

حذف نیترات از آب با روش انعقاد الکتریکی

مهتاب مرادی^{۱*}، تیمور امانی^۲

۱- کارشناس ارشد مهندسی شیمی، دانشگاه کردستان، دانشکده مهندسی، گروه مهندسی شیمی

۲- استادیار مهندسی شیمی دانشگاه کردستان، دانشکده مهندسی، گروه مهندسی شیمی

تاریخ دریافت: ۹۶/۰۵/۱۶ تاریخ پذیرش: ۹۶/۱۱/۲۸

پیام‌نگار: mahtabmoradi.eng@gmail.com

چکیده

در این تحقیق حذف نیترات از منابع آبی با بررسی جامعی از عوامل موثر بر فرایند انعقاد الکتریکی، از جمله ولتاژ، زمان الکترولیز، فاصله بین الکترودها، غلظت اولیه نیترات، و pH محلول بررسی شد. در این تحقیق از دو فلز فولاد ضد زنگ به عنوان آنود و آهن به عنوان کاتد استفاده شد. نتایج به دست آمده از این تحقیق نشان دادند که به طور کلی با افزایش ولتاژ و کاهش متغیرهایی از جمله غلظت اولیه نیترات و فاصله بین الکترودها می‌توان به درصد چشمگیری از حذف نیترات دست یافت. همچنین حداکثر بازده حذف نیترات در شرایط عملیاتی زمان الکترولیز: ۱۸۰ دقیقه، فاصله بین الکترودها: ۴ سانتی‌متر، ولتاژ: ۲۵ ولت، غلظت اولیه نیترات: ۱۵۰ میلی‌گرم بر لیتر و pH محلول: ۸ برای آنود فولاد ضد زنگ، ۸۸ درصد به دست آمد.

کلیدواژه‌ها: حذف نیترات، انعقاد الکتریکی، فولاد ضد زنگ، منابع آبی.

۱. مقدمه

۲۰۱۲ حدود ۷۸۰ میلیون نفر از مردم جهان از دسترسی به منابع آب آشامیدنی سالم محروم بوده‌اند [۱]. از آنجا که مصرف آب‌های آلوده به نیترات موجب ابتلا به بیماری‌هایی از جمله متهموگلوبینمی^۱، سرطان و همچنین مرگ و میر سالانه ۳/۴ میلیون نفر در کشورهای در حال توسعه می‌شود [۲]، بنابراین، حفاظت از کیفیت این منابع برای حفظ بهداشت و سلامت آدمی امری بسیار مهم به‌شمار می‌آید.

روش‌های متفاوتی برای کاهش نیترات آب آشامیدنی در دسترس است که برخی از آن‌ها در مقیاس بزرگ عملیاتی نیستند. از جمله روش‌هایی که برای خالص‌سازی و حذف آلاینده‌هایی چون نیترات از منابع آبی به کار می‌روند، می‌توان به تبادل یونی^۲، اسمز معکوس^۳ و

در سال‌های اخیر مصرف بیش از حد و به دور از قاعده کودهای نیترات برای افزایش بازدهی محصولات کشاورزی و نیز دفع نادرست فاضلاب‌ها از طریق چاه‌های جذبی باعث نفوذ نیترات در خاک شده و به دلیل این که لایه‌های سطحی خاک قادر به نگهداری نیترات نیستند، لاجرم مقدار زیادی از آن به آب‌های زیرزمینی راه پیدا می‌کند که این امر به افزایش غلظت نیترات در آب‌های زیرزمینی منجر شده است. این درحالی است که هنوز در بسیاری از نقاط جهان آب‌های زیرزمینی را به عنوان منبع اصلی آب آشامیدنی مصرف می‌کنند. بر اساس گزارش سازمان بهداشت جهانی، در سال

* سندیج، دانشگاه کردستان، دانشکده مهندسی، گروه مهندسی شیمی
با توجه به درگذشت جناب آقای دکتر تیمور امانی، خانم مرادی دانشجوی ایشان،
عهده‌دار مکاتبات هستند.

1. Methemoglobinemia
2. Ion Exchange
3. Reverse Osmosis

مفهوم تصفیه الکتروشیمیایی برای خالص‌سازی آب با به کارگیری الکترودهای فلزی، برای اولین بار در سال ۱۸۸۹ در انگلستان پیشنهاد شد و در پی آن در سال ۱۹۰۹ در امریکا مقاله‌ای در مورد خالص‌سازی آب به کمک الکترولیز با الکترودهای آهن و آلومینیم ارائه شد. در این گزارش بیان شد که لخته‌های تولید شده بر اثر الکترولیز به سرعت ته‌نشین می‌شوند و آب آشامیدنی را تصفیه می‌کنند [۱۲]. همچنین، در سال ۱۹۹۶ در تحقیقاتی که توسط لین و وو^۳ به منظور حذف نیتریت و آمونیاک از محلول آبی با فرایند انعقاد الکتریکی صورت گرفت، از آندی از جنس گرافیت و کاتدی از جنس تیتانیوم سود جستند. بنابر نتایجی که به دست آوردند، مدت زمان‌های مختلف الکترولیز مهمترین عامل برای حذف نیترات و آمونیاک از محلول است و نیز مشاهده شد که اثر pH نسبت به عوامل ولتاژ و شدت جریان ورودی دارای اهمیت کمتری است [۱۳]. در تحقیقات دیگری که امام‌جمعه^۴ و سیواکومار^۵ در سال ۲۰۰۵ به منظور حذف نیترات با استفاده از روش انعقاد الکتریکی انجام دادند، مشاهده کردند که بازده حذف نیترات به عواملی چون مدت زمان الکترولیز و چگالی جریان وابسته است و در مدت زمان کوتاه و چگالی جریان کم بازده حذف نیترات کم است [۱۴]. در سال ۲۰۱۱ میلادی نیز ملکوتیان و همکاران با بررسی عواملی چون ولتاژ، pH محلول و زمان الکترولیز نشان دادند که انعقاد الکتریکی فرایندی کارآمد در کاهش غلظت نیترات تا حد مجاز تعیین شده از جانب سازمان بهداشت جهانی است [۱۵]. اما با وجود این مطالعات گسترده، اثر برخی از عوامل تأثیرگذار بر فرایند انعقاد الکتریکی، مانند غلظت اولیه نیترات، و فاصله بین الکترودها به ندرت بررسی و ارزیابی شده‌اند. بررسی عوامل تأثیرگذار، تنها در بازه‌های محدودی از اعداد صورت گرفته است که این امر امکان رسیدن به مقادیر بهینه قابل اطمینان را دشوار می‌کند. از این رو، در این تحقیق ضمن مطالعه جامع و کامل تمام عوامل موثر بر فرایند انعقاد الکتریکی از جمله ولتاژ، مدت زمان الکترولیز، فاصله بین الکترودها، غلظت اولیه نیترات و pH محلول در بازه گسترده‌ای از اعداد، به منظور بررسی اثر هوادهی بر بازده حذف نیترات از روشی جدید در فرایند انعقاد الکتریکی بهره گرفتند که تاکنون در هیچ‌یک از مطالعات پیشین گزارش نشده است.

