



Investigation of Interaction of Effecting Factors in Phosphate and Nitrate Removal from Municipal Wastewater by Electrocoagulation Process with RSM Approach

S. Khoshsima, M. Hadavifar*, Gh. Zolfaghari

Environmental science department, Hakim Sabzevari University, Sabzevar, Iran

ABSTRACT: One of the environmental problems of wastewater is the presence of micro and macronutrients, the most important of which is phosphorus and nitrate. Hence, in this study removal of phosphate and nitrate from aqueous solution was conducted using electrocoagulation (EC) processes with Al electrodes. In the present study, an electrocoagulation reactor was used in a laboratory-scale with a volume of approximately 1200 ml equipped with 3 Al-electrode in a size of 5×12 cm² to remove phosphate and nitrate. The effects of operating parameters such as applied voltage, initial pH of the solution, the value of FeCl₂ and reaction times were evaluated. The effect of pH and FeCl₂ parameters in inlet and facultative ponds were also studied. Also, pH changes in the oxidation process were investigated. Finally, it can be said that phosphate was completely eliminated in facultative and outflow ponds, but due to the low initial concentration of phosphate in the outlet, less voltage (10 V), less time (about 3 minutes), low FeCl₂ dosage (0.2 mg/l) and original pH of the solution were applied compared to the facultative pond., 100 % of nitrate in optimum condition (pH=5.5, applied voltage=25 V, FeCl₂=0.65 mg/l, time=11.50 min) in output pond has been removed. In the EC process, the electrocoagulation process using an aluminum electrode, as well as its relatively low cost and simplicity, has a good effect on phosphorus and nitrate removal compared to other methods.

Review History:

Received: 2018-12-02
Revised: 2019-01-16
Accepted: 2019-01-20
Available Online: 2019-02-16

Keywords:

Phosphate removal
Nitrate removal
Municipal wastewater
Electrocoagulation
Response surface methodology

1. INTRODUCTION

The increase of industrial and agricultural activities and discharging wastewater into the surface water receptor sources leads to a decrease in the quality of these resources [1]. The use of water containing nitrate over allowable levels can lead to problems such as blue baby syndrome, methemoglobinemia in children and the incidence of cancer in adults [2]. In recent years, electrocoagulation has been successfully used in wastewater treatment. Asheesh Kumar et al. [3], in their study,

showed that it is possible to remove the various pollutants from combinatory wastewater with the mentioned method. The purpose of this research is to investigate the efficiency of electrocoagulation process to remove phosphate and nitrate as water pollutants from urban wastewater in Sabzevar city.

2. MATERIALS AND METHODS

Electrolysis is carried out in a glass container of 1200 ml volume using three aluminum electrodes with 5×12 cm²

Table 1- Equations for the percent of phosphate and nitrate removal in the effluent

Response	Modified equations or meaningful variables	R ²	adjusted-R ²	Predicted-R ²	Adeq. Precision	Std.Dev	Mean	C.V%
Percentage of Phosphate removal	+99.91+3.06A+2.70B +5.14C -4.84D+1.36AB +1.29AC-2.84AD-5.08BC +4.79BD+4.72CD-6.13A -0.028B ² -2.45C ² +1.73D ²	0.648	0.32	-1.2792	5.845	11.6	94.6	12.27
Percentage of nitrate removal	+97.15 -4.11 A -4.13 B +4.79C+8.56 D - 4.98 AB +3.59AC9.33AD+4.57BC+1.07BD- 0.12CD+0.52B ² +23.66C ² -3.87D ²	0.9242	0.8484	0.3028	11.696	7.59	81.59	9.3

*Corresponding author's email: m.hadavifar@hsu.ac.ir



Copyrights for this article are retained by the author(s) with publishing rights granted to Amirkabir University Press. The content of this article is subject to the terms and conditions of the Creative Commons Attribution 4.0 International (CC-BY-NC 4.0) License. For more information, please visit <https://www.creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/legalcode>.

dimensions connected to the power supply in parallel (with the positive electrode at the center and the negative electrodes at the sides). The effective contact of each electrode with the wastewater and the distance between electrodes were 50 cm² and 4 cm respectively. The variables involved in the experiment and the range of their values are determined by independent tests and introduced to the Design Expert software. According to the data, the software has suggested 30 runs. After the runs, the responses are re-entered into the software and the software performs the statistical analyzes and interactions of the variables. By calculating the percentage of removal for each test at a specified equilibrium time, values were entered into the software to provide statistical analysis and optimization of the observations. Finally, as seen in Table 1, modeling of the variables and modified equations was performed by the software to determine the amount of phosphate and nitrate removal.

3. RESULT AND DISCUSSION

3.1. Effect of pH, contact time, FeCl₂ and voltage on removal of phosphate in the effluent pond using electrocoagulation method

As Fig. 1 shows, the efficiency of removal is increased by increasing the input voltage. In the electrocoagulation method, the best results are obtained to remove nitrate in the

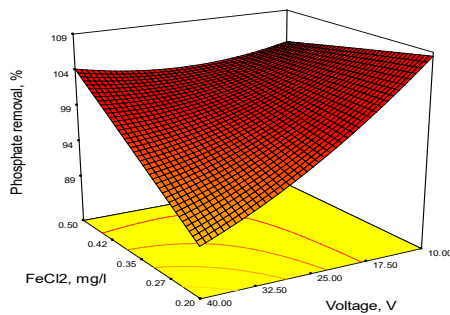
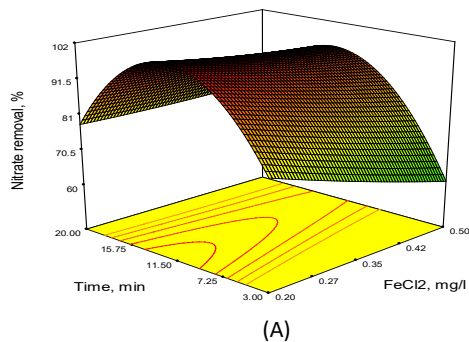


Fig. 1. The effect of the interaction of FeCl₂ and voltage (A) and the interaction of time and voltage (B) in the removal of phosphate from effluent pond



pH range of 5.5, but increasing the pH to a range of 8 (initial pH of the wastewater) reduced the removal rate (figure not shown).

As this can be due to the presence of anionic compounds in the wastewater, which will be more soluble in acidic pH. Anionic compounds transformed into the negative ions in the higher pH values and can be deposited more. By increasing the pH to 10.5, the increase in alkalinity of the medium causes the sediment of Al(OH)₃ to be soluble and the efficiency of removal decreases [2].

3.2. Effect of pH, contact time, FeCl₂ and voltage on removal of nitrate in the effluent pond using electrocoagulation method

According to Fig. 2, the increment of phosphate removal efficiency occurs at higher voltages and reaction times so that the maximum removal efficiency in removing 100% phosphate has been obtained in reaction time of 3 minutes, an input voltage of 10 V, pH of 8 and FeCl₂ of 0.2 mg/l and the maximum removal efficiency has been obtained in reaction time of 11.51 minutes, voltage of 25 V, pH 5.5 and FeCl₂ of 0.65 mg/l for removal of 100% of nitrate.

3.3. Effect of pH and FeCl₂ on phosphate and nitrate removal in an anaerobic and facultative pond by electrocoagulation method

The best removal efficiency in an anaerobic pond for phosphate in pH=5.5, FeCl₂ dosage of 0.5 mg/l with removal percentage of 98.93% and for nitrate in pH=5.5, FeCl₂ dosage of 0.35 mg/l with removal percentage of 91.43% has been obtained. Also, the best efficiency in facultative pond has been achieved for phosphate in pH of 5.5 and FeCl₂ dosage of 0.35 mg/l with the removal of 100% and nitrate in pH value of 5.5 and FeCl₂ dosage of 0.35 mg/l with removal of 97.44%.

4. CONCLUSION

With increasing the input voltage, the removal efficiency is increased. The most important reason for the further removal of nitrate and phosphate by increasing the input voltage intensity can be attributed to the increase in the amount of oxidized iron in the electrochemical process and the further production of Fe(OH)₃ hydroxide sediments and flocks to remove pollutants. Also, the high efficiency of the

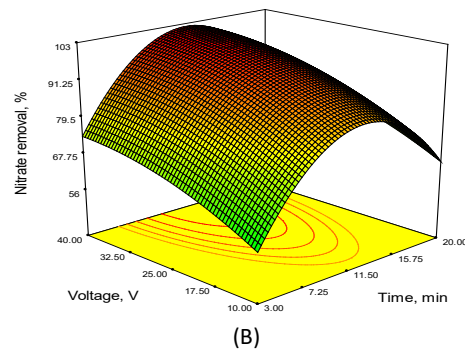


Fig. 2. The effect of the interaction of FeCl₂ and time (A) and the interaction of time and voltage (B) in the removal of nitrate in the effluent pond

electrocoagulation process in alkaline media can be assigned to the reaction between iron metal and hydroxide ion. The results of this study and similar researches indicate that it is possible to use the electrochemical methods to design wastewater treatment systems.

REFERENCES

[1]M. Shahmoradi, M. Gholami, M. Mahaee, E. Abouee Mehrizi, R. Ghorbanpoor, Investigation into organic matter and nutrient

removal in an activated sludge wastewater treatment system: case study of Bojnurd, Journal of North Khorasan University of Medical Sciences. 5 (2014) 927–933 (in Persian).
[2]W.H. Organization, Guidelines for drinking-water quality: recommendations, World Health Organization, 2004.
[3]A.K. Yadav, L. Singh, A. Mohanty, S. Satya, T.R. Sreekrishnan, Removal of various pollutants from wastewater by electrocoagulation using iron and aluminium electrode, Desalination and water treatment. 46 (2012) 352–358.

HOW TO CITE THIS ARTICLE

S. Khoshshima, M. Hadavifar, Gh. Zolfaghari, Investigation of Interaction of Effecting Factors in Phosphate and Nitrate Removal from Municipal Wastewater by Electrocoagulation Process with RSM Approach, Amirkabir J. Civil Eng., 52(6) (2020) 349-352.

