

## بررسی کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون با الکترود آهن در حذف اسیدهیومیک از محیط‌های آبی در حضور کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده

عبدالمطلب صید محمدی<sup>۱</sup>، قربان عسگری<sup>۱</sup>، احمد رجبی زاده<sup>۲</sup>، علی پور محمدی<sup>۳</sup>، محمد احمدیان<sup>۳</sup>

### چکیده

**مقدمه:** وجود مواد آلی طبیعی در منابع آبی مشکلات فراوانی در فرآیند تصفیه آب ایجاد می‌کند. پتانسیل بالقوه این ترکیبات به عنوان پیش ساز تشکیل تری هالومتان‌ها، لزوم حذف این ترکیبات از آب را بیش از پیش افزایش داده است. در مطالعه حاضر کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده کم هزینه و مؤثر در فرآیند الکتروکواگولاسیون به همراه الکترود آهن برای حذف ماده آلی اسید هیومیک از محیط‌های آبی مورد ارزیابی قرار گرفت.

**روش‌ها:** در این مطالعه از یک راکتور ناپیوسته همراه چهار عدد الکترود آهن به ابعاد  $20 \times 20 \times 20$  mm به حجم ۱ لیتر مجهز به دستگاه مولد جریان الکتریسیته استفاده شد. تأثیر پارامترهای ولتاژ، غلظت اولیه اسید هیومیک، غلظت کیتوزان و pH در فرآیند مورد بررسی قرار گرفت. از نرم افزار اکسل برای تجزیه و تحلیل نتایج حاصل از این بررسی‌ها استفاده شد.

**نتایج:** نتایج مطالعه حاضر بیانگر آن است که  $pH=6$ ، ولتاژ ۴۰ ولت و غلظت کیتوزان برابر  $2 \text{ mg/L}$  شرایط بهینه فرآیند می‌باشد. همچنین در مقادیر بهینه کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده در فرآیند الکتروکواگولاسیون، در طی زمان واکنش ۶۰ دقیقه، راندمان حذف اسید هیومیک ۶۸ درصد حاصل شد.

**بحث و نتیجه‌گیری:** براساس یافته‌های مطالعه حاضر فرآیند الکتروکواگولاسیون، فرآیندی مناسب در حذف اسید هیومیک می‌باشد. همچنین کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده‌ای مناسب در فرآیند الکتروکواگولاسیون به همراه الکترود آهن عمل نموده و سبب افزایش کارایی فرآیند می‌گردد.

**واژگان کلیدی:** الکتروکواگولاسیون، اسیدهیومیک، کمک منعقد کننده، کیتوزان

### مقدمه

این منابع آبی را با محدودیت‌هایی همراه کرده است (۲). در این میان ترکیبات آلی طبیعی NOMs (Natural Organic Matters) یکی از مهم‌ترین عوامل تأثیر گذار در کاهش کیفیت آب‌های سطحی می‌باشند. اسیدهای هیومیکی از جمله مواد پلی الکترولیت آلی هستند که قسمت عمده کربن آلی محلول موجود در محیط‌های آبی را تشکیل می‌دهند (۳). ترکیبات هیومیکی توسط فرآیندهای

امروزه تأمین آب سالم و بهداشتی به علت افزایش تقاضای مصرف آب ناشی از رشد فزاینده جمعیت و ورود آلاینده‌های متعدد به آن با چالش‌های فراوانی مواجه شده است (۱). در میان منابع آبی، آب‌های سطحی از گزینه‌های مهم تأمین آب آشامیدنی به شمار می‌آیند، اما حضور مواد معلق، ذرات کلوئیدی، ترکیبات آلی طبیعی و ... در آن‌ها امکان استفاده از

۱- استادیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران

۲- مربی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی کرمان، کرمان، ایران

۳- کارشناس ارشد، مرکز تحقیقات توسعه اجتماعی و ارتقاء سلامت، دانشگاه علوم پزشکی کرمانشاه، کرمانشاه، ایران