نیترات‌زدایی زیستی^۱ اشاره کرد [۳]. روش‌های تبادل یونی و اسمز معکوس با وجود بازدهی مناسب در حذف نیترات از منابع آبی، به دلیل تولید آلودگی‌های ثانویه که هزینه‌های دفع را افزایش می‌دهند، محدودیت عملیاتی دارند. به علاوه، اسمز معکوس به فشار عملیاتی نیاز دارد که بر هزینه انجام این روش می‌افزاید [۴-۵]. فرایند حذف زیستی به دلیل بازده بالا در حذف نیترات، عدم تولید آلودگی ثانویه و سازگاری با محیط زیست نیز یکی از روشهای تصفیه درخور توجه است. اما این فرایند بسیار کند و پرهزینه است و نیاز به تعمیر و نگهداری گسترده دارد. همچنین، این فرایند به دما، pH و حضور ترکیبات سمی بسیار حساس است و در اکثر موارد فقط برای تصفیه منابع آبی با غلظت بالای نیترات از آن بهره می‌گیرند [۶].

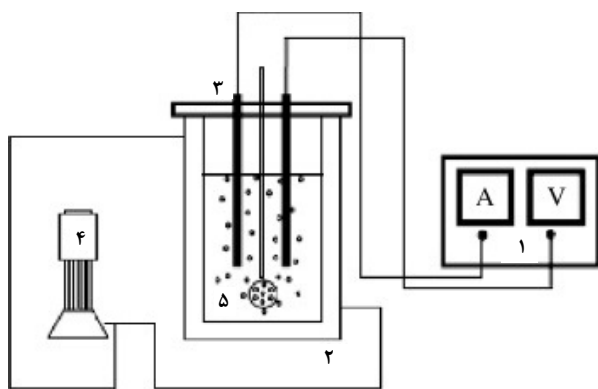
از میان فرایندهای فیزیکی و شیمیایی، فرایند انعقاد الکتریکی^۲ با بر خورداری از مزایایی چون اقتصادی بودن، قابلیت سازگاری بهتر با محیط زیست، تولید آب همراه جامدات محلول کمتر در مقایسه با فرایندهای شیمیایی، و حذف کوچکترین ذرات کلوییدی، کاربرد آسان، مصرف کمتر مواد شیمیایی و نیاز به تجهیزات ساده از جمله اقتصادی‌ترین فرایندهای فیزیکی و شیمیایی به شمار می‌رود [۷-۸]. انعقاد الکتریکی عبارت است از روندی برای ناپایدار کردن امولسیون یا آلاینده حل‌شده در یک محیط آبی، از طریق برقراری جریان الکتریکی [۹]. در فرایند انعقاد الکتریکی تولید مواد منعقدکننده با برقراری پتانسیل الکتریکی بین صفحات فلزی و تجزیه الکتریکی الکترودهایی که به عنوان کاتد و آند عمل می‌کنند، صورت می‌گیرد [۱۰]. برهم‌کنش مواد منعقدکننده تولید شده و آلاینده‌ها پیچیده‌ترین قسمت در فرایند انعقاد الکتریکی است. در این روش، کاتیون‌های فلزی تولید شده در آند، یون‌ها و آلاینده‌های موجود در محلول را جذب می‌کند و با خنثی‌سازی بار الکتریکی آنها توده‌هایی از به هم پیوستن این ذرات تشکیل می‌شود که این توده‌ها از طریق گاز هیدروژن تولید شده در کاتد، به سطح منتقل و یا به علت سنگینی ته‌نشین و حذف خواهند شد [۱۱]. طی سال‌های اخیر، تحقیقات گسترده‌ای در زمینه حذف نیترات از منابع آبی با روش انعقاد الکتریکی صورت گرفته است که در ادامه به ذکر برخی از آنها می‌پردازیم.

3. Wu
4. Emamjomeh
5. Sivakumar

1. Biological Denitrification
2. Electrocoagulation

۲. مواد و روش‌ها

۲-۱ مشخصات راکتور انعقاد الکتریکی



شکل ۱. شمایی از راکتور انعقاد الکتریکی: (۱) منبع تغذیه جریان مستقیم، (۲) محفظه راکتور، (۳) صفحات آند و کاتد (۴) پمپ هوا، (۵) سنگ هوا.

۲۴۰ دقیقه؛ فاصله الکترودها ۱ تا ۱۰ سانتی‌متر؛ و pH محلول ۵ تا ۱۱ به کار گرفته شد. طراحی آزمایش‌ها در قالب نرم افزار DX-7^۲ انجام شد که نتایج این طراحی در جدول (۱) درج شده‌اند. تعداد آزمایش‌های طراحی شده نیز با استفاده از روش طراحی ترکیب مرکزی^۳ و بر اساس رابطه $N=2^k + 2k + c_p$ به دست آمد که در آن N تعداد آزمایش‌های طراحی شده، k تعداد پارامترهای عملیاتی و c_p تکرار نقطه مرکزی‌اند. در این تحقیق با انتخاب پنج پارامتر عملیاتی و شش نقطه مرکزی در مجموع ۴۸ آزمایش طراحی و انجام شد.