DOI: [10.22060/ceej.2019.15377.5901](https://doi.org/10.22060/ceej.2019.15377.5901)





کارایی فرایند الکتروکواگولاسیون در حذف نیترات و فسفات از فاضلاب برکه تثبیت شهر سبزوار با رویکرد پاسخ سطح

سوسن خوش سیمما، مجتبی هادوی فر*، قاسم ذوالفقاری

گروه محیط زیست، دانشکده جغرافیا و علوم محیطی، دانشگاه حکیم سبزواری، سبزوار، ایران

تاریخچه داوری:
دریافت: ۱۳۹۷-۰۹-۱۱
بازنگری: ۱۳۹۷-۱۰-۲۶
پذیرش: ۱۳۹۷-۱۰-۳۰
ارائه آنلاین: ۱۳۹۷-۱۱-۲۷

کلمات کلیدی:

فسفات
نیترات
پساب شهری سبزوار
الکتروکواگولاسیون
پاسخ سطح

خلاصه: یکی از معضلات زیست محیطی پساب‌ها وجود ریز مغذی‌ها و ماکرو مغذی‌ها در آن است که مهمترین آن‌ها فسفر و نیترات است. در این مطالعه، حذف فسفات و نیترات از فاضلاب شهری سبزوار با استفاده از فرایند الکتروکواگولاسیون با الکترودهای آلومینیومی مورد بررسی قرار گرفت. در مطالعه‌ی حاضر، از یک راکتور الکتروکواگولاسیون در مقیاس آزمایشگاهی با حجم تقریبی ۱۲۰۰ میلی‌لیترمکعب مجهز به ۳ الکتروتود از جنس Al در ابعاد ۱۲×۵ سانتی‌مترمربع به منظور حذف مورد استفاده قرار گرفت. تأثیر و تداخل پارامترهای بهره‌برداری از قبیل شدت ولتاژ جریان، pH، مقدار $FeCl_2$ و زمان تماس بر حذف فسفات و نیترات توسط نرم افزار Design Expert بررسی شد. اثر پارامترهای pH و $FeCl_2$ در حوضچه‌های ورودی و اختیاری نیز مورد مطالعه قرار گرفت. هم‌چنین تغییرات pH در روند اکسیداسیون مورد بررسی قرار گرفت. در نهایت می‌توان گفت که فسفات به طور کامل در حوضچه‌های اختیاری و خروجی حذف گردید اما به دلیل غلظت اولیه‌ی پایین فسفات در حوضچه‌ی خروجی، در نهایت با ولتاژ کم‌تر (۱۰ ولت)، زمان ماند پایین‌تر (حدود ۳ دقیقه)، مقدار اندک $FeCl_2$ (۰/۲ میلی گرم بر لیتر) و pH اولیه‌ی محلول در مقایسه با حوضچه‌ی اختیاری حذف کامل فسفات انجام شد. نیترات هم در شرایط بهینه‌ی بهره‌برداری (pH=۵/۵، اختلاف پتانسیل ۲۵ ولت، زمان ۱۱/۵۰ دقیقه و $FeCl_2=۰/۶۵$ میلی گرم بر لیتر) در حوضچه‌ی خروجی به طور کامل حذف شد. فرایند الکتروکواگولاسیون با استفاده از ورقه‌های مصرفی آلومینیوم و هم‌چنین سادگی و هزینه‌ی نسبتاً کم آن، کارایی مطلوبی در حذف فسفر و نیترات دارد.

۱- مقدمه

است، اکنون به حذف دیگر ترکیبات از جمله مواد مغذی توجه‌ی ویژه‌ای شده است. به همین منظور در بسیاری از تصفیه خانه‌ها حذف مواد مغذی در کنار حذف مواد آلی کربن‌دار انجام می‌شود. از جمله آلودگی‌های پساب‌های خانگی وجود فسفات و نیترات می‌باشد. فسفر یکی از عناصر غذایی مهم برای رشد موجودات زنده می‌باشد و سالانه بیش از ۹۰ میلیون تن به صورت کود مصرف می‌شود. فسفات به عنوان یک محصول جانبی در اثر کاربردهای بهداشتی ناشی از فعالیت انسان، جداسدن از سنگ‌های معادن، محصولات پاک کننده و به عنوان یک عنصر مهم در فاضلاب خانگی وارد آب‌های زیرزمینی و سطحی می‌شود. غلظت بالای فسفر باعث تسریع در پدیده‌ی سرشاری غذایی در آب‌ها می‌شود که باعث ایجاد طعم و بو در آب شده و باعث

رشد روز افزون جمعیت جهان، مصارف گوناگون آب را افزایش می‌دهد که منجر به افزایش کمیت آن می‌شود و از طرف دیگر، توسعه‌ی شهرنشینی موجب افزایش فعالیت‌های صنعتی و کشاورزی، تخلیه‌ی فاضلاب‌ها و پساب‌های مختلف به منابع پذیرنده‌ی آب‌های سطحی شده که منجر به کاهش کیفیت آن می‌گردد [۱]. بخش مایع فاضلاب، اساساً همان آب مصرفی جامعه است که در نتیجه‌ی کاربردهای مختلف آلوده شده است [۲]. برخلاف گذشته که هدف از تصفیه‌ی فاضلاب تنها حذف مواد آلی و آلاینده‌های میکروبی بوده

* نویسنده عهده‌دار مکاتبات: mhadavifar@yahoo.com
m.hadavifar@hsu.ac.ir



ایجاد پدیده‌ی لایه بندی در آب‌های سطحی می‌شود که می‌تواند موجب مرگ و میر آبزیان شود [۳]. شکل‌های متداول فسفر محلول شامل سه شکل، به نام‌های اورتوفسفات، پلی فسفات و فسفات آلی می‌باشد. اصلی‌ترین جزء فسفر موجود در فاضلاب به طور کلی به شکل اورتوفسفات و در مقدار بسیار کمتر، شامل فسفات آلی است [۴]. همچنین استفاده‌ی کنترل نشده از کودهای نیتروژن دار و دفع فاضلاب‌های تصفیه نشده به منابع آبی پذیرنده موجب افزایش عمده‌ی نیترات در این منابع شده است [۵]. مصرف آب حاوی نیترات در مقادیر بیش از حد مجاز، مشکلاتی از قبیل سندروم بچه‌ی آبی، متهموگلوبینمی در اطفال و بروز سرطان در بزرگسالان را به همراه دارد. در این راستا سازمان بهداشت جهانی به ترتیب مقدار حداکثر ۵۰ و ۱۰ میلی‌گرم در لیتر را بر حسب نیترات و نیتروژن حد مجاز اعلام کرده است [۶]. به منظور تصفیه‌ی فاضلاب از سه روش فیزیکی، شیمیایی و بیولوژیکی استفاده می‌شود [۲]. در سال‌های اخیر انعقاد الکتریکی به طور موفقیت‌آمیزی در تصفیه‌ی فاضلاب مورد استفاده قرار گرفته است. Asheesh kumar و همکاران [۷] در مطالعه‌ی تحت عنوان حذف آلاینده‌های مختلف از فاضلاب به وسیله‌ی الکتروکواگولاسیون با استفاده از الکتروکود آهن و آلومینیوم نشان دادند که حذف آلاینده‌های مختلف از فاضلاب ترکیبی با این روش امکان پذیر است. رضوی و همکاران [۸] در پژوهشی تحت عنوان ارزیابی کاربرد روش انعقاد الکتریکی در حذف همزمان نیترات و فسفات و COD از پساب رختشوی‌خانه با استفاده از الکتروده‌های آهنی به این نتیجه رسیدند که فاصله‌ی بین الکترودها، شدت جریان الکتریسیته و pH سه پارامتر مؤثر در کارایی حذف فاکتورهای مذکور می‌باشد. Bektas و همکاران [۹]، امکان حذف فسفات از محلول‌های آبی را از طریق به کارگیری روش الکتروانعقادی در غلظت‌های متفاوتی از فسفات محلول، در چگالی‌های MACM ۱۰-۲/۵ و بازه زمانی ۵ تا ۲۰ دقیقه مورد مطالعه قرار دادند. نتایج نشان داد روش الکتروانعقادی بدون استفاده از هیچ گونه ماده‌ی شیمیایی انعقادی کارایی بالایی در حذف فسفات محلول را از خود نشان می‌دهد و کارایی روش مذکور رابطه‌ی مستقیمی با میزان غلظت اولیه‌ی فسفات محلول و زمان انجام فرآیند دارد. الکتروکواگولاسیون عبارت است از تولید مواد منعقدکننده در محل با استفاده از تجزیه‌ی الکتریکی الکترودهای Al یا Fe و تولید یون‌های فلزی در آند و گاز هیدروژن در کاتد. در این

روش انعقاد و شناورسازی الکتریکی به علت اعمال جریان الکتریکی به آندهای قربانی، آند دچار خوردگی می‌شود و هیدروکسیدهای فلزی منعقدکننده را در محل تولید می‌کند. این منعقدکننده‌ها به علت دارا بودن سطح زیاد باعث جذب سریع ترکیبات آلی محلول و گیرانداختن ذرات کلوئیدی می‌شوند. در نهایت لخته‌های تشکیل شده از طریق رسوب‌گذاری یا شناورسازی به راحتی از محلول آبی حذف می‌شوند. از طرفی گاز هیدروژن تولید شده در کاتد، که به شکل حباب ریز ظاهر می‌شوند به ذرات معلق می‌چسبند و آن‌ها را به سمت بالای سلول الکتروشیمیایی شناور می‌کند [۱۲-۱۰]. از ویژگی‌های این روش می‌توان به موارد زیر اشاره نمود: کاهش تعداد واحدهای فرآیندی تصفیه‌خانه و در نتیجه کاهش شدید سطح زمین مورد نیاز، فاضلاب تصفیه شده با این روش مطبوع، بی رنگ، شفاف و بی بو است، عدم نیاز به افزودنی‌های شیمیایی جهت انعقاد، هزینه‌ی راه‌اندازی و بهره‌برداری معقول، قابلیت استفاده برای تصفیه‌ی انواع پساب، سازگاری با محیط زیست، بهره‌برداری آسان، زمان ماند پایین، تولید اندک لجن. بنابراین در مطالعه‌ی حاضر از روش الکتروکواگولاسیون برای حذف فسفات و نیترات از فاضلاب شهری سبزوار استفاده گردید. از اواسط دهه‌ی ۶۰ طرح جمع‌آوری فاضلاب به عنوان اولین شهر استان خراسان بزرگ در دستور کار شهرداری سبزوار قرار گرفت و از سال ۱۳۷۲ این امر به صورت مجدانه توسط شرکت آب و فاضلاب خراسان مورد پیگیری و اجرا قرار گرفته است و تاکنون حدود ۲۵۰ کیلومتر شبکه‌ی جمع‌آوری فاضلاب در شهر سبزوار اجرا گردیده است. تعداد و حجم مخازن تصفیه‌خانه‌ی سبزوار از ۸ باب مخزن با ظرفیت ۳۲۳۵۰ متر مکعب تشکیل شده است. سیستم تصفیه‌ی فاضلاب شهری در شهرستان سبزوار به صورت حوضچه‌های اکسیداسیون یا همان برکه‌های تثبیت می‌باشد. هدف از انجام این تحقیق، بررسی کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در جهت حذف فسفات و نیترات به عنوان یکی از آلاینده‌های آبی است و مواردی هم‌چون حذف کامل فسفات و نیترات با مصرف انرژی کمتر در مقایسه با دیگر روش‌ها، تبدیل به ترکیبات بی‌ضرر، کاهش مصرف معرف‌های شیمیایی قبل و بعد از تصفیه جزء اهداف عمده تحقیق می‌باشد.

