

## بررسی عملکرد فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم از آب

فرزاد هاشم زاده<sup>۱\*</sup>

[farzadhashemzadeh91@gmail.com](mailto:farzadhashemzadeh91@gmail.com)

سید مهدی برقی<sup>۲</sup>

تاریخ دریافت: ۹۸/۴/۹

تاریخ پذیرش: ۹۸/۷/۱۰

### چکیده

**زمینه و هدف :** استفاده روز افزون از فلزات سنگین در صنایع مختلف باعث افزایش تخلیه آن‌ها به محیط زیست شده است. الکتروکواگولاسیون فرآیند پیچیده‌ای با چندین مکانیسم عملیاتی برای حذف آلاینده‌ها می‌باشد که این فرآیند به عنوان روشی مؤثر و مقرون به صرفه جهت حذف فلزات سنگین از آب معرفی شده است. مطالعه حاضر با هدف تعیین عملکرد فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم از آب انجام گرفته است.

**روش بررسی :** در این پژوهش، متغیرهای مورد مطالعه عبارتند از مدت زمان واکنش، فاصله الکترودها از یکدیگر، غلظت اولیه فلزات سنگین، جنس الکترودها و ولتاژ ورودی مورد بررسی قرار گرفتند. جهت انجام این تحقیق از یک پایلوت با حجم ۵/۴ لیتر از جنس پلکسی گلاس به طول ۲۰، عرض ۱۵، ارتفاع ۱۸ سانتی متر و با الکترودهایی از جنس آهن، آلومینیم و استیل به طول و عرض ۱۵ و ضخامت ۰/۲ سانتی متر، محدوده ولتاژ ۰ تا ۴۸ ولت و یک منبع تغذیه جریان مستقیم (DC) استفاده شد.

**یافته‌ها :** راندمان حذف در فرآیند الکتروکواگولاسیون با افزایش ولتاژ و زمان واکنش رابطه مستقیم دارد به طوری که بهترین راندمان حذف در ولتاژ ۴۰ ولت، زمان واکنش ۴۰ دقیقه رخ داده است. با افزایش غلظت اولیه فلزات سنگین از ۱ به ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر درصد حذف برای فلزات سرب، کادمیوم و کروم کاهش یافته است. بیشترین درصد حذف نیز توسط جفت الکترودهای آهن - آلومینیم که فاصله الکترودها ۵ سانتی متر و pH برابر ۳، به دست آمده است.

**بحث و نتیجه گیری :** با توجه به کارایی بسیار خوب فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف فلزات سنگین کروم، سرب و کادمیوم، امکان سنجی حذف فلزات مورد نظر توسط این فرآیند مناسب ارزیابی شده و به عنوان راهکاری نوین در حذف فلزات از پساب‌های صنعتی می‌تواند مورد استفاده قرار گیرد.

**واژه های کلیدی:** فلزات سنگین، ترسیب شیمیایی، انعقاد الکتریکی، محیط‌های آبی.

۱- دکترای مهندسی محیط زیست گرایش آب و فاضلاب، دانشکده منابع طبیعی و محیط زیست، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد علوم و تحقیقات تهران، تهران، ایران. \* (مسئول مکاتبات)

۲- استاد دانشکده مهندسی شیمی دانشگاه صنعتی شریف تهران- ایران.

## **Study on Application of Electrocoagulation Process to Remove Heavy Metals Lead, Cadmium and Chromium from Water**

**Farzad Hashemzadeh<sup>1\*</sup>**

[farzadhashemzadeh91@gmail.com](mailto:farzadhashemzadeh91@gmail.com)

**S. Mehdi Borghei<sup>2</sup>**

Admission Date: October 2, 2019

Date Received: June 30, 2019

### **Abstract**

**Background and Objective:** The increasing use of heavy metals for industrial purposes has caused an increment in discharge of these contaminants as industrial wastewater into the environment. Electrocoagulation is a complicated process with several functional mechanisms to remove pollutants. Use of this process as an effective and efficient method to remove heavy metals from water has been recommended.

**Method:** In this research studied parameters are: reaction time, distance between electrodes, initial heavy metal concentration, electrode material, and inlet voltage and pH value. Then, the effect that any of these parameters was investigated. In order to do that a 5.4-liter pilot from plexiglass with length of 20 cm, width of 15 cm and height of 18 cm with electrodes of iron, aluminum and steel having length and width of 15 cm and thickness of 0.2 cm and voltage between 0 to 48 v and a direct current (DC) power supply was used.

**Findings:** removal efficiency by electrocoagulation is directly related to voltage and reaction time increment, so that the best removal efficiency was occurred in voltage of 40 v and reaction time of 40 min. By increasing the initial concentration of metals from 1 to 50 mg/l, removal percentage of lead, cadmium and chromium was decreased. Most amounts of removal percentage were gained using iron–aluminum electrodes in a condition in which the distance between them was 5 cm and pH value was equal to 3.

**Discussion and Conclusion:** Due to the excellent efficiency of the electrocoagulation process in removing heavy metals of chromium, lead and cadmium, the feasibility of removing the metals desired by this process is evaluated and can be used as a novel solution in removing metal ions from industrial effluents.

**Keywords:** Heavy Metals, Chemical Precipitation, Electrical Coagulation, Aquatic Environment.

---

1- Ph.D., Environmental Engineering (water and wastewater), Faculty of Natural Resources and Environment, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran *\*(Corresponding Author)*

2- Prof., Department of Chemical and Petroleum Engineering, Sharif University of Technology, Tehran, Iran

## مقدمه

در دهه‌ی گذشته ورود آلاینده‌ها با منشأ انسانی مانند فلزات سنگین به محیط زیست به خصوص محیط‌های آبی، به مقدار زیادی افزایش یافته است که به عنوان یک خطر جدی برای حیات محیط‌های آبی به شمار می‌آیند. فلزات سنگین گروهی از فلزات (در حدود ۴۰ عنصر) هستند که از سازنده‌های طبیعی پوسته‌ی زمین بوده و دانسیته‌ای بیش از ۵ گرم بر سانتی متر مکعب دارند (۱).