۲-۳ روند آنالیز

غلظت نیترات بعد از هر آزمایش با استفاده از روش‌های استاندارد و به کمک دستگاه طیف-نورسنج اندازه‌گیری شد. برای انجام این کار محلول اسید و محلول استاندارد برای ترسیم منحنی مدرج‌سازی تهیه شد. برای تهیه محلول استاندارد مقدار ۰/۷۲۸۱ گرم سدیم (نیترات $NaNO_3$) را پس از خشک کردن در دمای ۱۰۵ درجه سلسیوس و به مدت ۲۴ ساعت، در یک بالن یک لیتری می‌ریزیم و با آب مقطر به حجم می‌رسانیم تا محلولی با غلظت ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر نیترات به دست آید و در نهایت سایر محلول‌های استاندارد را با رقیق‌سازی این محلول به دست می‌آوریم. به منظور اندازه‌گیری غلظت نیترات بعد از هر آزمایش، مقدار

راکتوری که در این تحقیق به کار گرفته شد، راکتور مکعبی شکلی از جنس پلکسی‌گلاس شفاف به ابعاد $17 \times 17 \times 21$ سانتی‌متر بود. در داخل این مکعب، دستگاه الکترولیز قرار داشت که دارای دو الکتروده از جنس فولاد ضد زنگ ۳۱۴ و آهن بود که این الکترودها به طول ۱۳ سانتی‌متر و عرض ۱۳ سانتی‌متر و ضخامت ۲ میلی‌متر ساخته شدند که به فاصله‌های مختلف و به صورت موازی در هر آزمایش به عنوان کاتد (آهن) و فولاد ضدزنگ (آند) به کار رفتند. این الکترودها در هنگام انجام عملیات الکترولیز به واسطهٔ سیم‌های گیره‌دار به دو قطب منبع انرژی جریان مستقیم متصل شدند.

این منبع انرژی از توانایی تأمین ولتاژ تا ۳۰ ولت و شدت جریان تا ۵ آمپر برخوردار بود و میزان ولتاژ در هر آزمایش را این دستگاه تنظیم می‌کرد. به منظور هوادهی یکنواخت در محلول، یک عدد سنگ هوای کره‌ای شکل در مرکز راکتور تعبیه شد، که این هوادهی توسط تلمبهٔ هوا با قابلیت هوادهی حداکثر ۵/۵ لیتر بر دقیقه صورت می‌گرفت. این هوادهی همزمان، باعث تلاطم و اختلاط کامل محلول می‌شود که این عمل از تجمع توده‌های تشکیل شده در خلال فرایند در فضای بین صفحات جلوگیری می‌کند، که افزایش مقاومت الکتریکی محلول و کاهش بازده حذف را در پی خواهد داشت. با توجه به ناپیوسته بودن فرایند در این تحقیق، در هر آزمایش ۴ لیتر از محلول سدیم نیترات ($NaNO_3$)، با غلظت‌های متفاوت نیترات (NO_3^-)، بر حسب میلی‌گرم بر لیتر و حل شده در ۱ لیتر آب مقطر هم تهیه شده و داخل راکتور قرار داده شد. طرح نموداری راکتور انعقاد الکتریکی را در شکل (۱) مشاهده می‌کنیم.

۲-۲ روند آزمایش

در این تحقیق برای تعیین برهم‌کنش متغیرها و نیز تعیین نقطهٔ بهینهٔ عملکرد فرایند، از روش سطح پاسخ^۱ استفاده شد، زیرا این روش تعداد آزمایش‌هایی را که برای محاسبه متغیرهای چندگانه و تعیین برهم‌کنش آن‌ها لازم است، کاهش داده و از این طریق به صرفه‌جویی در هزینه و وقت منجر می‌شود [۱۴]. در این تحقیق، پنج سطح از متغیرها در بازه‌های ولتاژی ۵ تا ۳۰ ولت؛ غلظت اولیه نیترات ۱۰۰ تا ۳۰۰ میلی‌گرم بر لیتر؛ مدت زمان الکترولیز ۱۰ تا

2. Design Expert
3. Central Composite Design (CCD)

1. Respond Surface Methodology (RSM)

اسید کلریدریک ۱ نرمال اضافه شد و در نهایت نتیجه در طول موج ۲۲۰ نانومتر به کمک دستگاه طیف- نورسنج خوانده و با ترسیم منحنی مدرج سازی، غلظت نهایی نیترات در هر یک از نمونه‌های مجهول به دست آمد [۱۶].

۵ میلی‌لیتر نمونه، از فضای بین الکترودها برداشته شد و پس از قرار دادن در سانتریفیوژ در دور ۱۰۰۰۰ rpm و به مدت ۵ دقیقه، نمونه را تا حجم ۵۰ میلی‌لیتر به کمک آب مقطر رقیق، و برای جلوگیری از تداخل اثر هیدروکسیدها به نمونه ۱ میلی‌لیتر

جدول ۱. شرایط ورودی آزمایش‌های انعقاد الکتریکی و نتایج آنها برای آند فولاد ضدزنگ و کاتد آهن.

پاسخ	عوامل عملیاتی					شماره آزمایش
	درصد حذف نیترات	pH	ولتاژ (ولت)	مدت زمان الکترولیز (دقیقه)	فاصله (سانتی‌متر)	
۸۴	۸/۱	۵	۱۲۵	۶	۲۰۱	۱
۸۷	۶/۸	۲۳	۷۷	۴	۱۵۹	۲
۸۷	۹/۴	۲۳	۱۷۳	۴	۱۵۹	۳
۸۳	۹/۴	۱۲	۱۷۳	۸	۲۴۳	۴
۸۶	۶/۸	۲۳	۱۷۳	۸	۲۴۳	۵
۸۶	۹/۴	۲۳	۱۷۳	۸	۱۵۹	۶
۸۷	۹/۴	۲۳	۱۷۳	۴	۲۴۳	۷
۸۴	۹/۴	۱۲	۷۷	۴	۲۴۳	۸
۸۴	۹/۴	۲۳	۷۷	۸	۱۵۹	۹
۸۳	۹/۴	۱۲	۷۷	۸	۲۴۳	۱۰
۸۴	۱۱/۲	۱۷	۱۲۵	۶	۲۰۱	۱۱
۸۴	۹/۴	۲۳	۷۷	۴	۲۴۳	۱۲
۸۸	۶/۸	۲۳	۱۷۳	۴	۱۵۹	۱۳
۸۳	۶/۸	۱۲	۷۷	۸	۱۵۹	۱۴
۸۴	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۶	۲۰۱	۱۵
۸۳	۹/۴	۲۳	۷۷	۸	۲۴۳	۱۶
۸۶	۹/۴	۲۳	۷۷	۴	۱۵۹	۱۷
۸۵	۹/۴	۲۳	۱۷۳	۸	۲۴۳	۱۸
۸۴	۶/۸	۲۳	۷۷	۸	۲۴۳	۱۹
۸۳	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۱۰	۲۰۱	۲۰
۸۶	۶/۸	۱۲	۱۷۳	۴	۱۵۹	۲۱
۸۴	۶/۸	۱۲	۱۷۳	۸	۲۴۳	۲۲
۸۳	۹/۴	۱۲	۷۷	۸	۱۵۹	۲۳
۸۵	۸/۱	۱۷	۲۴۰	۶	۲۰۱	۲۴
۸۴	۹/۴	۱۲	۷۷	۴	۱۵۹	۲۵
۸۴	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۶	۱۰۱	۲۶