۲- مواد و روش‌ها

۲-۱- مواد و تجهیزات

برای تعیین غلظت فسفات از روش کلرید قلع و برای تعیین

جدول ۱. مشخصات حوضچه‌های داخلی تصفیه‌خانه‌ی سبزوار
Table 1. Properties of internal pools of Sabzevar wastewater plant

Nitrate mg/l	Phosphate mg/l	TDS mg/l	EC mS/cm	pH	برکه
۳۲/۶۳	۲۳/۴۸	۱۱۷۱	۱۹۵۲	۷/۷۲	ورودی
۲۷/۴۳	۱۷/۹۲	۱۰۱۰	۱۶۸۶	۷/۳۳	بی‌هوای
۱۹/۲۱	۱۲/۲۵	۱۰۱۶	۱۷۲۵	۷/۷۲	اختیاری

جدول ۲. مشخصات پساب سبزوار در حوضچه‌ی خروجی
Table 2. Characteristics of Sabzevar effluent wastewater plant

مشخصات	مقادیر
رنگ	سبز روشن
pH	۸/۳۳
EC mS/cm	۱۶۲۰
TDS mg/l	۹۶۸
COD mg/l	۹۶
BOD mg/l	۵۰
TSS mg/l	۱۴۶
TS mg/l	۱۳۵۱
Phosphate mg/l	۹/۴۸
Nitrate mg/l	۱۲/۶۷

غلظت نیترات از روش احیاء روی و تشکیل رنگ آزو استفاده گردید. مقادیر pH با استفاده از pH سنج کالیبره شده مدل WTW SERIES Inolab 720, Germany صورت گرفت. جهت تنظیم pH نمونه‌ها از ۰/۱ NaOH و ۱ مولار و ۱ مولار HCl استفاده شد. کل مواد جامد محلول (TDS) و هدایت الکتریکی نمونه‌ها از طریق دستگاه JENWAY 4520 Conductivity Meter اندازه‌گیری شد. مقادیر اولیه‌ی فسفات و نیترات توسط دستگاه اسپکتروفتومتر مدل UV-VIS Array Photonix Ar 2015 قرائت گردید. تمامی مواد مورد استفاده در این پژوهش ساخته‌ی شرکت مرک آلمان بودند. جهت تغذیه‌ی جریان الکتریکی از یک منبع تغذیه (مدل DAZHENG PS-605D) با دامنه‌ی ولتاژ ۶۰-۰ ولت و جریان ۵-۰ آمپر بهره‌گیری شد.

۲-۲- روش کار

۵۰ سانتی‌متر مربع و فاصله‌ی الکترودها برابر ۴ سانتی‌متر بود. در هر مرحله ۷۰۰ میلی لیتر پساب به ظرف الکترولیز انتقال پیدا کرد. به منظور اختلاط نمونه در طول فرآیند الکترولیز، کل سیستم بر روی همزن مغناطیسی قرار گرفته شد و اثر هر یک از پارامترها بر روی فرآیند الکترولیز مورد ارزیابی واقع شد. طول زمان الکترولیز بسته به مرحله‌ی تحقیق متغیر بود اما زمان ته‌نشینی فاضلاب تصفیه شده برای تمامی مراحل ثابت و برابر نیم ساعت در نظر گرفته شد.

متغیرهای دخیل در آزمایش و محدوده مقادیر آنها با آزمایش‌های مستقل طبق جدول ۳ تعیین شد و این متغیرها و محدوده آنها به نرم افزار داده شد. طبق این داده‌ها، نرم افزار ۳۰ ران آزمایش پیشنهاد داد که بعد از انجام، پاسخ‌ها دوباره به نرم افزار وارد گردید و تجزیه و تحلیل‌های آماری و برهمکنش متغیرها توسط نرم افزار صورت پذیرفت. آنالیز فسفات و نیترات مطابق با روش استاندارد برای

سیستم تصفیه‌خانه فاضلاب شهری سبزوار به روش برکه‌های تثبیت می‌باشد. این تصفیه‌خانه دارای ۴ حوضچه است که شامل حوضچه‌های ورودی، بی‌هوای، اختیاری و خروجی می‌باشد. مشخصات هر حوضچه در جدول ۱ و مشخصات پساب حوضچه خروجی در جدول ۲ آمده است. نمونه‌های مورد نظر از واحد تصفیه‌خانه‌ی سبزوار به روش دستی با استفاده از بطری‌های ۱۰ لیتری در ۳ مرحله از خروجی حوضچه‌های مختلف تصفیه خانه گرفته شد و بلافاصله پس از انتقال نمونه به آزمایشگاه، به انجام آزمایش پرداخته شد. الکترولیز در یک ظرف شیشه‌ای به حجم ۱۲۰۰ میلی لیتر مکعب و از ۳ الکترود به ابعاد ۱۲×۵ سانتی‌متر مربع از جنس آلومینیوم که به صورت موازی (الکترود وسط مثبت و الکترودهای کناری منفی) به منبع تغذیه متصل بود، انجام گرفت. سطح تماس مؤثر هر الکترود با پساب

جدول ۳. متغیرهای در نظر گرفته شده برای نرم افزار و محدوده آنها
Table 3. Variables factors and ranging levels

محدوده و سطوح					کد متغیرها	متغیرها
+a	+۱	۰	-۱	-a		
۱۰/۵	۸	۵/۵	۳	۰/۵	A	pH
۰/۶۵	۰/۶۵	۰/۵	۰/۳۵	۰/۲	B	FeCl _۲ (mg/l)
۲۸/۵۰	۲۰	۱۱/۵۰	۵	۳	C	Time (min)
۴۰	۲۵	۲۰	۱۰	۸	D	Voltage (V)

جدول ۴. نتایج حاصل از آزمون آنالیز واریانس روش الکتروکواگولاسیون برای حذف فسفات و نیترات در حوضچه‌ی خروجی
Table 4. Variance analysis for phosphate and nitrate removal in effluent

P- value	F-value	میانگین مربعات	درجه آزادی	مجموع مربعات	متغیرها	پاسخ
۰/۱۰۱۱	۱/۹۸	۲۶۶/۴۴	۱۴	۳۷۳۰/۱۸	رگرسیون	حذف فسفات
۰/۱۹۹۹	۱/۶۲	۲۹۶/۲	۴	۱۱۴۸/۸	اثرات اصلی متغیرها	
۰/۳۰۸۷	۱/۲۹	۲۲۰/۲	۶	۱۳۲۱/۲۱	اثرات بین متغیرها	
۰/۱۰۹۷	۲/۲۷	۳۰۶/۰۴	۴	۱۲۲۴/۱۷	اثرات مجذور متغیرها	
-	-	۱/۹۷	۶	۱۱/۸	باقیمانده	
-	-	۲۰۱/۹۹	۱۰	۲۰۱۹/۹۲	عدم تطابق	
-	-	۹۱۴۱/۵۹	۳۰	۰/۰۰۰۰۰۰۳	مجموع	
<۰/۰۰۰۱	۱۲/۱۹	۷۰۲/۵۹	۱۳	۹۱۳۳/۶۲	رگرسیون	حذف نیترات
۰/۱۸۱۲	۱/۷۲	۵۸۸/۹۴	۴	۲۳۵۵/۷۴	اثرات اصلی متغیرها	
۰/۲۹۰۵	۱/۳۶	۴۲۲/۸۱	۶	۲۵۳۶/۸۶	اثرات بین متغیرها	
<۰/۰۰۰۱	۱۷/۰۴	۱۰۶۰/۷۹	۴	۴۲۴۳/۱۵	اثرات مجذور متغیرها	
-	-	۰/۹۴	۵	۴/۷۲	باقیمانده	
<۰/۰۰۰۱	۱۱۲/۴۲	۱۰۶/۰۳	۷	۷۴۲/۲۳	عدم تطابق	
-	-	۷۰۲۳/۲	۲۷	۰/۰۰۰۰۰۰۲	مجموع	

Expert وارد شد تا مورد تجزیه و تحلیل آماری و بهینه‌سازی مشاهدات قرار گیرند. در نهایت مدل سازی متغیرها جهت مقدار حذف فسفات و نیترات در جدول ۶ آمده است. با استفاده از داده‌های به دست آمده در این مرحله، می‌توان به تفسیر داده‌ها و بررسی منحنی‌ها با توجه به شرایط پیشنهادی نرم‌افزار پرداخت. شرایط مطلوب برای تصفیه‌ی پساب با روش الکتروکواگولاسیون و رویکرد پاسخ سطحی^۱ (RSM) تحت طراحی ترکیبی مرکزی^۲

آزمایشات آب و فاضلاب انجام شد. برای شناسایی اثرات معنی‌دار فاکتورهای مختلف و برهمکنش آن‌ها بر حذف فسفات و نیترات از آزمون آنالیز واریانس استفاده شد که مقادیر آن در جدول ۴ آورده شده است.