برخلاف اغلب آلاینده‌های آلی (نظیر مواد آلی‌هالوژن‌دار) فلزات سنگین به طور طبیعی در اشکال مختلف مانند سنگ‌ها، مواد معدنی و خاک‌ها وجود دارند و از طریق فرآیندهای طبیعی (ژئوشیمیایی و هوازدگی) وارد محیط زیست می‌شوند. بنابراین اغلب مقدار معمولی برای غلظت این فلزات به عنوان غلظت زمینه در خاک، رسوبات، آب‌ها و بدن موجودات زنده در نظر گرفته می‌شود (۲). بسیاری از فعالیت‌های انسان از قبیل تولیدات صنعتی، ساخت‌وسازهای ساختمانی، حمل و نقل و کشاورزی باعث آزاد شدن فلزات سنگین و سمی در محیط زیست می‌شوند. میزان ورود این فلزات سنگین به داخل محیط زیست، متجاوز از میزانی است که به وسیله فرآیندهای طبیعی برداشت می‌شوند. بنابراین تجمع فلزات سنگین در محیط زیست قابل ملاحظه است (۳). طبیعتاً فلزات سنگین به دلیل محلول بودن در آب وارد اکوسیستم‌های آبی شده و سبب تخریب این اکوسیستم‌ها می‌شوند. به علاوه با راهیافتن به زنجیره‌های غذایی باعث تهدید سلامت انسان و سایر جانداران می‌شوند. فلزات سنگین در آب آشامیدنی می‌توانند اثرات مخربی بر سلامتی انسان داشته باشند. از جمله این اثرات کاهش رشد اندام‌ها، سرطان، اختلال در سیستم عصبی بدن، اختلال در سیستم دفاعی بدن می‌باشد و در موارد حاد می‌تواند خطر مرگ را به همراه داشته باشد (۴). با توجه به اثرات مهلکی که فلزات سنگین برای انسان و محیط زیست به وجود می‌آورند، نیاز به توجه بیشتر به تولید کمتر و در نهایت لزوم به کارگیری روش‌های نوین و با کارایی بالاتر به منظور حذف کاهش میزان فلزات سنگین در فاضلاب‌ها به خصوص فاضلاب-

های صنعتی دیده می‌شود. یکی از روش‌هایی که اخیراً دلیل کارایی مناسب مورد توجه قرار گرفته است فرایند الکتروکواگولاسیون است (۵).

روش الکتروکواگولاسیون با وجود این که یک روش پیچیده است، اما کارکردن با آن ساده می‌باشد و کارایی حذف بسیار بالایی دارد. روش الکتروکواگولاسیون با کمک گرفتن از چند مکانیسم به صورت همزمان سبب حذف مقادیر بالایی آلاینده، از آب و فاضلاب می‌شود (۴).

الکتروکواگولاسیون دارای یک اتاقت تصفیه بوده که با عبور جریان برق از پساب، سبب تصفیه محدوده وسیعی از فاضلاب‌های مختلف شامل فلزات سنگین، علف کش‌ها، آرسنیک، سیانید، BOD، TDS و TSS می‌شود (۲).

الکتروکواگولاسیون برای تصفیه فاضلاب بهداشتی، تصفیه فاضلاب صنعتی و تصفیه فاضلاب شیمیایی استفاده می‌شود. مزیت اصلی این روش، فراهم نمودن کاتیون‌های فعال بدون احتیاج به افزودن نمک یا سایر مواد منعقد کننده به آب فاضلاب می‌باشد که برای عمل انعقاد مورد نیاز است (۶). الکتروکواگولاسیون از سال ۱۹۷۰ به دلیل مزایای خود به طور فزاینده‌ای در سراسر جهان برای تصفیه فاضلاب‌های صنعتی مورد استفاده قرار گرفته است (۷). مطالعه حاضر با هدف تعیین عملکرد فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم از آب انجام گرفته است.

## روش بررسی

در این تحقیق اطلاعات، یافته‌ها و داده‌های مرتبط با موضوع از طریق انجام مطالعات کتابخانه‌ای و مقالات معتبر علمی و پژوهشی مرتبط موضوع تحقیق جمع آوری گردید. متغیرهای مورد بررسی و مطالعه در این تحقیق مدت زمان واکنش، فاصله‌ی الکترودها از یکدیگر، غلظت فلزات سنگین، ولتاژ اعمال شده و pH بودند.

پابلوت الکتروکواگولاسیون در مقیاس آزمایشگاهی با حجم ۵/۴ لیتر از جنس پلکسی گلاس به طول ۲۰، عرض ۱۵، ارتفاع ۱۸

دستگاه مبدل برق و از طرف دیگر به الکترودها متصل می‌گردد). همچنین در هر مرحله دور دستگاه همزن و ولتاژ مورد نیاز تنظیم گردید (۸).

با روشن نمودن دستگاه‌های مبدل برق و همزن مغناطیسی و آماده نمودن ظروف و وسایل آزمایشگاهی مورد نیاز (بشر ۱۰۰ سی‌سی، پیپت، پیست، قیف شیشه‌ای، کاغذ صافی واتمن ۴۲ و ...)، در هر سری از آزمایش‌ها در زمان‌های مشخص شده و پس از انجام واکنش نمونه‌های لازم از سیال درون راکتور را بر اساس پارامترهای مورد بررسی در این پژوهش، با پیپت ۵۰ سی‌سی برداشته و در درون بشرهای ۱۰۰ سی‌سی آنها را تخلیه می‌کنیم. لازم به ذکر است که نمونه برداری از بین دو الکتروود و از سطح رویی سیال انجام پذیرفت.

در مرحله بعد به منظور انجام عمل هضم اسیدی نمونه، ابتدا میزان ۱۰ سی‌سی اسید نیتریک غلیظ را به هریک از نمونه‌ها اضافه و آنها را بر روی دستگاه هیتر آزمایشگاهی قرار می‌دهیم تا با حرارت ملایم، مقداری از حجم آن‌ها تبخیر شده و به ۲۰ سی‌سی برسد (۹).

سپس مجدداً به نمونه‌ها ۵ سی‌سی اسید نیتریک غلیظ اضافه کرده و زمانی که حجم آن‌ها به ۱۰ سی‌سی رسید، نمونه‌ها را از روی دستگاه هیتر آزمایشگاهی برداشته و ابتدا به کمک قیف شیشه‌ای و کاغذ صافی واتمن ۴۲ آن‌ها را صاف و در درون بالن ژوژه‌ی ۵۰ سی‌سی تخلیه و با آب مقطر آن‌ها را به حجم می‌رسانیم.