Email: moh.ahmadian@yahoo.com

نویسنده‌ی مسئول: محمد احمدیان

فکس: ۰۸۳۱۴۲۳۹۰۵۰

تلفن: ۰۸۳۱۴۲۱۶۱۴۳ مرکز تحقیقات توسعه اجتماعی و ارتقاء سلامت

مورد استفاده در تصفیه خانه‌های آب به مقدار اندک حذف می‌شوند، لذا می‌توانند وارد شبکه توزیع آب آشامیدنی شوند (۲،۳). در گذشته این ترکیبات تنها از جنبه‌های زیبا شناختی و ایجاد رنگ در آب آشامیدنی مورد توجه قرار گرفته بودند، اما امروزه پتانسیل بالقوه مواد هیومیکی خصوصاً نقش آن‌ها به عنوان پیش‌ساز تشکیل ترکیبات جانبی گندزدایی DBPs (Disinfection By-Products) از جمله تری هالومتان‌ها (THMs (Trihalomethanes) و هالواستیک اسیدها (HAAs (Haloacetic Acids)، اهمیت ویژه‌ای دارد و لزوم حذف این ترکیبات از آب را بیش از پیش مشخص می‌سازد (۴،۵). غلظت مجاز ترکیبات جانبی گندزدایی (تری هالومتان) در آب آشامیدنی توسط سازمان حفاظت محیط زیست آمریکا به ترتیب در مرحله اول اجرای قوانین حدود ۰/۰۸ میلی‌گرم در لیتر و در مرحله دوم حدود ۰/۰۳ و ۰/۰۴ میلی‌گرم در لیتر اعلام شده است (۶). در فرآیندهای متداول تصفیه آب که در تصفیه خانه‌های آب انجام می‌شود، تنها در حدود ۳۰ درصد از ترکیبات هیومیکی از آب حذف می‌شود (۶). فرآیندهای انعقاد شیمیایی پیشرفته، اکسیداسیون، جذب سطحی، تبادل یون و فیلتراسیون توسط انواع غشاهای از روش‌های متداول مورد استفاده در حذف این ترکیبات از محیط‌های آبی هستند. اما هر یک از روش‌های مذکور دارای معایبی هستند، به عنوان مثال روش جذب سطحی با استفاده از کربن فعال، بسیار پر هزینه بوده و از سوی دیگر فرآیند احیاء آن مشکل می‌باشد. همچنین روش انعقاد شیمیایی نیازمند استفاده از مواد شیمیایی است و نهایت در هنگام فرآیند، لجن زیادی تولید می‌گردد. از معایب سیستم‌های تبادل یونی مصرف زیاد مواد شیمیایی جهت

احیاء و همچنین اشغال فضای زیاد با توجه به حجم آب تولیدی می‌باشد. روش‌های فیلتراسیون توسط غشاهای نیز هزینه اولیه و بهره‌برداری بالایی دارند (۹-۷). در سال‌های اخیر کاربرد مستقیم الکتروسیسته در فرآیند تصفیه آب و فاضلاب مطرح شده است، که تحت عنوان روش الکتروکواگولاسیون شناخته شده است. از جمله مزایای این روش می‌توان به کاربرد آسان، سادگی تجهیزات، زمان ماند کوتاه، کاهش حجم لجن تولیدی و عدم نیاز به استفاده از مواد شیمیایی اشاره نمود (۱۳-۱۰). مطالعات گذشته بیانگر آن است که فرآیند الکتروکواگولاسیون یک فرآیند مؤثر در حذف آلاینده‌هایی نظیر ترکیبات آلی طبیعی (۱۴)، کدورت (۱۵) و ... از محیط‌های آبی است. در این فرآیند جریان الکتروسیسته از طریق الکترودهای فلزی غوطه ور در آب عبور می‌کند و الکترودهای فلزی مربوطه طی فرآیند الکترولیز تجزیه شده و عوامل منعقد کننده و هیدروکسیدهای فلزی را تولید می‌کنند که باعث تجمع و تشکیل لخته‌هایی می‌شوند. لخته‌های حاصل قادرند مواد کلوئیدی، مواد معلق و آلاینده‌های محلول را حذف کنند (۱۶،۱۷)، این مکانیسم در فرآیند الکتروکواگولاسیون مشابه واکنش انعقاد شیمیایی با نمک‌های آلومینیم و آهن است و تنها تفاوت این دو فرآیند در نحوه آزاد شدن یون نمک است (۱۸). یکی از مهم‌ترین مزیت‌های فرآیند الکتروکواگولاسیون، جلوگیری از ازدیاد غلظت نمک‌های موجود در ترکیب مواد منعقد کننده مورد استفاده می‌باشد. از سوی دیگر استفاده از مواد کمک منعقد کننده نظیر ترکیبات با منشاء آلی به منظور تسریع در فرآیند انعقاد همواره مورد توجه قرار گرفته است. در این میان کیتوزان یک پلیمر غیرسمی طبیعی است که قابلیت تجزیه‌پذیری و سازگاری با