میزان معنی‌داری داده‌ها به صورت F-value و P-value (سطح اطمینان ۹۵ درصد) در جدول ۵ آورده شده‌اند که مقادیر بالای F-value و مقدار کمتر از ۰/۰۵ برای P-value افزایش معنی‌داری مدل را نشان می‌دهد. پس از محاسبه‌ی درصد حذف برای هر آزمایش در زمان تعادلی مشخص، مقادیر در نرم‌افزار Design

1 Response Surface Methodology
2 Central Composite Design

جدول ۵. آنالیز رگرسیون در معادله روش الکتروکواگولاسیون برای حذف فسفات و نیترات در حوضچه‌ی خروجی
 Table 5. Regression analysis in equation of electrocoagulation method for phosphate and nitrate removal in effluent

P-value	F-value	اشتباه معیار	مقدار	متغیرهای معادله	پاسخ
-	-	۴/۳۶	۹۹/۹۱	عرض از مبدأ	حذف فسفات
۰/۲۱۶۳	۱/۶۷	۲/۳۷	۳/۰۶	(pH) A	
۰/۲۷۱۵	۱/۳	۲/۳۷	۲/۷	(Fe) B	
۰/۰۸۰۸	۳/۵۱	۲/۷۴	۵/۱۴	(Time) C	
۰/۰۸۶۸	۳/۳۶	۲/۶۴	-۴/۸۴	(V) D	
۰/۶۴۶	۰/۲۲	۲/۹	۱/۳۶	AB	
۰/۶۶۳۵	۰/۲	۲/۹	۱/۲۹	AC	
۰/۳۴۲۵	۰/۹۶	۲/۹	-۲/۸۴	AD	
۰/۱۰۰۴	۳/۰۷	۲/۹	-۵/۰۸	BC	
۰/۱۱۹۶	۲/۷۲	۲/۹	۴/۷۹	BD	
۰/۱۲۴۸	۲/۶۴	۲/۹	۴/۷۲	CD	
۰/۰۱۳۱	۷/۹۱	۲/۱۸	-۶/۱۳	A ^۲	
۰/۹۸۹۹	۰/۰۰۰۰۲	۲/۱۸	-۰/۰۲۸	B ^۲	
۰/۴۱۴۷	۰/۷	۲/۹۲	-۲/۴۵	C ^۲	
۰/۵۵۲۴	۰/۳۷	۲/۸۵	۱/۷۳	D ^۲	
-	-	۲/۵۵	۹۷/۱۵	عرض از مبدأ	حذف نیترات
۰/۰۳۰۷	۵/۸۷	۱/۷	-۴/۱۱	(pH) A	
۰/۰۳۳۸	۵/۶۲	۱/۷۴	-۴/۱۳	(Fe) B	
۰/۰۴۷۴	۴/۷۹	۲/۱۹	۴/۷۹	(Time) C	
۰/۰۰۱	۱۸/۰۲	۲/۰۲	۸/۵۶	(V) D	
۰/۰۴۴۷	۴/۹۳	۲/۲۴	-۴/۹۸	AB	
۰/۱۳۳۵	۲/۵۶	۲/۲۴	۳/۵۹	AC	
۰/۰۰۱۱	۱۷/۳۵	۲/۲۴	-۹/۳۳	AD	
۰/۰۵۴۳	۴/۴۷	۲/۱۶	۴/۵۷	BC	
۰/۶۳۰۴	۰/۲۴	۲/۱۶	۱/۰۷	BD	
۰/۹۵۷۷	۰/۰۰۰۳	۲/۱۶	-۰/۱۲	CD	
۰/۷۲۹۶	۰/۱۲	۱/۴۷	۰/۵۲	B ^۲	
< ۰/۰۰۰۱	۴۹/۵۸	۳/۳۶	-۲۳/۶۶	C ^۲	
۰/۸۴۵	۳/۴۹	۲/۰۷	-۳/۸۷	D ^۲	

(CCD) تعیین شدند.

[۱۳].

با توجه به این که نرم افزار مورد استفاده برای هر تکرار درصد حذف پیش‌بینی می نماید، می توان با مقایسه این دو مقدار و تعیین مقدار تفاوت موجود بین آن‌ها، به بررسی میزان کارایی مدل در تعیین شرایط نزدیک به طبیعت و صحت آزمایشات انجام شده پرداخت

۳- نتایج

۳-۱- تأثیر pH، مدت زمان تماس، مقدار $FeCl_2$ و ولتاژ بر حذف فسفات و نیترات در حوضچه‌ی خروجی با روش الکتروکواگولاسیون

جدول ۶. معادلات مربوط به درصد حذف فسفات و نیترات در حوضچه‌ی خروجی با فرآیند الکتروکواگولاسیون

Table 6. Equations for the percent of phosphate and nitrate removal in the effluent

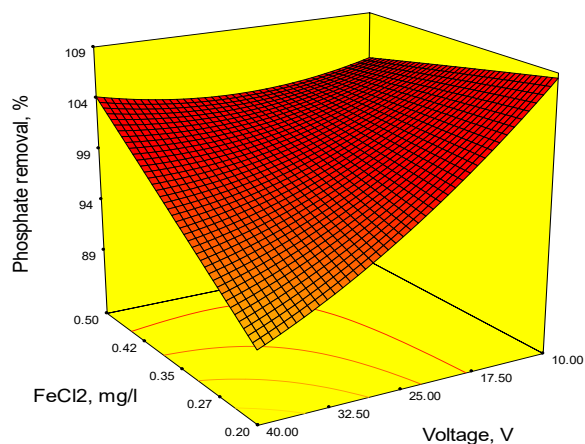
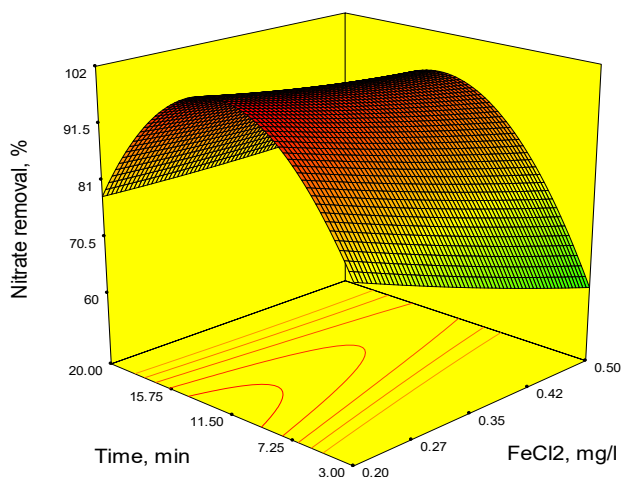
C.V%	Mean	Std.Dev	Adeq. Precision	Predicted-R ²	adjusted-R ²	R ²	معادلات اصلاح شده یا متغیرهای معنی‌دار	پاسخ
۱۲/۲۷	۹۴/۶	۱۱/۶	۵/۸۴۵	-۱/۲۷۹۲	۰/۳۲۰۹	۰/۶۴۸۷	+۹۹.۹۱A+۳.۰۶A+۲.۷۰B +۵.۱۴C-۴.۸۴D+۱.۳۶AB +۱.۲۹AC-۲.۸۴AD-۵.۰۸BC +۴.۷۹BD+۴.۷۲CD-۶.۱۳A -۰.۰۲۸B ^۲ -۲.۴۵C ^۲ +۱.۷۳D ^۲	درصد حذف فسفات
۹/۳	۸۱/۵۹	۷/۵۹	۱۱/۶۹۶	۰/۳۰۲۸	۰/۸۴۸۴	۰/۹۲۴۲	+۹۷.۱۵-۴.۱۱ A-۴.۱۳ B +۴.۷۹C+۸.۵۶ D-۴.۹۸ AB +۳.۵۹AC- ۹.۳۳AD+۴.۵۷BC+۱.۰۷B D -۰.۱۲CD+۰.۵۲B ^۲ +۲۳.۶۶C ^۲ -۳.۸۷D ^۲	درصد حذف نیترات

افزایش شدت جریان الکتریکی کارایی حذف افزایش می‌یابد. در روش الکتروکواگولاسیون برای حذف نیترات پساب در pH محدوده ۵/۵ بهترین نتایج حاصل شد، ولی افزایش آن تا محدوده ۸ (pH اولیه پساب) باعث کاهش میزان حذف گردید (شکل آورده نشده است). این امر می‌تواند به دلیل حضور ترکیبات آنیونی در پساب باشد که در pH های اسیدی بیشتر به صورت محلول خواهند بود. ترکیبات آنیونی در pH بالاتر به شکل یون‌های منفی در می‌آیند و امکان رسوب آن‌ها بیشتر است. با افزایش pH تا ۱۰/۵، افزایش قلیایی شدن محیط باعث محلول شدن رسوب Al(OH)₃ می‌شود و کارایی حذف کاهش می‌یابد و در pH های بزرگتر از ۸ اکسیدهای حفاظتی در سطح ذرات آلومینیوم وجود دارد که از واکنش با نیترات جلوگیری می‌کند و کارایی حذف نیترات کاهش می‌یابد [۲۲].

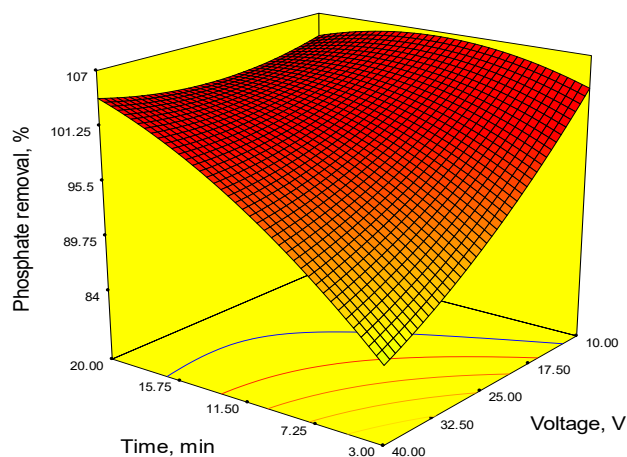
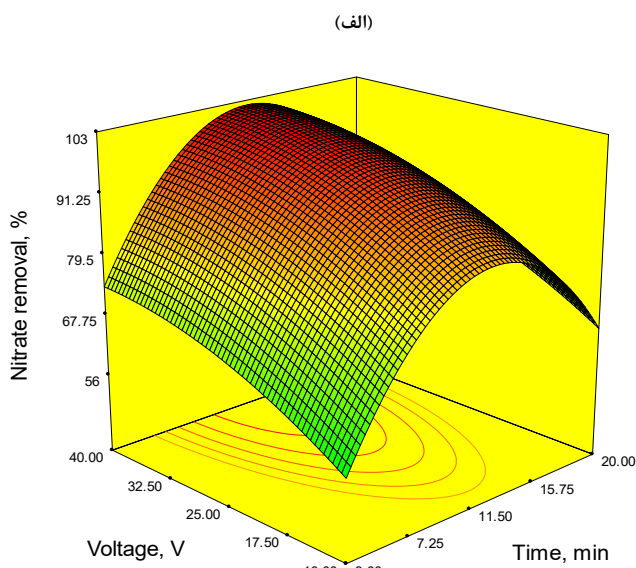
در ولتاژهای بالا میزان مصرف انرژی در طول زمان بیشتر بوده و در نتیجه‌ی این افزایش مصرف انرژی، فعالیت‌های آندیک و کاتدیک افزایش یافته و میزان احیاء مولکول آب در کاتد به شدت افزایش می‌یابد و باعث می‌شود مقدار یون‌های هیدروکسیل در محیط به شدت افزایش یابد و در عین حال سرعت خروج یون‌های هیدروژن از محیط به صورت گاز H₂ افزایش یافته و در نتیجه، این امر به افزایش pH منجر می‌شود (روابط ۱ و ۲) [۲۳ و ۲۴].