سرانجام نمونه‌ها را در داخل ظروف نمونه برداری تخلیه و غلظت فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم را با استفاده از دستگاه جذب اتمی در هریک از نمونه‌ها به طور جداگانه اندازه‌گیری می‌کنیم.

پس از آماده سازی نمونه‌ها در طول موج ۲۱۷ نانومتر (برای عنصر سرب)، ۲۲۸/۸ نانومتر (برای عنصر کادمیوم) و ۳۵۷/۹ نانومتر (برای عنصر کروم) به کمک طیف سنجی جذب اتمی مدل AA.200 ساخت Varian استرالیا غلظت فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم نمونه‌ها تعیین مقدار شد.

بر اساس آزمایش‌های انجام شده، نمونه‌ها توسط دستگاه جذب اتمی اندازه‌گیری و محاسبه گردید. سپس داده‌های بدست آمده

سانتی متر و با الکترودهایی از جنس آهن، آلومینیم و استیل به طول و عرض ۱۵ سانتی متر و ضخامت ۰/۲ سانتی متر ساخته و در بهار سال ۱۳۹۸ در دانشگاه علوم و تحقیقات تهران مورد آزمایش قرار گرفته است. محدوده ولتاژ نیز ۰ تا ۴۸ ولت در نظر گرفته شده و اختلاط آب نیز به کمک همزن مغناطیسی با سرعتیکنواخت ۳۰۰ rpm انجام گرفت.

pH متر مدل 744 pH Meter ساخت کشور آمریکا به سفارش شرکت پارس طب نوین جهت اندازه گیری pH همچنین فور آزمایشگاهی شرکت Memmert آلمان، همزن-های مغناطیسی مدل‌های IKA RH Basic 2 و Yellow Line MST Basic ساخت Imlab فرانسه، هود آزمایشگاهی مدل F51CC شرکت Petronic ایران و هیتر آزمایشگاهی مدل Hotplate / CB500 ساخت Stuart انگلستان به عنوان تجهیزات و دستگاه‌های آزمایشگاهی بودند که طی این پژوهش مورد استفاده قرار گرفتند.

نمک نترات سرب، کادمیوم، دی‌کرومات پتاسیم، هیدروکسید سدیم ساخت شرکت HACH، اسید نیتریک غلیظ ۶۵ % و اسید سولفوریک رقیق ۰.۵ نرمال مواد شیمیایی بودند که مورد استفاده قرار گرفتند.

برای ساخت نمونه‌های آب در هر مرحله از تحقیق از نمک‌های نترات سرب  $(\text{Pb}(\text{NO}_3)_2)$ ، نترات کادمیوم  $(\text{Cd}(\text{NO}_3)_2)$  و دی‌کرومات پتاسیم  $(\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7)$  استفاده شد که متناسب با غلظت‌های مورد نظر فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم در آب، از نمک‌های فوق توزین شده و با آب مقطر به حجم رساندیم.

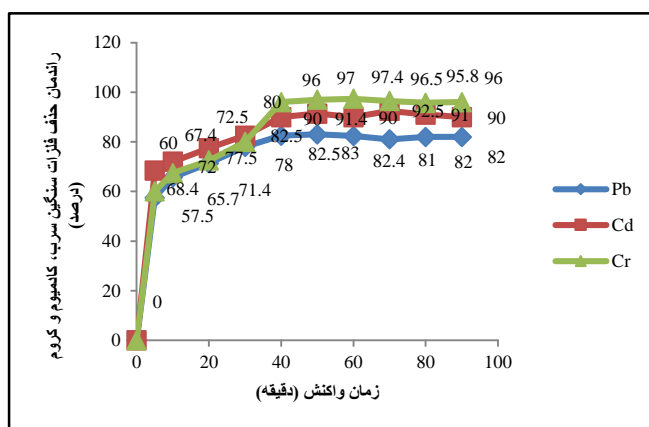
به منظور انجام تحقیق و در هر مرحله، ابتدا نمونه‌های آب با غلظت مورد نیاز فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم را در درون راکتور ریخته و به حجم ۴ لیتر رساندیم. سپس دو صفحه الکترودهای آهنی را با فاصله مشخص شده در مراحل بعد در داخل آن قرار دادیم و به منظور ایجاد اختلاطیکنواخت، یک عدد کیسول مغناطیسی در داخل راکتور انداخته و آن را بر روی دستگاه همزن مغناطیسی قرار دادیم. سپس صفحات الکتروود به دستگاه مبدل برق متصل شد (گیره‌های دستگاه مبدل برق از یک طرف به قطب‌های مثبت (+) و منفی (-)

سنگین برابر با ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر، جنس الکترودها آهن - آهن و ولتاژ که برابر با ۳۰ ولت قرار گرفت و در زمان‌های مختلف ۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰، ۶۰، ۷۰، ۸۰ و ۹۰ دقیقه نمونه برداری انجام پذیرفت. غلظت فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم کلیه نمونه‌های جمع آوری شده در این مرحله، پس از آماده سازی به کمک دستگاه جذب اتمی مدل اندازه‌گیری و درصد حذف آن‌ها مشخص گردید.

را در نرم افزار Excel وارد کرده و بر اساس رابطه علت و معلول با ترسیم نمودار تجزیه و تحلیل صورت پذیرفت.