(ادامه) جدول ۱. شرایط ورودی آزمایش‌های انعقاد الکتریکی و نتایج آنها برای آند فولاد ضدزنگ و کاتد آهن.

پاسخ	عوامل عملیاتی					شماره آزمایش
	درصد حذف نیترات	pH	ولتاژ (ولت)	مدت زمان الکترولیز (دقیقه)	فاصله (سانتی‌متر)	
۸۵	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۱	۲۰۱	۲۷
۸۵	۶/۸	۱۲	۱۷۳	۸	۱۵۹	۲۸
۸۶	۹/۴	۱۲	۱۷۳	۴	۱۵۹	۲۹
۸۴	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۶	۲۰۱	۳۰
۸۵	۸/۱	۳۰	۱۲۵	۶	۲۰۱	۳۱
۸۷	۶/۸	۲۳	۱۷۳	۴	۲۴۳	۳۵
۸۴	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۶	۲۰۱	۳۶
۸۳	۸/۱	۱۷	۱۰	۶	۲۰۱	۳۷
۸۳	۶/۸	۱۲	۷۷	۸	۲۴۳	۳۸
۸۵	۵	۱۷	۱۲۵	۶	۲۰۱	۳۹
۸۴	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۶	۲۰۱	۴۰
۸۴	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۶	۳۰۱	۴۱
۸۵	۶/۸	۲۳	۷۷	۴	۲۴۳	۴۲
۸۴	۹/۴	۱۲	۱۷۳	۴	۲۴۳	۴۳
۸۷	۶/۸	۲۳	۱۷۳	۸	۱۵۹	۴۴
۸۴	۶/۸	۱۲	۷۷	۴	۲۴۳	۴۵
۸۴	۶/۸	۱۲	۱۷۳	۴	۲۴۳	۴۶
۸۴	۹/۴	۱۲	۱۷۳	۸	۱۵۹	۴۷
۸۴	۸/۱	۱۷	۱۲۵	۶	۲۰۱	۴۸

صفحات فلزی و نیز تولید یون‌های منعقدکننده را افزایش می‌دهد که به دنبال آن آلاینده‌های بیشتری با یون‌های تولید شده توده‌های سنگین تشکیل و ته‌نشین می‌شوند [۸]. با افزایش مدت زمان الکترولیز نیز، الکترودها مدت زمان بیشتری برای تولید یون‌های فلزی و تشکیل توده‌ها در اختیار خواهند داشت که در نهایت منجر به حذف درصد بالایی از نیترات خواهد شد. در تحقیقاتی که در سال ۲۰۱۰ میلادی توسط کومار^۱ و همکاران صورت گرفت، مشاهده شد که با افزایش زمان در ولتاژهای بالا، می‌توان به درصد حذف بیشتر نیترات دست یافت و نتایج گزارش شده حاکی از حذف ۸۵ درصد نیترات در ولتاژ ۲۵ ولت و مدت زمان ۱۸۰ دقیقه بود [۱۷]، اما نتایج پژوهش حاضر حاکی از حذف ۸۸ درصد نیترات در شرایط

۳. نتایج و بحث

۳-۱-۳ برهم‌کنش و اثر ولتاژ و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات

در شکل (۲) تأثیر دو متغیر ولتاژ و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات در شرایط عملیاتی ثابت pH محلول معادل ۸، غلظت اولیه نیترات ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر، فاصله بین الکترودها ۵ سانتی‌متر و با تغییر دو پارامتر ولتاژ و مدت‌زمان را مشاهده می‌کنیم، که حاکی از آن است که به طور کلی با افزایش ولتاژ از ۵ تا ۳۰ ولت و مدت زمان الکترولیز از ۱۰ تا ۲۴۰ دقیقه، بازده حذف نیترات از ۸۴ تا ۸۸ درصد افزایش می‌یابد. این نتایج را می‌توان به کمک این نکته توضیح داد که افزایش ولتاژ، سرعت اکسایش