در روش الکتروکواگولاسیون کارایی حذف فسفات و نیترات به فاکتورهای مختلفی مانند pH، چگالی جریان الکتریکی، مدت زمان تماس، مقدار الکترولیت بستگی دارد. در بین این فاکتورها pH، چگالی جریان الکتریکی و مدت زمان بیشترین کارایی را در این مطالعه داشته‌اند. شکل ۱ تأثیر برهم‌کنش مقادیر متفاوت pH، چگالی جریان الکتریکی و مدت زمان تماس را بر حذف فسفات با روش الکتروکواگولاسیون نشان می‌دهد. پارامتر مهم تأثیرگذار دیگر بر کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون، pH می‌باشد [۱۶-۱۴] که گونه‌های منعقد کننده در محلول را تعیین می‌کند [۱۷]. با توجه به شکل ۱ اثر شدت جریان الکتریسیته در فرآیند الکتروکواگولاسیون به خوبی مشخص شده است به نحوی که نه تنها تعیین کننده نرخ مقدار منعقد کننده تزریقی به محلول است، بلکه بر روی نرخ تولید حباب‌ها و اندازه و رشد فلاک‌های تولیدی نیز مؤثر است که می‌تواند راندمان تصفیه را تحت تأثیر قرار دهد [۱۸ و ۱۹]. از طرفی با افزایش چگالی جریان حباب‌های بیشتر و ریزتری تولید می‌شود که در مقایسه با حباب‌های بزرگ‌تر سطح مؤثر و زمان ماند بیشتری دارند و در حذف آلاینده‌ها مؤثرتر عمل می‌کنند [۲۰]. نرخ تولید بیشتر حباب‌های آزاد شده در کاتد به اختلاط بهتر فاضلاب و رشد بیشتر لخته‌های ته‌نشین شده منجر می‌شود و در نهایت باعث افزایش جذب آلاینده‌ها به لخته‌ها می‌شود [۲۱]. همانطور که در نمودار مشاهده می‌شود با



(الف)



(ب)

(الف)

(ب)

شکل ۲. اثر برهم کنش FeCl_2 و زمان در pH ۵/۵ و ولتاژ ۲۵ ولت (الف) و برهم کنش زمان و ولتاژ در pH ۵/۵ و FeCl_2 ۰/۳۵ میلی گرم بر لیتر (ب) در حذف نیترات در حوضچه‌ی خروجی

Fig. 2. The effect of the interaction of FeCl_2 and time (A) and the interaction of time and voltage (B) in the removal of nitrate in the effluent pond

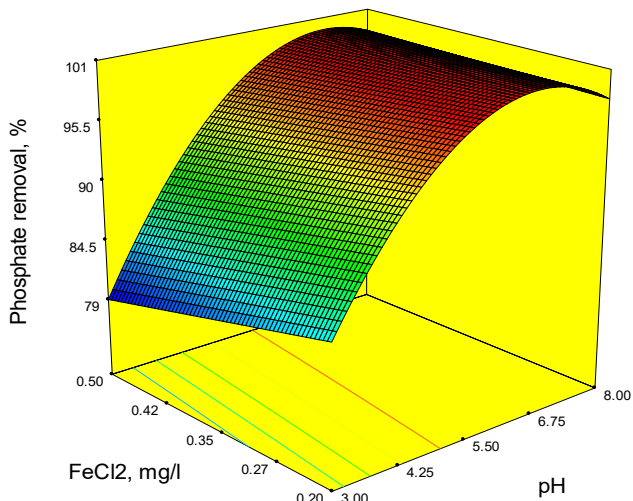
افزایش کارایی حذف منجر می‌شود [۲۵]. با افزایش زمان الکترولیز، غلظت یون‌های فلزی و لخته‌های هیدروکسید افزایش می‌یابد و راندمان حذف بالاتر می‌رود [۲۶]. یون‌های Fe^{2+} متداول‌ترین یون‌های تولید شده در راکتور انعقاد الکتریکی در اثر انحلال و تجزیه‌ی آهن است و در مقابل یون‌های OH^- در کاتد تولید می‌شوند. با اختلاط محلول گونه‌های هیدروکسیدی تولید و با روش‌های جذب و رسوب‌گذاری

شکل ۱. اثر برهم کنش FeCl_2 و ولتاژ در pH ۵/۵ و زمان ۱۱/۵ دقیقه (الف) و اثر برهم کنش زمان و ولتاژ در pH ۵/۵ و FeCl_2 ۰/۳۵ میلی گرم بر لیتر (ب) در حذف فسفات در حوضچه‌ی خروجی

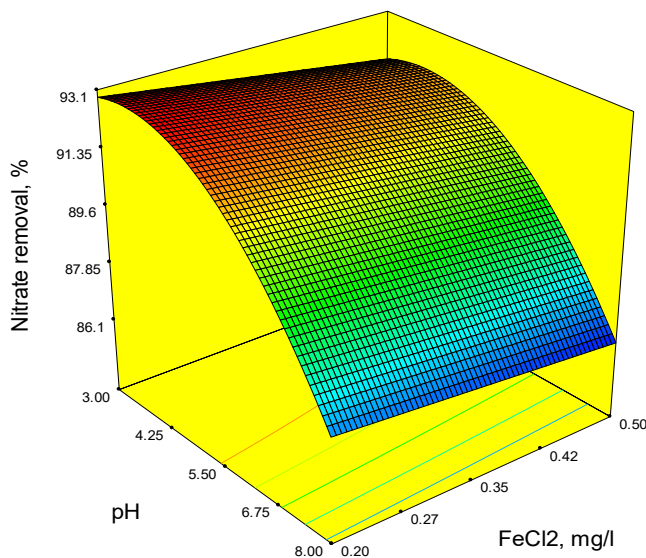
Fig. 1. The effect of the interaction of FeCl_2 and voltage (A) and the interaction of time and voltage (B) in the removal of phosphate from effluent pond



از لحاظ اقتصادی زمان یکی از پارامترهای مهم در این سیستم می‌باشد و باید به گونه‌ای باشد که علاوه بر اینکه بتواند دستاورد مفیدی را حاصل آورد از لحاظ اقتصادی نیز مقرون به صرفه باشد. افزایش ولتاژ و مدت زمان الکترولیز به علت تولید سریع‌تر فرآورده‌ی ناشی از الکترولیز نظیر هیدروژن در کاتد و افزایش شرایط احیاء‌کنندگی، به



شکل ۳. اثر برهم کنش pH و FeCl_2 در حذف فسفات در حوضچه بی‌هوایی (مدت زمان ۱۱/۵۰ دقیقه و ولتاژ ۲۵ ولت)
Fig. 3. Effect of pH and FeCl_2 interaction in phosphate removal in anaerobic pond

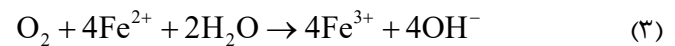


شکل ۴. اثر برهم کنش pH و FeCl_2 در حذف نیترات در حوضچه بی‌هوایی (مدت زمان ۱۱/۵۰ دقیقه و ولتاژ ۲۵ ولت)
Fig. 4. Effect of pH and FeCl_2 interaction in nitrate removal in anaerobic pond

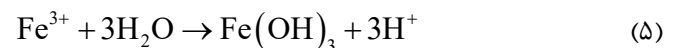
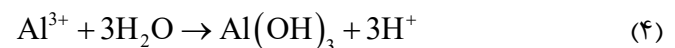


بعد از اضافه کردن نمک کلرید آهن به نمونه‌ی حوضچه بی‌هوایی مشاهده شد که رنگ نمونه به سرعت به سیاه تغییر پیدا کرد ولی بعد از الکترولیز فلاک‌های تولید شده در سطح قرار گرفتند

باعث حذف آلاینده‌ها از محلول می‌شوند. یون‌های فرو سریع‌تر از آن‌که تولید شوند مصرف می‌شوند. بنابراین همواره برای تولید میزان مناسبی از رادیکال‌های هیدروکسیل به غلظت بیشتری از یون‌های فرو احتیاج است [۲۷]. به علاوه میزان اکسیداسیون Fe^{2+} بستگی به توانایی اکسیژن محلول طبق رابطه ۳ دارد. زیرا یون‌های Al^{3+} و Fe^{3+} تولید شده با OH^- موجود در محلول واکنش داده و فلاک‌های هیدروکسیدی را تولید می‌کنند [۱۱].



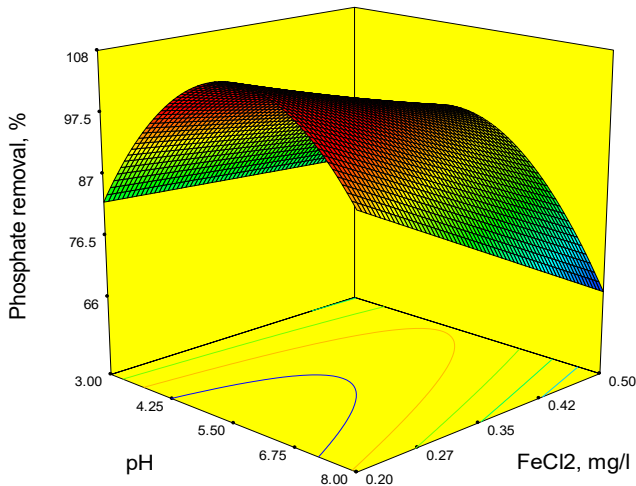
در شرایط اختلاف پتانسیل (ولتاژ) بالا، مقدار آلومینیوم و آهن اکسید شده (تزریقی به محلول) افزایش می‌یابد که نتیجه‌ی آن تولید مقادیر بیشتر رسوبات و لخته‌های هیدروکسیدی (طبق رابطه‌های ۴ و ۵) جهت حذف آلاینده‌ها است [۲۷ و ۱۱].