### یافته‌ها

به منظور بررسی اثر زمان واکنش بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم، آزمایش در شرایطیکسان شامل فاصله بین الکترودها برابر با ۵ سانتی‌متر، غلظت اولیه فلزات

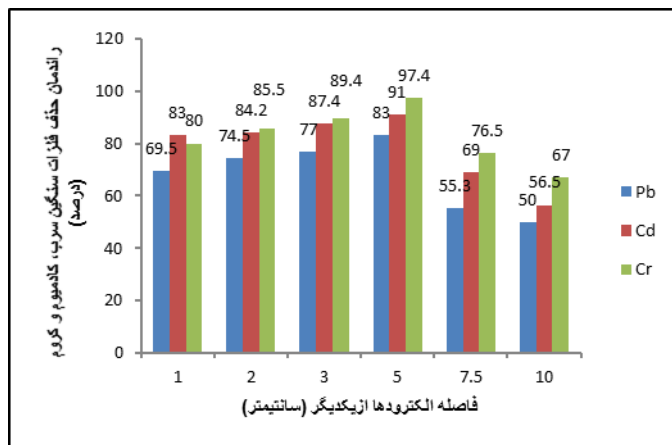


نمودار ۱- بررسی اثر زمان واکنش بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم

Diagram 1. investigating the influence of reaction time on heavy metal removal efficiency for heavy metals lead, cadmium and chromium

در بررسی اثر فاصله الکترودها از یکدیگر بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم، آزمایش در شرایطیکسان شامل زمان واکنش برابر با ۴۰ دقیقه، غلظت اولیه فلزات سنگین برابر با ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر، جنس الکترودها آهن - آهن، ولتاژ جریان ۳۰ ولت و pH اولیه ثابت قرار گرفت و در فواصل مختلف ۱، ۲، ۳، ۵، ۷/۵ و ۱۰ سانتی‌متر الکترودها از یکدیگر نمونه برداری انجام پذیرفت.

چنان‌که در نمودار ۱ ملاحظه می‌گردد با افزایش زمان واکنش درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم افزایش می‌یابد، به طوری‌که از زمان واکنش ۵ دقیقه تا ۴۰ دقیقه درصد حذف فلز سرب از ۵۷/۵٪ به ۸۲/۵٪، درصد حذف فلز کادمیوم از ۶۸/۴٪ به ۹۰٪ و درصد حذف فلز کروم از ۶۰٪ به ۹۶٪ افزایش می‌یابد و از آن پس با افزایش زمان واکنش تا ۹۰ دقیقه، درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم تغییر چندانی ننموده و تقریباً ثابت می‌ماند. لذا زمان واکنش ۴۰ دقیقه به عنوان زمان واکنش بهینه انتخاب و در مراحل بعدی تحقیق مورد استفاده قرار گرفت.

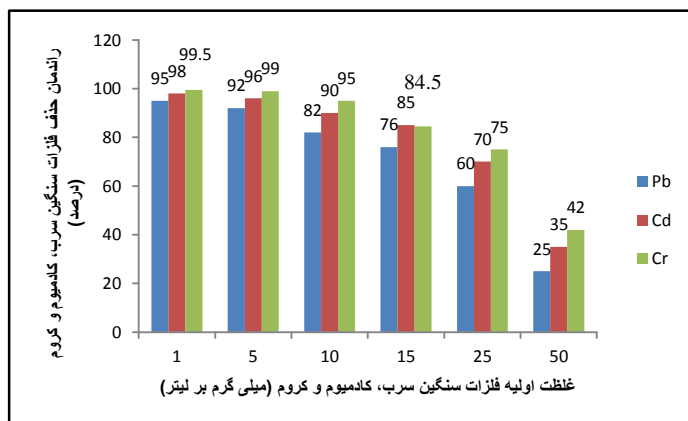


نمودار ۲- بررسی اثر فاصله الکترودها از یکدیگر بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم

Diagram 2. Investigating the effect of distance between electrodes on heavy metal removal efficiency for heavy metals lead, cadmium and chromium

سنگین کروم در نمونه‌های آب بیشتر از درصد حذف فلزات سنگین سرب و کادمیوم می‌باشد. برای بررسی اثر غلظت اولیه بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم، آزمایش در شرایط یکسان شامل زمان واکنش برابر با ۴۰ دقیقه، فاصله الکترودها از یکدیگر برابر با ۵ سانتی‌متر، جنس الکترودها آهن - آهن، ولتاژ جریان ۳۰ ولت و pH اولیه ثابت قرار گرفت و در غلظت‌های مختلف ۱، ۵، ۱۰، ۲۵، ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم نمونه‌برداری انجام پذیرفت.

چنانچه در نمودار ۲ ملاحظه می‌گردد با افزایش فاصله الکترودها از یکدیگر (از فاصله ۱ سانتی‌متر تا ۵ سانتی‌متر) درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم افزایش می‌یابد، به طوری که درصد حذف فلز سرب از ۶۹/۵٪ به ۸۳٪، درصد حذف فلز کادمیوم از ۸۳٪ به ۹۱٪ و درصد حذف فلز کروم از ۸۰٪ به ۹۷/۴٪ افزایش می‌یابد و از آن پس با افزایش فاصله الکترودها از یکدیگر تا فاصله ۱۰ سانتی‌متر، درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم کاهش می‌یابد. لذا فاصله ۵ سانتی‌متر به عنوان فاصله بهینه الکترودها از یکدیگر انتخاب و در مراحل بعدی تحقیق مورد استفاده قرار گرفت. همچنین، چنان‌که در نمودار ۲ مشاهده می‌گردد در فواصل قرارگیری یکسان الکترودها از یکدیگر همواره درصد حذف فلز

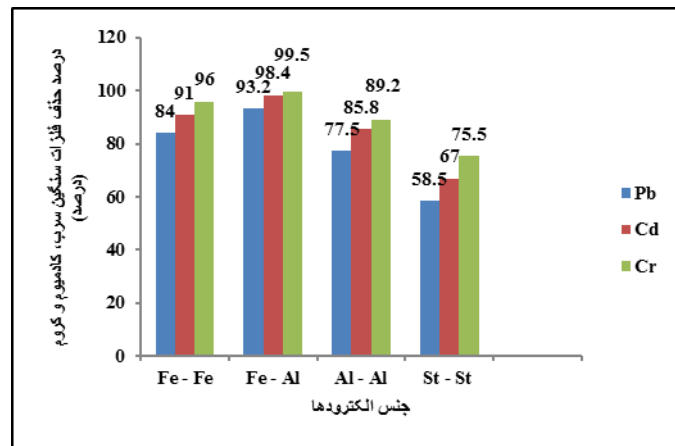


نمودار ۳- بررسی اثر تغییرات غلظت بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم

Diagram 3. study on the effect of initial heavy metal concentration on heavy metal removal efficiency for heavy metals lead, cadmium and chromium

در بررسی اثر جنس الکترودها بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم، آزمایش در شرایط یکسان شامل زمان واکنش برابر با ۴۰ دقیقه، فاصله الکترودها از یکدیگر برابر با ۵ سانتیمتر، غلظت اولیه فلزات سنگین ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر، ولتاژ جریان ۳۰ ولت و pH اولیه ثابت قرار گرفت و در جنس‌های مختلف آهن - آهن، آهن - آلومینیوم، آلومینیوم - آلومینیوم و استیل - استیل نمونه برداری انجام پذیرفت.

