenic removal via electrocoagulation from heavy metal contaminated groundwater in La Comarca Lagunera Mexico", *Journal of Hazardous Materials*, 124, 247-254, (2005).
- [6] Jay J.A., Blute N.K., Hemond H.F. and Durant J.L., "Electrocoagulation (EC): science and applications", *Water Res.*, 38, 1155-1158, (2004).
- [7] Kumar R. A., Suresh M.S., and Nagaraju J., "GaAs/Ge solar cell AC parameters under illumination", *Solar Energy*, 76, 417-421, (2004).
- [8] Woytowich R. A., Dalrymple C.W., and Britton M.G., "Electrocoagulation (CURE) Treatment of Ship Bilgewater for the US Coast Guard in Alaska", *Marine Technology Society Journal*, 27, 62-67, (1993).
- [9] Holt P. K., Barton G. W. and Mitchell C. A., "The future for electrocoagulation as a localized water treatment technology", *Chemosphere*, 59, 355-367, (2004).
- [10] Ganjali Khosrowshahi M., Zamzami S. H., Samadi Ghara-Baba A., Ghaffari R. Z., and Mehdinavaz R., "Evaluation of arsenic removal from contaminated water by electrocoagulation process", *10<sup>th</sup> Iranian National Chemical Engineering Conference*, Sistan & Baluchestan University, Zahedan, Iran (In Persian), (2005).
- [11] Pouet, M.T. and Grasmick, A., "Urban wastewater treatment by electrocoagulation and flotation", *Water Sci. Technol.* 31, 275-283, (1995).
- [12] Chen, X., Chen, G., and Po, L.Y., "Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation", *Sep. Purif. Technol.* 19, 65-76, (2000).
- [13] Daneshvar, N., Khataee, A.R., Amani Ghadim, A. R., Rasoulifard, M., "Decolorization of C.I. Acid Yellow 23 solution by electrocoagulation process: Investigation of operational parameters and evaluation of specific electrical energy consumption (SEEC)", *Journal of Hazardous Materials*, 148, 566-572, (2007).
- [14] Daneshvar, N., Khataee, A.R., Djafarzadeh, N., "The use of artificial neural networks (ANN) for modeling of decolorization of textile dye solution containing C. I. Basic Yellow 28 by electrocoagulation process", *Journal of Hazardous Materials*, 137, 1788-1795, (2006).