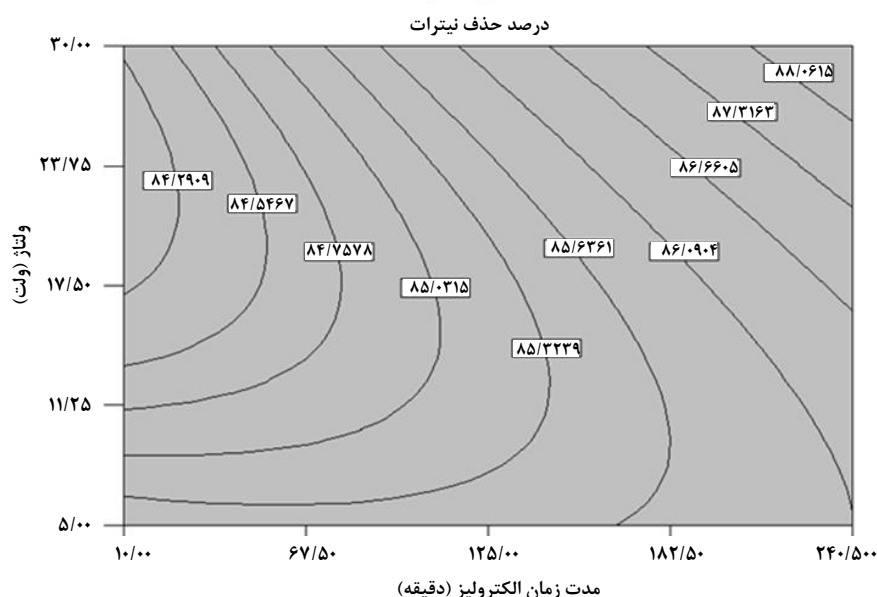
1. Kumar

این واقعیت توضیح داد که با افزایش غلظت نیترات، یون‌های بیشتری بر سطح صفحات فلزی گرد می‌آیند و جذب می‌شوند، که این عامل مانع از اکسایش کامل صفحات و کاهش تولید یون‌های فلزی می‌شود و در پی آن آلاینده‌های کمتری به یون‌های فلزی جذب و در نتیجه حذف می‌شوند. بنابراین، بازده حذف نیز کاهش خواهد یافت. در تحقیقاتی که در سال ۲۰۱۱ میلادی آل-شهرانی^۱ و همکاران انجام دادند، مشاهده شد که با افزایش مدت زمان و در غلظت‌های پایین نیترات، می‌توان به درصد حذف بیشتری از نیترات دست یافت و نتایج گزارش شده حاکی از حذف ۸۵ درصد نیترات در غلظت اولیه ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر نیترات و مدت زمان ۹۰ دقیقه بود [۱۹]. در ادامه، با بررسی دقیق‌تر شکل (۳)، مشاهده می‌شود که به طور کلی برهم‌کنش دو عامل غلظت اولیه نیترات و زمان نسبت به برهم‌کنش ولتاژ و زمان الکترولیز، روند یکنواخت‌تری دارد. نیز مشاهده می‌شود که دامنه تغییرات درصد حذف نیترات (۸۴ تا ۸۷ درصد) با مدت زمان الکترولیز در غلظت ثابت ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر بیشتر از دامنه تغییرات درصد حذف نیترات (۸۵ تا ۸۶ درصد) با غلظت در زمان ۱۸۰ دقیقه است که این امر حاکی از تأثیر بیشتر عامل زمان نسبت به ولتاژ بر بازده حذف است.

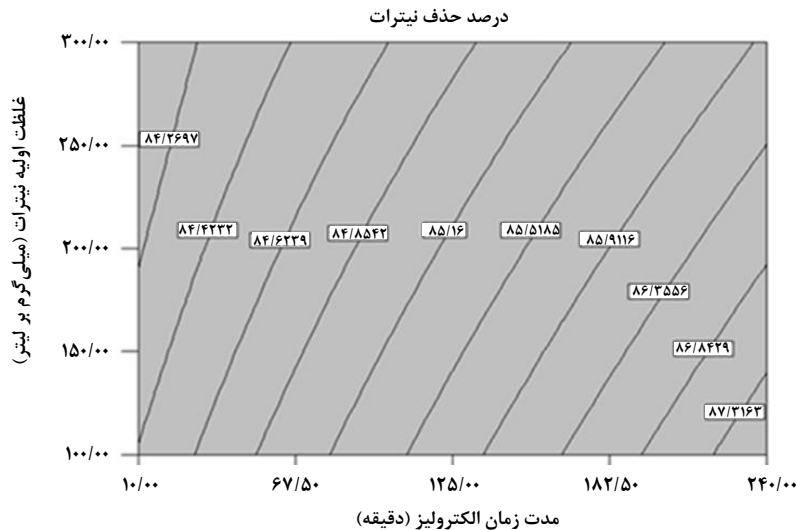
مشابه است. همچنین، در تحقیقاتی که توسط رضوی و همکاران صورت گرفت، ثابت شد که عامل ولتاژ تأثیر چشمگیری بر حذف نیترات از منابع آبی دارد و افزایش آن با روندی یکنواخت منجر به افزایش بازده حذف خواهد شد [۱۸]. در ادامه با بررسی دقیق‌تر شکل (۲) مشاهده می‌شود که دامنه تغییرات درصد حذف نیترات (۸۴ تا ۸۷ درصد) با مدت زمان الکترولیز در ولتاژ ثابت ۲۳ ولت، بیشتر از دامنه تغییرات درصد حذف نیترات (۸۵ تا ۸۶ درصد) با ولتاژ در مدت زمان ۱۲۰ دقیقه است که این امر حاکی از تأثیر بیشتر عامل زمان نسبت به ولتاژ بر بازده حذف است.

۲-۳ برهم‌کنش و اثر غلظت اولیه نیترات و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات

در شکل (۳) تأثیر دو متغیر غلظت اولیه نیترات و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات در شرایط عملیاتی ثابت pH محلول معادل ۸، ولتاژ ۱۷ ولت، فاصله بین الکترودها معادل ۵ سانتی‌متر و با تغییر دو پارامتر غلظت و زمان را مشاهده می‌کنیم، که حاکی از کاهش غلظت اولیه یون‌های نیترات (NO_3^-) از ۳۰۰ تا ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر و افزایش مدت زمان الکترولیز از ۱۰ تا ۲۴۰ دقیقه، بازده حذف نیترات از ۸۴ تا ۸۷ درصد است. این نتایج را می‌توان با



شکل ۲. اثر و برهم‌کنش ولتاژ و زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات.



شکل ۳. اثر و برهم کنش غلظت اولیه نیترات و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات.

مدت زمان و pH محلول را می‌توان تغییر در سازوکار تشکیل توده‌ها عنوان کرد به طوری که در آندی از جنس فولاد ضدزنگ افزایش تولید یون‌های فلزی در ابتدای فرایند افزایش بازده حذف را به همراه خواهد داشت، اما با گذشت زمان و تولید بیشتر یون‌های فلزی سازوکار انتقال یون‌ها در طول فرایند تغییر می‌کند که به تغییر روند برهم‌کنش pH و زمان بر بازده حذف منجر خواهد شد.