چنان‌که در نمودار ۳ ملاحظه می‌گردد با افزایش غلظت اولیه فلزات سنگین درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم کاهش می‌یابد، به طوری‌که از غلظت ۱ میلی‌گرم بر لیتر تا ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر درصد حذف فلز سرب از ۹۵٪ به ۲۵٪، درصد حذف فلز کادمیوم از ۹۸٪ به ۳۵٪ و درصد حذف فلز کروم از ۹۹/۵٪ به ۴۲٪ کاهش می‌یابد. لذا غلظت ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر انتخاب و در مراحل بعدی تحقیق مورد استفاده قرار گرفت.



نمودار ۴- بررسی اثر جنس الکترودها بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم

Diagram 4. study on the effect of electrode material on contaminant removal efficiency for heavy metals lead, cadmium and chromium

برای بررسی اثر ولتاژ جریان بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم، آزمایش در شرایط یکسان شامل زمان واکنش برابر با ۴۰ دقیقه، فاصله الکترودها از یکدیگر برابر با ۵ سانتی‌متر، غلظت اولیه فلزات سنگین ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر، جنس الکترودها آهن - آهن، آلومینیوم - آلومینیوم و استیل - استیل ثابت قرار گرفت و در ولتاژهای مختلف ۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰ و ۴۰ ولت نمونه برداری انجام پذیرفت.

چنان‌که در نمودار ۴ ملاحظه می‌گردد با استفاده از جنس‌های مختلف الکترودها (آهن - آهن، آهن - آلومینیوم، آلومینیوم - آلومینیوم و استیل - استیل) درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم تغییر می‌کند، به طوری‌که بالاترین درصد حذف با استفاده از الکترودهای آهن - آلومینیوم حاصل شد که برای فلز سرب ۹۳/۲٪، فلز کادمیوم ۹۸/۴٪ و فلز کروم ۹۹/۵٪ می‌باشد و کمترین درصد حذف با استفاده از الکترودهای استیل - استیل حاصل شد که برای فلز سرب ۵۸/۵٪، فلز کادمیوم ۶۷٪ و فلز کروم ۷۵/۵٪ می‌باشد. لذا جنس الکترودهای آهن - آلومینیوم به عنوان جنس الکترودها بهینه انتخاب گردید.

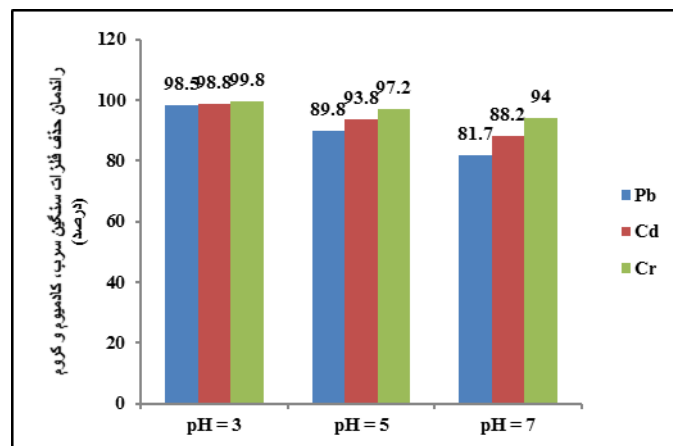


نمودار ۵- بررسی اثر ولتاژ جریان بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم

Diagram 5. investigating the effect of voltage on pollutant removal efficiency for heavy metals lead, cadmium and chromium

برای بررسی اثر pH بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم، آزمایش در شرایط یکسان، شامل زمان واکنش برابر با ۴۰ دقیقه، فاصله الکترودها از یکدیگر برابر با ۵ سانتی‌متر، غلظت اولیه فلزات سنگین ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر، جنس الکترودها آهن - آهنو ولتاژ جریان ۳۰ ولت قرار گرفت و در pHهای متغیر ۳، ۵ و ۷ نمونه برداری انجام پذیرفت. نمودار ۶ بررسی اثر pH بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم را نشان می‌دهد.

نمودار ۵ نشان داد با افزایش ولتاژ جریان درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم افزایش می‌یابد، به طوری که از ولتاژ ۵ ولت تا ۴۰ ولت درصد حذف فلز سرب از ۳۷/۵٪ به ۹۹/۷٪، درصد حذف فلز کادمیوم از ۵۰/۵٪ به ۹۷/۸٪ و درصد حذف فلز کروم از ۴۶٪ به ۹۹/۷٪ افزایش می‌یابد. لذا ولتاژ جریان ۴۰ ولت به عنوان ولتاژ بهینه انتخاب گردید. همچنین در نمودار ۵ مشاهده می‌گردد با افزایش ولتاژ جریان (۴۰ - ۵ ولت) همواره درصد حذف فلز سنگین کروم در نمونه‌های آب بیشتر از درصد حذف فلزات سنگین سرب و کادمیوم می‌باشد.