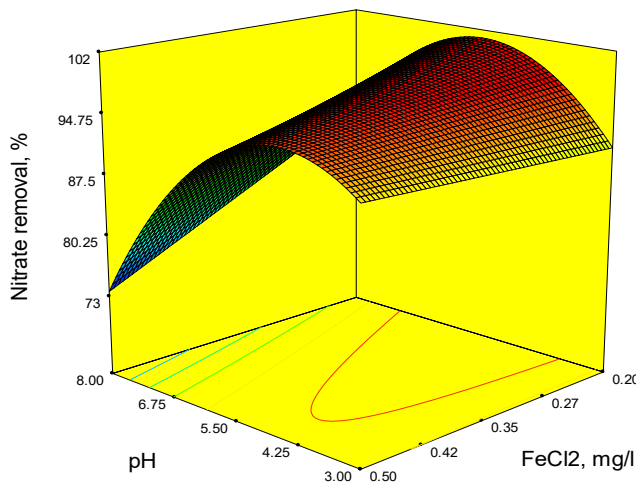
$\text{Fe}(\text{OH})_3$ و $\text{Al}(\text{OH})_3$ دارای سطوح بزرگی هستند که برای جذب سریع ترکیبات ارگانیک محلول مانند یون فسفات و ذرات کلوئیدی مناسب‌اند. بدین ترتیب با توجه به مطالب ذکر شده می‌توان افزایش راندمان حذف یون فسفات را در ولتاژها و زمان‌های واکنش بالاتر توجیه نمود به گونه‌ای که حداکثر کارایی حذف در زمان واکنش ۳ دقیقه، جریان الکتریکی ۱۰ ولت، pH برابر ۸ و FeCl_2 برابر ۰/۲ میلی‌گرم بر لیتر برای حذف ۱۰۰ درصد فسفات به دست آمد. و حداکثر کارایی حذف در زمان واکنش ۱۱/۵۰ دقیقه، جریان الکتریکی ۲۵ ولت، pH برابر ۵/۵ و FeCl_2 برابر ۰/۶۵ گرم بر لیتر برای حذف ۱۰۰ درصد نیترات به دست آمد.

۲-۳- تأثیر pH و FeCl_2 بر حذف فسفات و نیترات در حوضچه بی‌هوایی با روش الکتروکواگولاسیون

به دلیل بارگذاری زیاد مواد آلی در برکه‌های بی‌هوایی، هیچ گونه اکسیژن محلول و جلبکی در فاضلاب وجود ندارد. مهم‌ترین واکنش بیولوژیکی در آن‌ها طبق رابطه ۶، تولید اسید و تخمیر متانی است که در نهایت دارای گاز CO_2 و H_2S می‌شود [۲۸].



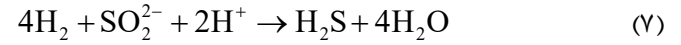
شکل ۵. اثر برهم کنش pH و FeCl_2 در حذف فسفات در حوضچه‌ی اختیاری (مدت زمان ۱۱/۵۰ دقیقه و ولتاژ ۲۵ ولت)
Fig. 5. Effect of pH and FeCl_2 on phosphate removal in facultative pond



شکل ۶. تأثیر pH و FeCl_2 بر حذف نیترات در حوضچه‌ی اختیاری (مدت زمان ۱۱/۵۰ دقیقه و ولتاژ ۲۵ ولت)
Fig. 6. Effect of pH and FeCl_2 on nitrate removal in facultative pond

جذب ترکیبات آلی محلول و به دام انداختن ذرات کلوئیدی مناسب هستند و همچنین در این محدوده از pH تراکم عوامل منعقدکننده بیشتر می‌باشد که منجر به کارایی بالای فرآیند می‌گردد [۱۵]. با توجه به شکل‌های ۵ و ۶ مشخص می‌شود که بهترین راندمان حذف برای فسفات در $\text{pH}=/۵$ ، $\text{FeCl}_2=۳۵ \text{ mg/l}$ با ۱۰۰ درصد حذف و برای نیترات در $\text{pH}=/۵$ ، $\text{FeCl}_2=۳۵ \text{ mg/l}$ با ۹۷/۴۴ درصد حذف به دست آمد.

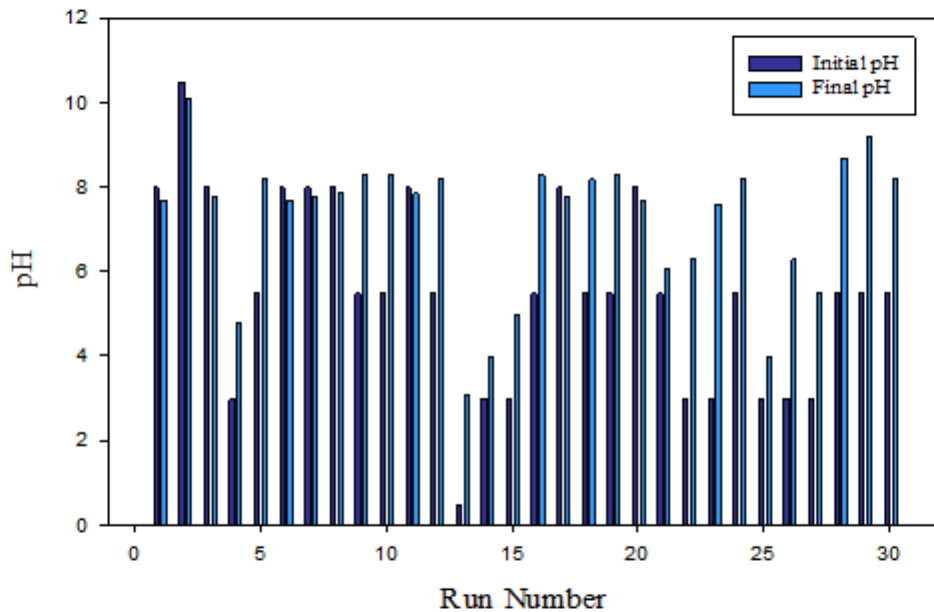
و رنگ محلول شفاف شد. این رنگ تیره طبق واکنش‌های ۷ تا ۱۰ مربوط به واکنش یون آهن با H_2S و ترکیبات سولفوردار تولید شده در فرآیند بی‌هوازی است [۲۹ و ۳۰].



در این حوضچه به اثرات pH و نمک کلرید آهن بر حذف فسفات و نیترات پرداخته شد. مدت زمان (۱۱/۵۰ دقیقه) و ولتاژ (۲۵ ولت) ثابت در نظر گرفته شد. یکی از پارامترهای مهم تأثیرگذار بر کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون pH می‌باشد که تعیین کننده گونه‌های منعقدکننده در محلول می‌باشد. بنابراین اثر ویژه‌ای بر مکانیسم حذف دارد. با توجه به شکل‌های ۳ و ۴ مشخص می‌شود که بهترین راندمان حذف برای فسفات در $\text{pH}=/۵$ ، $\text{FeCl}_2=۳۵ \text{ mg/l}$ با ۹۸/۹۳ درصد حذف و برای نیترات در $\text{pH}=/۵$ ، $\text{FeCl}_2=۳۵ \text{ mg/l}$ با ۹۷/۴۴ درصد حذف به دست آمد.

۳-۳- تأثیر pH و FeCl_2 بر حذف فسفات و نیترات در حوضچه‌ی اختیاری با روش الکتروکواگولاسیون

حوضچه‌های اختیاری متداول‌ترین نوع برکه‌ها هستند که در لایه‌های فوقانی آن‌ها به دلیل وجود اکسیژن محلول شرایط هوازی وجود دارد و در لایه‌های تحتانی به دلیل عدم وجود اکسیژن محلول شرایط بی‌هوازی غالب می‌باشد. لایه‌ی حد واسط نیز در بین لایه‌ی هوازی و بی‌هوازی شناسایی شده است. در این حوضچه گازهایی مانند CO_2 به مصرف جلبک‌ها رسیده و ایجاد شرایط قلیایی می‌کند [۳۱]. در این نمونه‌ها بعد از الکترولیز فلاک‌های تولید شده در سطح قرار گرفتند و رنگ محلول شفاف شد. در این حوضچه به اثرات pH محلول و نمک کلرید آهن بر حذف فسفات و نیترات پرداخته شد. مدت زمان (۱۱/۵۰ دقیقه) و ولتاژ (۲۵ ولت) ثابت در نظر گرفته شد. هنگامی که pH بین ۴ تا ۹ باشد یون‌های Al^{3+} ، Fe^{3+} و OH^- گونه‌های متنوع مونومریک و گونه‌های پلیمریک را تولید می‌کنند که سرانجام به $\text{Al}(\text{OH})_3$ و $\text{Fe}(\text{OH})_3$ نامحلول تغییر شکل می‌دهند [۱۶]. لخته‌های $\text{Al}(\text{OH})_3$ و $\text{Fe}(\text{OH})_3$ سطح بزرگ‌تری دارند که برای

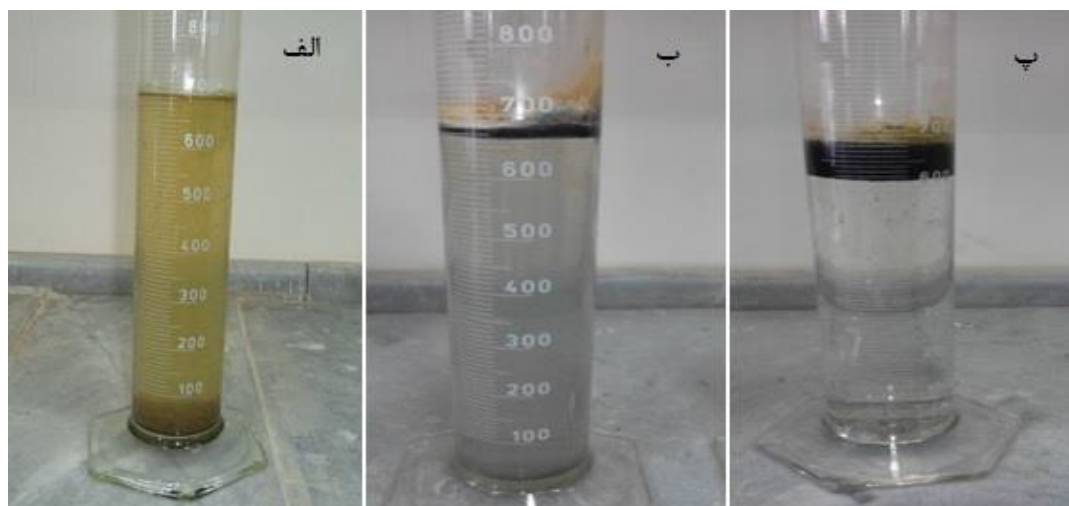


شکل ۷. بررسی تغییرات pH در طی روند اکسیداسیون
 Fig. 7. Studing of pH changes in the oxidation process in effluent pond