۳-۴ برهم‌کنش و اثر فاصله بین الکترودها و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات

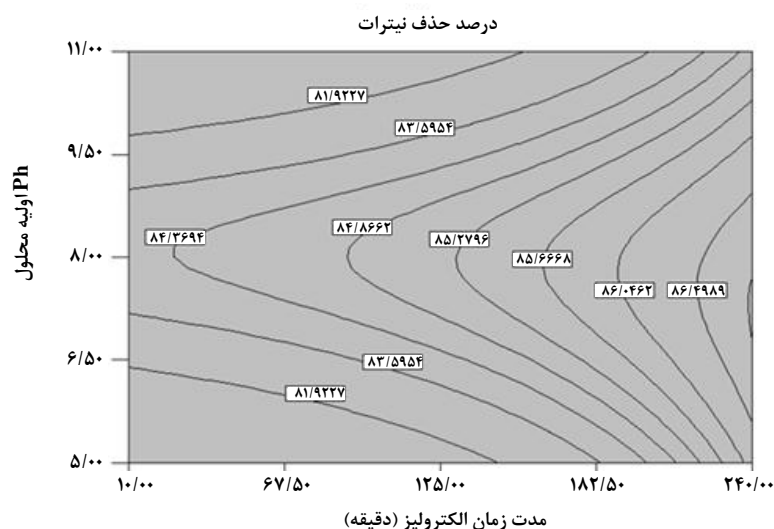
در شکل (۵) اثر دو متغیر فاصله الکترودها و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات در شرایط عملیاتی ثابت pH محلول معادل ۸، ولتاژ ۱۷ ولت، غلظت اولیه نیترات ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر و با تغییر دو پارامتر فاصله و زمان را مشاهده می‌کنیم، که حاکی است با افزایش مدت زمان الکترولیز از ۱۰ تا ۲۴۰ دقیقه و کاهش فاصله الکترودها از ۱۰ تا ۳ سانتی‌متر، بازده حذف نیترات از ۷۸ تا ۹۱ درصد افزایش می‌یابد. زیرا با کاهش فاصله، جریان الکتریکی بیشتری بین صفحات آند و کاتد برقرار می‌شود که این افزایش جریان سرعت اکسایش الکترودهای فلزی، همچنین تولید یون‌های منعقدکننده را افزایش می‌دهد که به دنبال آن یون‌های نیترات بیشتری جذب یون‌های هیدروکسید فلزی می‌شود و با افزایش تشکیل لخته‌ها، بازده حذف افزایش خواهد یافت. اما در شکل (۵)

۳-۳ برهم‌کنش و اثر pH اولیه محلول و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات

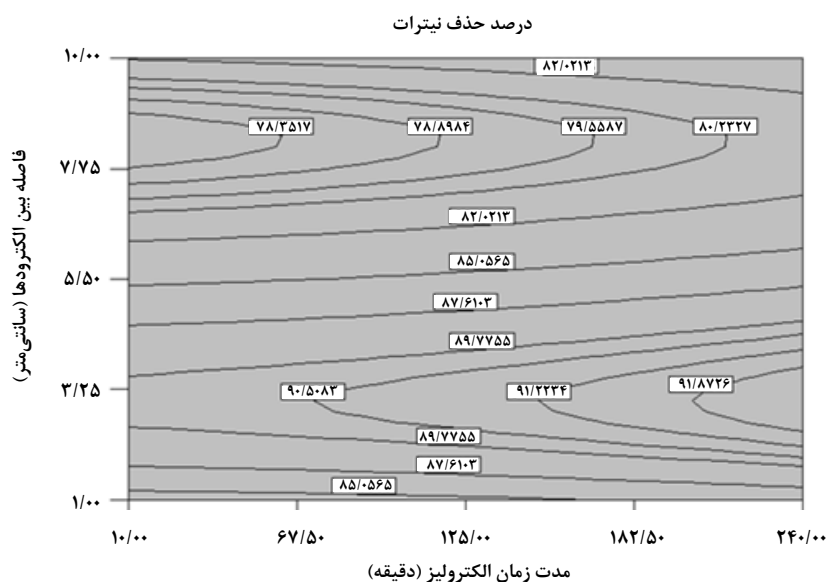
در شکل (۴) اثر دو متغیر pH اولیه محلول و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات در شرایط عملیاتی غلظت اولیه نیترات ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر، ولتاژ ۱۷ ولت، فاصله بین الکترودها ۵ سانتی‌متر و با تغییر دو پارامتر pH و زمان را مشاهده می‌کنیم، که حاکی از آن است که با افزایش مدت زمان الکترولیز از ۱۰ تا ۲۴۰ دقیقه و افزایش pH از ۵ تا ۸ بازده حذف نیترات از ۸۱ تا ۸۶ درصد افزایش می‌یابد. این افزایش می‌تواند به واکنش بین فلزات و یون‌های هیدروکسید موجود در محلول مربوط باشد؛ به این ترتیب که افزایش pH با از بین بردن لایه اکسید فلزی که در pH‌های پایین بر روی الکترودها تشکیل می‌شود، سرعت انحلال الکترودها را افزایش می‌دهد که در پی آن با افزایش تولید یون‌های فلزی، توده‌های بیشتری تشکیل می‌شود و بازده حذف افزایش خواهد یافت [۲۰]. اما در شکل (۴) می‌بینیم که با افزایش بیشتر pH محلول از ۸ تا ۱۱ در مدت زمان ثابت ۲۱۰ دقیقه بازده حذف نیترات از ۸۶ به ۸۳ درصد کاهش می‌یابد. زیرا با افزایش بیشتر pH محلول از ۸ تا ۱۱، فضای بین الکترودها از یون‌های فلزی تولید شده اشباع می‌شود که در این صورت سازوکار انتقال یون‌ها به صورت نفوذ انجام می‌شود و این سازوکار باعث کاهش تشکیل لخته‌ها و کاهش بازده حذف خواهد شد. به طور کلی، دلیل این تغییر روند در برهم‌کنش

انجام شود که این سازوکار سرانجام به کاهش تشکیل لخته‌ها و کاهش مدت بازده حذف خواهد انجامید [۲۱]. همچنین، با مقایسه دو شکل (۴) و (۵)، مشاهده می‌شود که در ابتدای فرایند افزایش زمان الکترولیز همراه با افزایش تولید یون‌های فلزی و توده‌های بیشتر، افزایش بازده حذف پیش می‌آید اما با گذشت زمان و اشباع حجم راکتور از یون‌های فلزی تولید شده و تغییر روند سازوکار یون‌ها، افزایش بیشتر مدت زمان کاهش بازده به دنبال خواهد آمد.