نمودار ۶- بررسی اثر pH بر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم

Diagram 6. study on the impact that pH value has on heavy metal removal efficiency for heavy metals lead, cadmium and chromium

۷ درصد حذف فلز سرب از ۹۸/۵٪ به ۸۱/۷٪، درصد حذف فلز کادمیوم از ۹۸/۸٪ به ۸۸/۲٪ و درصد حذف فلز کروم از

نمودار ۶ نشان با افزایش pH درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم کاهش می‌یابد، به طوری که از pH ۳ به



مقاومت محلول نیز افزایش (خوردگی الکترودها کمتر) و در نتیجه شدت جریان کاهش یافته و در نهایت راندمان حذف نیز کاهش می‌یابد که به منظور ثابت نگه داشتن شدت جریان می‌بایست میزان ولتاژ افزایش یابد. همچنین کاهش جریان سبب عدم تولید یون‌های آهن و هیدروکسیل به مقدار کافی برای تشکیل لخته و حذف فلز است. اسکوبار و همکاران نیز در سال ۲۰۰۶ صحت نتیجه به دست آمده در مورد افزایش فاصله بین الکترودها را تصدیق می‌کنند. به این صورت که انتظار می‌رود که برخورد کمتری بین یون‌های آهن تولیدی با یون‌های هیدروکسیل به وقوع بپیوندد و لخته‌های کمتری تشکیل شود (۱۲). در این تحقیق از فاصله‌ی ۵-۱ سانتی‌متر الکترودها از یکدیگر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم افزایش می‌یابد؛ زیرا سطح الکترودها ثابت بوده و در نتیجه میزان جریان ایجاد شده و میزان تشکیل فلوک‌ها نیز ثابت است، ولی در فاصله‌های بالاتر الکترودها از یکدیگر به دلیل وجود جریان‌های هیدرولیکی و برخورد بین ذرات، احتمال تشکیل فلوک‌های درشت‌تر بیشتر و انعقاد جارویی صورت می‌گیرد که در این تحقیق نیز از فاصله‌ی ۱۰-۵ سانتی‌متر الکترودها از یکدیگر راندمان حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم کاهش می‌یابد. پونس و همکاران در سال ۲۰۰۵ در تحقیقی فرآیند الکتروکواگولاسیون برای ارزیابی تصفیه‌ی محلول ساختگی جیوه (II) با غلظت  $2 \times 10^{-5}$  مولار را مورد بررسی قرار داده‌اند. در این تحقیق از الکترودهای آهن و آلومینیوم استفاده شد. وقتی فاصله بین الکترودها ۳ سانتی‌متر بود، راندمان حذف بالای ۹۹٪ و شدت جریان در محدوده (A  $dm^{-2}$  ۳/۱۲۵ - ۲/۵) بود (۱۳).

از عوامل مؤثر دیگر بر راندمان حذف فلزات سنگین، غلظت اولیه فلزات سنگین موجود در آب می‌باشد. کنترل راهبری و فعل و انفعالات شیمیایی سیستم، کارایی و قابلیت اطمینان را به همراه دارد. به علاوه پیچیدگی فعل و انفعالات آلاینده‌ها (نوع و غلظت) با الکترودهای فلزی، اثرناپذیرسازی الکترودها ناحیه عملیاتی باید مورد توجه قرار بگیرد (۱۴). در تحقیق یاد شده با افزایش غلظت اولیه فلزات سنگین درصد حذف فلزات

۹۹/۸٪ به ۹۴٪ کاهش می‌یابد. لذا pH ۳ به عنوان pH بهینه انتخاب گردید.

### بحث و نتیجه گیری

در این پژوهش، فرآیند الکتروکواگولاسیون به عنوان یک فناوری تصفیه به منظور حذف فلزات سنگین (سرب، کادمیوم و کروم) مورد استفاده قرار گرفت و راندمان حذف آن در شرایط مختلف بررسی گردید.

زمان واکنش در حذف آلاینده‌ها اثر مهمی داشته و افزایش زمان انعقاد الکتریکی نقش بسزایی در انجام فرآیند الکتروکواگولاسیون داشته است. کارایی حذف مستقیماً بستگی به غلظت یون‌های تولیدی در الکترودها دارد که با افزایش زمان الکترولیز، غلظت یون‌های تولیدی افزایش یافته و در نتیجه آن لخته‌های هیدروکسید نیز افزایش می‌یابد (۱۰). دلیل این امر نیز مصرف بیشتر ماده منعقدکننده با گذشت زمان بوده که می‌تواند باعث افزایش درصد حذف و کاهش غلظت آلاینده گردد که نتیجه حاصل شده نیز با تحقیقات انجام شده‌ی زیر همخوانی دارد. هولت و همکاران در سال ۲۰۰۲ در مطالعه‌ای با شرایط مشابه و استفاده از الکترودهای آهن و آلومینیوم، کارایی روش الکتروکواگولاسیون در حذف موردی فلز سنگین کادمیوم موجود در محیط‌های آبی را مورد بررسی قرار داده‌اند که بیشترین راندمان حذف کادمیوم در زمان ماند محلول ۴۰ دقیقه می‌باشد (۱۱). آخوندی و همکاران نیز در سال ۲۰۱۲ پژوهشی مشابه به کاربرد فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف فلز کادمیوم از آب پرداخته و بیشترین راندمان حذف نیز در زمان ۴۰ دقیقه به دست آمده است. لیکن جهت رعایت نکات اقتصادی و کاهش هزینه در عملیات اجرایی، می‌بایست زمان‌هایی را که در آن‌ها راندمان حذف مناسب و تأمین کننده استانداردهای سازمان محیط زیست با حداقل زمان و هزینه حاصل می‌گردد، انتخاب نمود.

با افزایش فاصله بین جفت الکترودها و کاتد، در صورت ثابت بودن اختلاف پتانسیل، شدت جریان کاهش می‌یابد و با توجه به ثابت ماندن مقدار الکترولیت و افزایش فاصله بین الکترودها،

خورده می‌شود، ولی استیل اکسید کنندگی کمتری دارد و خوردگی آن در مقایسه با آهن بسیار کمتر است. لذا جفت الکتروده آهن - آلومینیوم به عنوان جنس الکتروده بهینه در این آزمایش انتخاب گردید؛ زیرا بیشترین راندمان حذف را برای هر سه فلز سرب، کادمیوم و کروم دارا می‌باشد. این امر با نتایج مطالعات پیشین که توسط مرزوک و همکاران در سال ۲۰۱۰ که به بررسی حذف موردی فلز سنگین کروم شش ظرفیتی از محیط‌های آبی انجام شد، مطابقت دارد. در این مطالعات نیز بیشترین میزان حذف کروم شش ظرفیتی در شرایط الکترودهای آهنی حاصل گردید (۱۸).