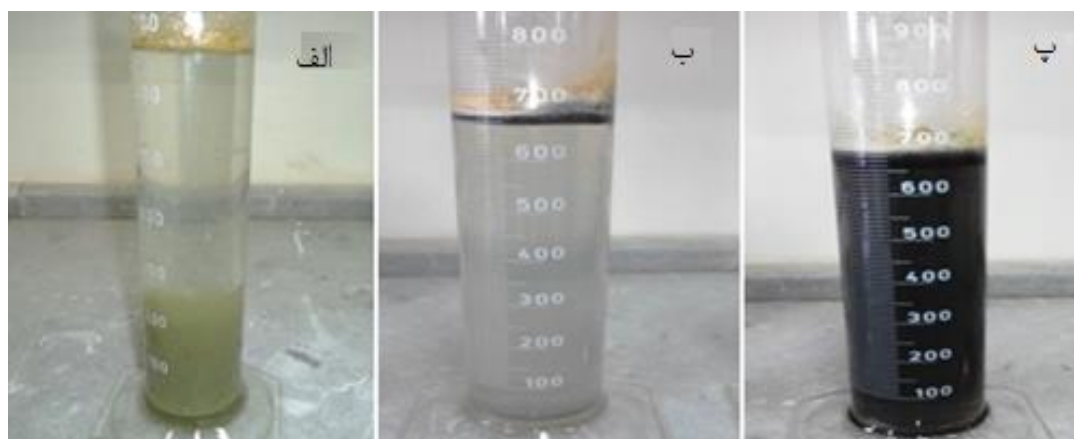
آن نیز افزایش می‌یابد [۳۶]. هم‌چنین افزایش زمان الکترولیز تأثیر مشابه با افزایش شدت جریان الکتریکی بر فرآیند دارد و با افزایش زمان الکترولیز، غلظت یون‌های فلزی و لخته‌های هیدروکسید آن‌ها افزایش می‌یابد [۲۵]. در فرآیند الکترودکسیداسیون با افزایش مقدار آلاینده به میزان بیشتری از کوآگولانت احتیاج است [۳۷]. در شکل ۸ در حوضچه‌ی خروجی به دلیل غلظت اولیه‌ی کمتر فسفات، مقدار ولتاژ و زمان تصفیه از دو حوضچه‌ی قبلی کم‌تر است و قطر کم‌تر لجن و محلول به نسبت تیره‌تر هم گواه از این موضوع دارد. اما در حوضچه‌ی بی‌هوای و اختیاری مقدار ولتاژ و زمان برای هر دو حوضچه یکسان است ولی مقدار آهن استفاده شده در حوضچه‌ی بی‌هوای بیشتر است که باعث شده هم محلول شفاف‌تر باشد و هم قطر لجن ایجاد شده بیشتر باشد. همان‌طور که در شکل ۹ دیده می‌شود، مشخص است رنگ محلول تصفیه شده در حوضچه‌ی خروجی از بقیه شفاف‌تر، و لخته‌های تشکیل شده در کف رسوب کرده و رنگ روشن‌تری دارند. این بدان علت است که بالاترین درصد حذف نیترات در حوضچه‌ی خروجی روی داد که معادل ۱۰۰ درصد بود. رنگ سیاه محلول در حوضچه‌ی بی‌هوای و اختیاری دلیل واکنش $FeCl_2$ با ترکیبات سولفوردار است. برای غلظت‌های اولیه‌ی بالاتر، اختلاف پتانسیل بالاتر یا زمان واکنش طولانی‌تر نیاز است. با افزایش

۳-۴- بررسی تغییرات pH در روند اکسیداسیون در حوضچه‌ی خروجی در روش الکترودکسیداسیون
 شکل ۷ مقایسه pH اولیه و نهایی را در فرآیند الکترودکسیداسیون نشان می‌دهد. دامنه تغییرات pH به جنس الکترودهای مورد استفاده و مقدار pH اولیه‌ی محلول مورد نظر بستگی دارد [۳۲] و [۳۳]. همان‌طور که توسط سایر محققین گزارش شده است [۳۳] در شرایطی که pH اولیه محلول پایین باشد ($pH > 7$)، افزایشی در مقدار pH نهایی حاصل می‌شود که این امر می‌تواند ناشی از متصاعد شدن گاز H_2 در کاتدها باشد [۳۴]. در محیط‌های قلیایی ($pH < 8$) نهایی از تغییرات چندان زیادی برخوردار نبوده و تنها یک افت ناچیز در مقدار آن رخ می‌دهد [۳۵]. در واقع فرآیند الکترودکسیداسیون می‌تواند به عنوان یک تنظیم کننده‌ی pH عمل نماید.

۳-۵- مقایسه رنگ محلول تصفیه شده و قطر لجن در حوضچه‌ها
 بعد از الکترولیز به تمامی محلول‌ها به مدت نیم ساعت اجازه داده شد تا فلاک‌ها و لخته‌های ایجاد شده ته‌نشین شوند. با افزایش شدت جریان الکتریکی، حلالیت الکترودهای آند نیز افزایش می‌یابد. در نتیجه، هیدروکسیدهای آلومینیوم تولیدی، میزان بیشتری از آلاینده‌ها را حذف نموده و به همین علت میزان لجن حاصل از



شکل ۸. مقایسه‌ی رنگ محلول‌های تصفیه شده و قطر لجن در حذف فسفات، الف) حوضچه‌ی خروجی، ب) حوضچه‌ی اختیاری، پ) حوضچه‌ی بی‌هوای
 Fig. 8. Comparison of refined soluble color and sludge diameter in a) Outlet pond, b) Facultative pond and c) anaerobic pond in phosphate removal



شکل ۹. مقایسه‌ی رنگ محلول‌های تصفیه شده و قطر لجن در حذف نیترات، الف) حوضچه‌ی خروجی، ب) حوضچه‌ی اختیاری، پ) حوضچه‌ی بی‌هوای
 Fig. 9. Comparison of refined soluble color and sludge diameter in a) Outlet pond, b) Facultative pond and c) anaerobic pond in nitrate removal

از سوی دیگر میزان انرژی و به تبع آن مقدار ماده‌ی منعقدکننده یکسان نیست، بنابراین با افزایش غلظت اولیه‌ی نیترات راندمان حذف کاهش پیدا کرده است. کم‌ترین میزان درصد حذف برای نیترات در حوضچه‌ی بی‌هوای بود، به این دلیل که مقدار غلظت اولیه‌ی نیترات در این حوضچه از همه بیشتر بوده و نسبت به دو حوضچه‌ی بعدی، از آهن کم‌تری استفاده شده است. مقدار ولتاژ و زمان تصفیه در هر سه حوضچه یکسان است اما در حوضچه‌ی خروجی از مقدار آهن بیشتری استفاده شده که در آخر قطر لجن حاصله در این حوضچه از بقیه‌ی حوضچه‌ها بیشتر است.

غلظت اولیه‌ی نیترات، راندمان حذف این آلاینده کاهش یافت. این امر توسط تئوری محلول‌های رقیق قابل تفسیر است. بدین ترتیب که در محلول‌های رقیق، تشکیل لایه‌ی پراکنده در نزدیکی الکترود سبب یک نرخ واکنش کندتر می‌شود اما در محلول‌های غلیظ لایه‌ی پراکنده اثری بر روی نرخ انتشار یا مهاجرت یون‌های فلزی به سطح الکترود ندارد [۳۸]. در فرآیند الکتروکواگولاسیون با افزایش مقدار آلاینده به میزان بیشتری از کواگولانت احتیاج است [۳۹]. بنابراین با توجه به این‌که غلظت‌های مختلف نیترات در شرایط یکسان محیطی (زمان، ولتاژ، pH) وارد راکتور شدند و

۴- نتیجه‌گیری

نتایج این مرحله از انجام آزمایشات بیان‌گر آن بود که با افزایش شدت ولتاژ جریان، راندمان حذف افزایش یافت. مهم‌ترین دلیل حذف بیشتر نیترات و فسفات با افزایش شدت ولتاژ جریان را می‌توان به افزایش مقدار آهن اکسید شده در فرآیند الکتروشیمیایی و تولید مقادیر بیش‌تر رسوبات و لخته‌های هیدروکسید $Fe(OH)_3$ جهت حذف آلاینده‌ها نسبت داد [۴۰]. به علاوه با افزایش ولتاژ جریان، دانسیته‌ی حباب‌های تشکیل شده طی فرآیند افزایش می‌یابد و اندازه‌ی آن‌ها کاهش می‌یابد که این امر حذف سریع‌تر و بیشتر آلاینده‌ها را به دنبال خواهد داشت [۴۱]. پارامتر مهم تأثیرگذار دیگر بر کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون pH می‌باشد. زیرا گونه‌های منعقد کننده در محلول را تعیین می‌کند بنابراین اثر ویژه‌ای بر مکانیسم حذف دارد [۱۵]. هنگامی که pH بین ۹-۴ باشد یون‌های Al^{3+} ، Fe^{3+} و OH گونه‌های متنوع مونومریک و پلی‌مریک را تولید می‌کنند که سرانجام به $Al(OH)_3$ و $Fe(OH)_3$ نامحلول تغییر شکل می‌دهند [۱۶]. لخته‌های $Al(OH)_3$ و $Fe(OH)_3$ سطح بزرگ‌تری دارند که برای جذب ترکیبات آلی محلول و به دام انداختن ذرات کلوئیدی مناسب هستند و همچنین در این محدوده از pH تراکم عوامل منعقد کننده بیشتر می‌باشد که منجر به کارایی بالای فرآیند می‌گردد [۱۵]. بالا بودن کارکرد فرآیند الکتروکواگولاسیون در محیط قلیایی را می‌توان به واکنش بین فلز آهن و یون هیدروکسید نسبت داد. در pH‌های قلیایی این واکنش شدیدتر است و گونه‌ی $Fe(OH)_3$ که مهم‌ترین عامل در حذف ناخالصی است غالب می‌باشد. در بخش اسیدی محلول یون فرو بیشتر است. ضمن آن که در این حالت قدرت اکسید کنندگی رادیکال هیدروکسیل افزایش می‌یابد. در ولتاژهای بالا، فعالیت‌های آند و کاتد افزایش یافته و یون هیدروکسیل زیاد تولید شده و سرعت خروج یون‌های هیدروژن از محیط به صورت گاز H_2 افزایش یافته و منجر به افزایش pH می‌شود [۲۳]. نتایج حاصل از این مطالعه و پژوهش‌های مشابه نشان می‌دهد که امکان استفاده از روش‌های الکتروشیمیایی در مقیاس واقعی وجود دارد و می‌توان با استفاده از آن نسبت به طراحی سیستم‌های تصفیه‌ی فاضلاب اقدام نمود.