می‌بینیم که با کاهش بیشتر فاصله الکترودها از ۳ تا ۱ سانتی‌متر در مدت زمان ثابت ۱۸۰ دقیقه، بازده حذف نیترات از ۹۱ تا ۸۵ درصد کاهش می‌یابد. این تغییرات ممکن است به نیروی رانش الکتروستاتیکی در فاصله بین الکترودها مربوط باشد، زیرا در یک فاصله مناسب، یون‌های تولید شده فضای کافی برای جابه‌جایی و تشکیل لخته و ته‌نشینی خواهند داشت. اما با کاهش بیشتر فاصله، فضای بین الکترودها از یون‌های فلزی تولید شده اشباع می‌شود و این امر سبب می‌شود سازوکار انتقال یون‌ها به صورت نفوذ



شکل ۴. اثر و برهم‌کنش pH اولیه محلول و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات.



شکل ۵. اثر و برهم‌کنش فاصله بین الکترودها و مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات.

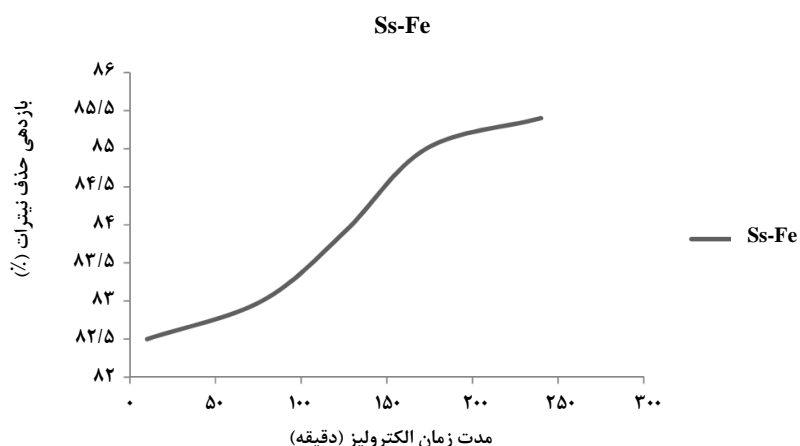
۳-۵ بررسی اثر مدت زمان الکترولیز و فاصله بین الکترودها

بر بازده حذف نیترات

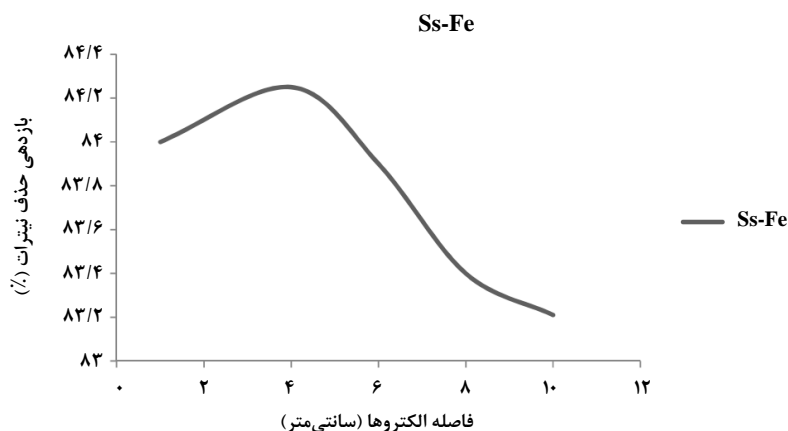
از بررسی و مقایسه شکل‌های (۲) تا (۵) مشاهده می‌شود که دو عامل فاصله بین الکترودها و مدت زمان الکترولیز بیشترین درصد حذف نیترات با فرایند انعقاد الکتریکی را ایجاد می‌کردند. در ادامه تحقیقات اثر دو عامل فاصله و مدت زمان در حذف نیترات جداگانه و کامل آزمایش شد. برای بررسی اثر عامل مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات پنج آزمایش در شرایط ثابت ولتاژ ۱۷ ولت، فاصله بین الکترودها معادل ۵ سانتی‌متر، pH اولیه محلول معادل ۸ و غلظت اولیه نیترات معادل ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر انجام شد که نتایج این پنج آزمایش در شکل (۶) جمع‌بندی شده‌اند. در شکل (۶) که نتایج پنج آزمایش در شرایط یکسان و مدت زمان

متفاوت را نشان می‌دهد، مشاهده می‌شود که با افزایش مدت زمان الکترولیز بازده حذف نیترات افزایش می‌یابد. همچنین، شکل (۶) نشان می‌دهد که سرعت افزایش منحنی بازده حذف نیترات در زمان‌های بیشتر از ۲۵۰ دقیقه تغییرات کمتری دارد. زیرا سرعت اکسایش الکترودها و تولید یون‌های فلزی در ابتدای فرایند بیشتر است و در زمان‌های طولانی‌تر، این روند با سرعت کمتری ادامه می‌یابد.

به منظور بررسی اثر فاصله الکترودها بر بازده حذف نیترات پنج آزمایش در شرایط ثابت ولتاژ ۱۷ ولت، مدت زمان الکترولیز ۱۲۰ دقیقه، pH اولیه محلول ۸ و غلظت اولیه نیترات ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر انجام شد که نتایج این پنج آزمایش را در شکل (۷) مشاهده می‌کنیم.



شکل ۶. اثر مدت زمان الکترولیز بر بازده حذف نیترات.



شکل ۷. اثر فاصله الکترودها بر بازده حذف نیترات.