یکی از مهمترین پارامترهایی که می‌تواند بر حذف راندمان تخریب در فرآیند الکتروکواگولاسیون مؤثر باشد، شدت جریانیا ولتاژ کاربردی است. شدت جریان الکتریسیته در فرآیند انعقاد الکتریکی، نه تنها تعیین کننده نرخ مقدار کواگولانت تزریقی به محلول است، بلکه همچنین بر روی نرخ تولید حباب‌ها و اندازه و رشد فلاک‌های تولیدی نیز مؤثر است که می‌تواند راندمان تصفیه فرآیند انعقاد الکتریکی را تحت تأثیر قرار دهد (۱۴). در تحقیقاتی که بیشترین راندمان حذف در ولتاژ ۴۰ ولت و کمترین راندمان حذف در شرایطی حاصل شد که ولتاژ در کمترین مقدار خود یعنی ۵ ولت بود. این امر بیانگر آن است که در ولتاژ بالا، مقدار کواگولانت اکسید شده افزایش می‌یابد که نتیجه آن تولید بیشتر رسوبات و لخته‌های هیدروکسید جهت حذف آلاینده‌ها است. به علاوه این نکته به اثبات رسیده است که با افزایش دانسیته جریان، دانسیته حباب‌ها افزایش و اندازه‌ی آن‌ها کاهش می‌یابد و این امر حذف سریعتر و بیشتر آلاینده‌ها را به دنبال خواهد داشت (۱۶). نوری و همکاران در سال ۲۰۱۰ در مطالعه‌ای امکان‌سنجی استفاده از فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف فلز سنگین روی از محیط‌های آبی را بررسی کرده‌اند. نتایج داد که حداکثر راندمان حذف در زمان تماس ۶۰ دقیقه و اختلاف پتانسیل ۴۰ ولت معادل بیش از ۹۹٪ حاصل شده است (۱۹). با اعمال بالاترین ولتاژ (۴۰ ولت) سریع‌ترین نتایج تصفیه حاصل شد و تصفیه بهینه فقط در طی ۱۵ دقیقه انجام گرفت. بذرافشان و محوی در سال ۲۰۰۷ در مطالعه دیگری کاربرد فرآیند الکتروکواگولاسیون با استفاده از

سنگین سرب، کادمیوم و کروم کاهش می‌یابد. در طی فرآیند الکتروکواگولاسیون با الکترودهای آهنی، راندمان حذف با افزایش غلظت اولیه این عناصر کاهش می‌یابد، به این دلیل که مقدار ماده‌ی منعقدکننده کمتری در سطوح مساوی توسط فلوک‌ها جذب می‌شود، زیرا ظرفیت فلوک‌های یک مقدار مشخصی است و وقتی این ظرفیت در طی فرآیند الکتروکواگولاسیون تکمیل می‌گردد، دیگر ظرفیت فلوک‌ها ثابت شده و جذبی صورت نمی‌گیرد و در نتیجه حذفی نیز در پی ندارد. نتایج حاصل از آزمایش‌ها نشان داد غلظت اولیه‌ی فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم می‌تواند راندمان حذف را تحت تأثیر قرار دهد؛ به طوری که در غلظت‌های اولیه بالاتر راندمان حذف کاهش می‌یابد و با توجه به مطالعه محوی و همکاران در سال ۲۰۰۷ در حذف کروم از آب توسط الکتروکواگولاسیون با الکترودهای آلومینیومی به نظر می‌رسد در این غلظت‌ها به ولتاژهای بالاتر با زمان‌های واکنش طولانی‌تری نیاز است. این امر همچنین با نتایج مطالعات گذشته که توسط فو و همکاران در سال ۲۰۱۱ که بررسی حذف موردی فلز سنگین روی و مس از محیط‌های آبی انجام شد، مطابقت دارد (۱۵).

در فرآیندهای الکتروشیمیایی جنس الکتروده انتخابی تأثیر چشمگیری در کارایی حذف دارد. بنابراین انتخاب جنس مناسبی از الکتروده مهم است و همچنین جنس الکتروده انتخابی برای تصفیه آب آشامیدنی بایستی برای سلامتی انسان غیرسمی باشد. از این رو الکترودهایی از جنس آهن، آلومینیوم، استیل و تیتانیوم به دلیل غیرسمی بودن، ارزانی و قابلیت دسترسی آسان انتخاب می‌شوند (۱۶). معمول‌ترین فلزات مصرفی برای الکتروکواگولاسیون، آلومینیوم و آهن هستند. وقتی از برق مستقیم استفاده می‌شود، آن‌ها شروع به تجزیه‌ی الکتروشیمیایی و تولیدیون‌های  $Al^{2+}$  و  $Fe^{3+}$  می‌کنند که منعقدکننده‌های خوبی می‌باشند (۱۷). نتایج حاصل شده نشان داد که بیشترین راندمان حذف مربوط به جفت الکتروده آهن - آلومینیوم و کمترین راندمان حذف مربوط به جفت الکتروده استیل - استیل بوده است؛ زیرا آهن اکسیدکننده‌ی قوی‌تر در مقایسه با استیل است و زودتر وارد واکنش شده و سریعتر

محیط‌های آبی در شهر تهران را مورد بررسی قرار داده‌اند. نتایج آزمایش‌ها حاکی از آن بود که بالاترین راندمان حذف یون کروم در pH برابر ۳ و اختلاف پتانسیل ۴۰ ولت حاصل می‌شود (۱۴).

بر اساس نتایج بدست آمده و مقایسه نتایج با دیگر پژوهش‌ها، در مجموع در این تحقیق با توجه موثر بودن، کارایی بسیار خوب و همچنین راندمان بالا در فرآیند حذف فلزات سنگین کروم، سرب و کادمیوم توسط فرآیند الکتروکواگولاسیون، امکان سنجی حذف فلزات مورد نظر توسط این فرآیند بسیار مطلوب ارزیابی شده و به عنوان راهکاری نوین و نویدبخش در حذف فلزات از پساب‌های صنعتی می‌تواند مورد استفاده قرار گیرد.