مراجع

- matter and nutrient removal in an activated sludge wastewater treatment system: case study of Bojnurd, Journal of North Khorasan University of Medical Sciences. 5 (2014) 927-933 (in Persian).
- [2] Ş. İrdemez, N. Demircioğlu, Y.Ş. Yıldız, Z. Bingül, The effects of current density and phosphate concentration on phosphate removal from wastewater by electrocoagulation using aluminum and iron plate electrodes, Separation and Purification Technology. 52 (2006) 218-223.
- [3] M. Behbahani, M.R. Alavi Moghaddam, M. Arami, A comparison between aluminum and iron electrodes on removal of phosphate from aqueous solutions by electrocoagulation process, I International Journal of Environmental Research. 5 (2011) 403-412.
- [4] M.E. Karpuzcu, W.T. Stringfellow, Kinetics of nitrate removal in wetlands receiving agricultural drainage, Ecological engineering. 42 (2012) 295-303.
- [5] W.H. Organization, Guidelines for drinking-water quality: recommendations, World Health Organization, 2004.
- [6] E. Metcalf, Wastewater engineering treatment and reuse, McGraw-Hill, New York, 2003.
- [7] A.K. Yadav, L. Singh, A. Mohanty, S. Satya, T.R. Sreekrishnan, Removal of various pollutants from wastewater by electrocoagulation using iron and aluminium electrode, Desalination and water treatment. 46 (2012) 352-358.
- [8] R. Marzieh, S. Mohsen, K. Mahdi, Assessment of Electrocoagulation Method for Simultaneous Removal of Phosphate, Nitrate and COD by Fe Electrodes from Laundry Wastewater, Environmental Health Engineering. (2013) 56-66.
- [9] N. Bektaş, H. Akbulut, H. Inan, A. Dimoglo, Removal of phosphate from aqueous solutions by electro-coagulation, Journal of Hazardous Materials. 106 (2004) 101-105.
- [10] Y. Tian, W. He, D. Liang, W. Yang, B.E. Logan, N. Ren, Effective phosphate removal for advanced water treatment using low energy, migration electric-field assisted electrocoagulation, Water Research. 138 (2018) 129-136.
- [11] Y. Gao, Y.W. Xie, Q. Zhang, A.L. Wang, Y.X. Yu, L.Y. Yang, Intensified nitrate and phosphorus removal in

- [1] M. Shahmoradi, M. Gholami, M. Mahae, E. Abouee Mehrizi, R. Ghorbanpoor, Investigation into organic

- sorption studies, *Chemical Engineering Journal*. 163 (2010) 317–323.
- [21] Y. Tian, W. He, X. Zhu, W. Yang, N. Ren, B.E. Logan, Energy efficient electrocoagulation using an air-breathing cathode to remove nutrients from wastewater, *Chemical Engineering Journal*. 292 (2016) 308–314.
- [22] A. Attour, N. Ben Grich, M. Mouldi Tlili, M. Ben Amor, F. Lapicque, J.-P. Leclerc, Intensification of phosphate removal using electrocoagulation treatment by continuous pH adjustment and optimal electrode connection mode, *Desalination and Water Treatment*. 57 (2016) 13255–13262.
- [23] K.S. Hashim, R. Al Khaddar, N. Jasim, A. Shaw, D. Phipps, P. Kot, M.O. Pedrola, A.W. Alatabi, M. Abdulredha, R. Alawsh, Electrocoagulation as a green technology for phosphate removal from river water, *Separation and Purification Technology*. 210 (2019) 135–144.
- [24] A.S. Kopalal, Ü.B. Ögütveren, Removal of nitrate from water by electroreduction and electrocoagulation, *Journal of hazardous materials*. 89 (2002) 83–94.
- [25] N. Daneshvar, A. Oladegaragoze, N. Djafarzadeh, Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: an investigation of the effect of operational parameters, *Journal of hazardous materials*. 129 (2006) 116–122.
- [26] M.Y.A. Mollah, R. Schennach, J.R. Parga, D.L. Cocke, Electrocoagulation (EC)—science and applications, *Journal of hazardous materials*. 84 (2001) 29–41.
- [27] E. Yüksel, İ.A. Şengil, M. Özacar, The removal of sodium dodecyl sulfate in synthetic wastewater by peroxi-electrocoagulation method, *Chemical Engineering Journal*. 152 (2009) 347–353.
- [28] N.R. Buan, Methanogens: pushing the boundaries of biology, *Emerg. Topics in Life Sciences*. 2 (2018) 629–646.
- [29] P.N.L. Lens, A. Visser, A.J.H. Janssen, L.W.H. Pol, G. Lettinga, Biotechnological treatment of sulfate-rich wastewaters, *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*. 28 (1998) 41–88.
- [30] S.K. Khanal, *Anaerobic biotechnology for bioenergy production: principles and applications*, John Wiley & Sons, 2011.
- an electrolysis-integrated horizontal subsurface-flow constructed wetland, *Water Research*. 108 (2017) 39–45.
- [12] P.K. Holt, G.W. Barton, C.A. Mitchell, The future for electrocoagulation as a localised water treatment technology, *Chemosphere*. 59 (2005) 355–367.
- [13] M. Amini, H. Younesi, N. Bahramifar, Statistical modeling and optimization of the cadmium biosorption process in an aqueous solution using *Aspergillus niger*, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 337 (2009) 67–73.
- [14] U.T. Un, A.S. Kopalal, U.B. Ogutveren, Fluoride removal from water and wastewater with a batch cylindrical electrode using electrocoagulation, *Chemical engineering journal*. 223 (2013) 110–115.
- [15] K.S. Hashim, A. Shaw, R. Al Khaddar, M.O. Pedrola, D. Phipps, Defluoridation of drinking water using a new flow column-electrocoagulation reactor (FCER)-Experimental, statistical, and economic approach, *Journal of environmental management*. 197 (2017) 80–88.
- [16] I. Zongo, J.-P. Leclerc, H.A. Maïga, J. Wéthé, F. Lapicque, Removal of hexavalent chromium from industrial wastewater by electrocoagulation: A comprehensive comparison of aluminium and iron electrodes, *Separation and purification Technology*. 66 (2009) 159–166.
- [17] P.K. Holt, G.W. Barton, M. Wark, C.A. Mitchell, A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 211 (2002) 233–248.
- [18] M. Malakootian, N. Yousefi, The efficiency of electrocoagulation process using aluminum electrodes in removal of hardness from water., *Iranian Journal of Environmental Health Science & Engineering (IJEHSE)*. 6 (2009).
- [19] G. Moussavi, F. Majidi, M. Farzadkia, The influence of operational parameters on elimination of cyanide from wastewater using the electrocoagulation process, *Desalination*. 280 (2011) 127–133.
- [20] A. Bhatnagar, E. Kumar, M. Sillanpää, Nitrate removal from water by nano-alumina: Characterization and

- Treatment of potato chips manufacturing wastewater by electrocoagulation, *Desalination*. 190 (2006) 201–211.
- [39] A.R. Rahmani, M.R. Samarghandi, Electrocoagulation treatment of color solution containing colored index Eriochrome Black T, *J. Water Wastewater*. 69 (2009) 52–58.
- [40] H. Movahedyan, A.M. Seid Mohammadi, A. Assadi, Comparison of different advanced oxidation processes degrading p-chlorophenol in aqueous solution, *journal of environmental health science & engineering* . 3 (2009) 153–160. (in Persian).
- [41] A.J. Chaudhary, N.C. Goswami, S.M. Grimes, Electrolytic removal of hexavalent chromium from aqueous solutions, *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*. 78 (2003) 877–883.
- [42] A.H. El-Shazly, A.A. Al-Zahrani, S.S. Al-Shahrani, Improvement of NO₃-removal from wastewater by using batch electrocoagulation unit with vertical monopolar aluminum electrodes, *International Journal of Electrochemical Science*. 6 (2011) 4141–4149.
- [43] A. Elmidaoui, F. Elhannouni, M.A.M. Sahli, L. Chay, H. Elabbassi, M. Hafsi, D. Largeteau, Pollution of nitrate in Moroccan ground water: removal by electro dialysis, *Desalination*. 136 (2001) 325–332.
- [44] Y.H. Liou, S.-L. Lo, C.-J. Lin, W.H. Kuan, S.C. Weng, Chemical reduction of an unbuffered nitrate solution using catalyzed and uncatalyzed nanoscale iron particles, *Journal of Hazardous Materials*. 127 (2005) 102–110.
- [31] A. Ali, A. Dargahi, M. Pirsahab, The effect of different concentrations of phenol on anaerobic stabilization pond performance in treating petroleum refinery wastewater, *Water and Wastewater*. 1 (2013) 8–61.
- [32] B. Merzouk, B. Gourich, A. Sekki, K. Madani, C. Vial, M. Barkaoui, Studies on the decolorization of textile dye wastewater by continuous electrocoagulation process, *Chemical Engineering Journal*. 149 (2009) 207–214.
- [33] B. Merzouk, K. Madani, A. Sekki, Using electrocoagulation–electroflotation technology to treat synthetic solution and textile wastewater, two case studies, *Desalination*. 250 (2010) 573–577.
- [34] E.A. Vik, D.A. Carlson, A.S. Eikum, E.T. Gjessing, Electrocoagulation of potable water, *Water Res*. 18 (1984) 1355–1360.
- [35] D.D. Mara, H.W. Pearson, Design manual for waste stabilization ponds in Mediterranean countries, Lagoon Technology International Ltda, 1998.
- [36] K.S. Hashim, A. Shaw, R. Al Khaddar, M.O. Pedrola, D. Phipps, Energy efficient electrocoagulation using a new flow column reactor to remove nitrate from drinking water– Experimental, statistical, and economic approach, *Journal of environmental management*. 196 (2017) 224–233.
- [37] X. Chen, G. Chen, P.L. Yue, Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation, *Sep. Purif. Technol*. 19 (2000) 65–76.
- [38] M. Kobya, H. Hiz, E. Senturk, C. Aydinler, E. Demirbas,

چگونه به این مقاله ارجاع دهیم

S. Khoshsima, M. Hadavifar, Gh. Zolfaghari, Investigation of Interaction of Effecting Factors in Phosphate and Nitrate Removal from Municipal Wastewater by Electrocoagulation Process with RSM Approach, *Amirkabir J. Civil Eng.*, 52(6) (2020) 1405-1418.

DOI: [10.22060/ceej.2019.15377.5901](https://doi.org/10.22060/ceej.2019.15377.5901)