- [5] Banasiak, L., Schafer, A., "Removal of boron, fluoride and nitrate by electrodialysis in the presence of organic matter". *Journal of Membrane Science*. 334: 101-109 (2009).
- [6] Singh, N. K., Dhar, D. W., "Nitrogen and phosphorous scavenging potential in microalgae.. *Indian Journal of Biotechnology*. 6: 52-56, (2007).
- [7] Massoudinejad, M., Nazari, S., Sarkhosh, M., Ahmadi, E., Yaghoobinejad, R., Mohseni, S., "Efficiency of electrocoagulation / electro otation processes to remove turbidity from effluent of filtration process in Tehranpars", *Water treatment plant J Health*. 8: 121-32, (2017).
- [8] [8] Chen, G. H., "Electrochemical technologies in wastewater treatment". *Separation and Purification Technology*. 38: 11-41, (2004).
- [9] Jiang, J. Q., Graham, N., Andre, C., Kelsall, G. H., Brandon, N., "Laboratory study of electro-coagulation-flotation for water treatment". *Water Research*. 36: 4064-4078, (2002).
- [10] "Mollah, M. Y. A., Morkovsky, P., Gomes, J. A. G., Kesmez, M., Parga J., Cocke, D. L., "Fundamentals present and future perspectives of electrocoagulation". *Journal of Hazardous Materials*. 114: 199-210, (2004).
- [11] Daneshvar, N., Khataee, A. R., Amani, A. R., Rasoulifard, M. H., "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).
- [12] Matteson, M. J., Dobson, R. L., Glenn, R. W., "Electrocoagulation and separation of aqueous suspension of ultrafine particles". *Colloids and surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 104: 101-109, (1995).
- [13] Lin, S. H., Wu, C. L., "Electrochemical removal of nitrite and ammonia for aquaculture". *Water Research*. 30: 715-721, (1996).
- [14] Emamjomeh, M. M., Sivakumar, M., "Review of pollutants removed by electrocoagulation and electrocoagulation/flotation processes". *Journal of Environmental Management*. 90: 1663-1679, (2009).
- [15] Malakootian, M., Yousefi, N., Fatehizadeh, A., "Survey efficiency of electrocoagulation on nitrate removal from aqueous solution". *International Journal of Environmental Science and Technology*. 8: 107-114, (2011).
- [16] APHA. "Standard methods for the examination of water and wastewater. Nitrate determination method (4500-NO₃⁻ B. Ultraviolet spectrophotometric)". 18th ed. American Public Health Association, Washington, DC., (1992).
- [17] Sanjeev, Kumar N., Goel, S., "Factors influencing arsenic and nitrate removal from drinking water in a continuous flow electrocoagulation (EC) process". *Journal of Hazardous Materials*. 173:528-533, (2010).

در شکل (۷) که نتایج پنج آزمایش در شرایط عملیاتی ثابت و در فواصل متفاوت الکترودها را نشان می‌دهد، مشاهده می‌شود که با کاهش فاصله بین الکترودها از ۱۰ تا ۴ سانتی‌متر بازده حذف نیترات افزایش و پس از آن با کاهش فاصله تا ۱ سانتی‌متر بازده حذف کاهش می‌یابد. با مقایسه دو شکل (۵) و (۷)، مشاهده می‌شود که به‌طور کلی با کاهش فاصله بین الکترودها تا حد بهینه، بازده حذف نیترات افزایش می‌یابد و پس از آن به علت تغییر سازوکار انتقال یون‌ها بازده حذف کاهش خواهد یافت.

همچنین، بررسی شکل (۷) نشان می‌دهد که در فواصل ۸ تا ۴ سانتی‌متر منحنی بازده حذف نیترات با شیب بیشتری افزایش می‌یابد. زیرا با کاهش فاصله بین الکترودها جریان الکتریکی بیشتری بین صفحات برقرار می‌شود که این افزایش جریان سرعت اکسایش الکترودهای فلزی، همچنین تولید یون‌های منعقدکننده را افزایش می‌دهد و سرانجام به افزایش بازده حذف منجر خواهد شد.

۴. نتیجه‌گیری کلی

در این تحقیق کارآیی فرایند انعقاد الکتریکی در حذف نیترات از منابع آبی با بررسی پنج عامل تأثیرگذار بر این فرایند شامل ولتاژ، مدت زمان الکترولیز، فاصله بین الکترودها، غلظت اولیه نیترات و pH محلول مطالعه و بررسی شد. نتایج به دست آمده از این تحقیق حاکی‌اند که به‌طور کلی افزایش ولتاژ، کاهش غلظت اولیه نیترات و کاهش فاصله الکترودها به افزایش بازده حذف می‌انجامند. همچنین دو عامل مدت زمان الکترولیز و فاصله بین الکترودها از جمله موثرترین پارامترها در حذف نیترات با روش انعقاد الکتریکی شناخته شدند. سرانجام، با انجام ۴۸ آزمایش با دو فلز فولاد ضدزنگ و آهن در نقش آند و کاتد و در شرایط مختلف عملیاتی، حداکثر بازده حذف نیترات ۸۸ درصد به دست آمد.

مراجع

- [1] WHO. "Progress on sanitation and drinking-water-2014 update". ISBN: 978 92 4 150724 0., (2014).
- [2] Misra, A. K., Singh, V., "A delay mathematical model for the spread and control of water borne diseases". *Journal of Theoretical Biology*. 301: 49-56, (2012).
- [3] Kraft, A., "Electrochemical water disinfection: A short review". *Platinum Metals Review*. 52: 177-85, (2008).
- [4] DeSilva, F. J., "Nitrate Removal by Ion Exchange". *ResinTechnology. Inc.*, (2010).

- [۱۸] رضوی، م.، سعیدی، م.، جباری، ا. "تاثیر شرایط عملیاتی بر کارایی حذف همزمان فسفات، نیترات و COD از پساب رختشوی خانه با استفاده از روش انعقاد الکتریکی با الکتروود آلومینیومی". نشریه محیط شناسی. ۳۸: ۸۴-۷۵ (۹۱).
- [19] El-Shazly, A. H., Al-Zahrani, A. A., Al-Shahrani, S. S., "Improvement of NO₃- Removal from Wastewater by Using Batch Electrocoagulation Unit with Vertical Monopolar Aluminum Electrodes". International Journal of electrochemical science. 6: 4141-4149, (2011).
- [20] Koparal, A. S., "Ogutveren. Removal of Nitrate from Water by Electro reduction and Electrocoagulation", Journal of Hazardous Materials. 89: 83-94, (2002).
- [21] Daneshvar, N. H., Ashassi Sorkhabi, M. B., "Decolorization of dye solution containing Acid Red 14 by electrocoagulation with a comparative study of different electrode connections", Journal of Hazardous Materials. 112: 55-62, (2004).