## Reference

1. Hunsom, M., et al. (2005). "Electrochemical treatment of heavy metals (Cu<sup>2+</sup>, Cr<sup>6+</sup>, Ni<sup>2+</sup>) from industrial effluent and modeling of copper reduction." *Water Research* 39(4): 610-616.
2. Gao, P., et al. (2005). "Removal of chromium (VI) from wastewater by combined electrocoagulation-electroflotation without a filter." *Separation and purification technology* 43(2): 117-123.
3. Shafaei, A., et al. (2010). "Removal of Mn<sup>2+</sup> ions from synthetic wastewater by electrocoagulation process." *Desalination* 260(1-3): 23-28.
4. Heidmann, I. and W. Calmano (2008). "Removal of Cr (VI) from model wastewaters by electrocoagulation with Fe electrodes." *Separation and purification technology* 61(1): 15-21.
5. Chen, G. (2004). "Electrochemical technologies in wastewater treatment." *Separation and purification technology* 38(1): 11-41.
6. Chen, X., et al. (2002). "Investigation on the electrolysis voltage of

الکترودهای آلومینیومی در حذف فلز سنگین کادمیوم از محیط‌های آبی در شهر تهران را بررسی کرده‌اند. نتایج حاصل از انجام آزمایش‌ها حاکی از آن است که بالاترین راندمان حذف یون کادمیوم در اختلاف پتانسیل ۴۰ ولت حاصل شده است. یکی از عوامل مهم و تأثیرگذار در فرآیند الکتروکواگولاسیون می‌باشد. pH بر روی تشکیل گونه‌های هیدروکسید فلزی و مکانیسم حذفیون‌ها و آلاینده‌ها تأثیر معناداری دارد. در pHهای پایین‌تر به خصوص در شرایط اسیدی گونه‌های  $Fe(OH)^+$  و  $Fe(OH)^{2+}$  تولید می‌شوند و با افزایش آن، راندمان فرآیند نیز کاهش می‌یابد. معمولاً pH در مدت عملکرد فرآیند الکتروکواگولاسیون تغییر می‌کند و این تغییر به نوع الکترودها به کار رفته و pH اولیه بستگی دارد. تغییر pH در طول فرآیند به تشکیل گاز H<sub>2</sub> در الکتروکاتد و تجمع یون‌های هیدروکسید در محلول نسبت داده می‌شود (۲۰). در تحقیقاتی که در بررسی نمونه شاهد هیچ تغییر غلظتی مشاهده نشده است، اما در نمونه‌های اندازه‌گیری شده با افزایش pH درصد حذف فلزات سنگین سرب، کادمیوم و کروم کاهش می‌یابد و با پایین آمدن pH و ایجاد شرایط اسیدی به دلیل تشکیل هیدروکسیدهای فلزی و گاز هیدروژن بیشتر، فرآیند الکتروکواگولاسیون بهتر انجام شده و حذف بیشتر فلزات سنگین را در پی دارد؛ لذا pH=۳ (pH اسیدی) به عنوان pH بهینه انتخاب گردید. در pHهای بالا قبل از فرآیند الکتروکواگولاسیون بین الکترودها و آلاینده تشکیل شود، فلز سنگین سریع رسوب کرده و حذف می‌شود و دیگر نیازی به انجام فرآیند الکتروکواگولاسیون جهت حذف فلزات سنگین نمی‌باشد. اکیل و همکاران در سال ۲۰۱۱ در مطالعه‌ای فرآیند الکتروکواگولاسیون و انعقاد شیمیایی جهت حذف فلزات سنگین بررسی کرده‌اند. در این مطالعه در طی فرآیند الکتروکواگولاسیون با الکترودهای آهنی در pH=۳ راندمان حذف مس ۹۹/۹٪، کروم ۹۹/۹٪ و نیکل ۹۸٪ حاصل شد (۸). محوی و همکاران نیز در سال ۲۰۰۷ در پژوهشی به قابلیت استفاده از فرآیند الکتروکواگولاسیون با استفاده از الکترودهای آلومینیومی در حذف فلز سنگین کروم (Cr<sup>+6</sup>) از

- Electrocoagulation Process Using Aluminum Electrodes." *J. of Water and Wastewater* 62: 28-34.
15. Fu, F. and Q. Wang (2011). "Removal of heavy metal ions from wastewaters: a review." *Journal of environmental management* 92(3): 407-418.
  16. Ciorba, G. A., et al. (2000). "Correlation between organic component and electrode material: consequences on removal of surfactants from wastewater." *Electrochimica Acta* 46(2-3): 297-303.
  17. Heidmann, I. and W. Calmano (2008). "Removal of Zn (II), Cu (II), Ni (II), Ag (I) and Cr (VI) present in aqueous solutions by aluminium electrocoagulation." *Journal of Hazardous Materials* 152(3): 934-941.
  18. Merzouk, B., et al. (2010). "Using electrocoagulation–electroflotation technology to treat synthetic solution and textile wastewater, two case studies." *Desalination* 250(2): 573-577.
  19. Nouri, J., et al. (2010). "Application of electrocoagulation process in removal of zinc and copper from aqueous solutions by aluminum electrodes." *International Journal of Environmental Research* 4(2): 201-208.
  20. Nekhunguni, P. M. (2017). Sorption of uranium and arsenic onto iron hydroxide/oxide modified zeolite. electrocoagulation." *Chemical Engineering Science* 57(13): 2449-2455.
  7. Parga, J. R., et al. (2005). "Arsenic removal via electrocoagulation from heavy metal contaminated groundwater in La Comarca Lagunera Mexico." *Journal of Hazardous Materials* 124(1-3): 247-254.
  8. Akbal, F. and S. Camcı (2011). "Copper, chromium and nickel removal from metal plating wastewater by electrocoagulation." *Desalination* 269(1-3): 214-222.
  9. Adhoum, N., et al. (2004). "Treatment of electroplating wastewater containing Cu<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup> and Cr (VI) by electrocoagulation." *Journal of Hazardous Materials* 112(3): 207-213.
  10. AKHONDI, A., et al. (2012). "The effectiveness of electro coagulation process for the removal of cadmium from water."
  11. Holt, P., et al. (1999). "Electrocoagulation as a wastewater treatment." *The Third Annual Australian Environmental Engineering Research Event* 1000: 41-46.
  12. Escobar, C., et al. (2006). "Optimization of the electrocoagulation process for the removal of copper, lead and cadmium in natural waters and simulated wastewater." *Journal of environmental management* 81(4): 384-391.
  13. Alinsafi, A., et al. (2005). "Electrocoagulation of reactive textile dyes and textile wastewater." *Chemical engineering and processing: Process intensification* 44(4): 461-470.
  14. Mahvi, A. H., et al. (2007). "Chromium (Cr) Removal from Aqueous Environments by