فرآیند الکتروکواگولاسیون با الکتروود آهن در حذف ماده آلی اسید هیومیک از نمونه‌های آبی انجام شد.

### مواد و روش‌ها

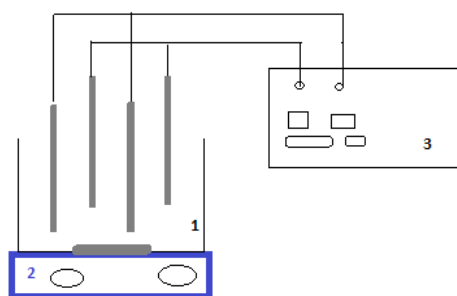
مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی می‌باشد که در یک راکتور ناپیوسته در آزمایشگاه شیمی محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی همدان انجام شد. جهت ساخت نمونه‌ها از اسید هیومیک خریداری شده از شرکت سیگما آلدریج استفاده شد. ابتدا اسید هیومیک با غلظت ۱۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر به عنوان محلول مادر تهیه گردید و محلول‌های اسید هیومیک در غلظت‌های مورد نیاز (۵، ۱۰، ۱۵، ۲۰ و ۳۰ میلی‌گرم در لیتر) از محلول مادر ساخته شد و همچنین ماده کیتوزان با خلوص ۸۵ درصد از شرکت تجاری سیگما خریداری شد. سایر ترکیبات شیمیایی ساخت شرکت مرک آلمان بودند. پایلوت مورد نظر از جنس پلکسی گلاس به ابعاد ۳۰۰\*۲۰۰\*۱۰۰ میلی‌متر به حجم ۶ لیتر می‌باشد. تعداد ۴ الکتروود از جنس آهن و هر یک به ابعاد ۲۰۰\*۲۰۰\*۲ میلی‌متر به فاصله ۶ سانتی‌متر از هم به صورت شناور در راکتور تعبیه شده بود. دستگاه مولد انرژی با قابلیت تولید جریان الکتریسیته در مقادیر متغیر مورد استفاده قرار گرفت. جهت تنظیم pH از اسید سولفوریک ۱ نرمال و سود ۱ مولار استفاده شد و کنترل آن توسط pH متر مدل Sension1 انجام شد. نمونه‌برداری با استفاده از بیپت با حجم ۵۰ میلی‌لیتر و از میانه راکتور پس از گذشت زمان‌های مانند ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰ و ۶۰ دقیقه انجام گرفت. شمای کلی راکتور در شکل ۱ نشان داده شده است.

محیط زیست را دارد و به لحاظ ویژگی‌های خاص مانند تولید ساده به وسیله خنثی‌سازی کیتین و فراوان ترین بیوپلیمر طبیعی بعد از سلولز امروزه به شکل گسترده‌ای در فرآیندهای تصفیه آب به عنوان منعقد کننده یا کمک منعقد کننده مورد استفاده قرار می‌گیرد (۱۳). حضور گروه‌های آمینو آزاد که به طور منظم در طول زنجیره کیتوزان قرار گرفته‌اند، سبب شده تا این ماده از واکنش‌پذیری بیشتری نسبت به کیتین برخوردار باشد (۱۹). با نظر به این که اکثر کلویدها دارای بار الکتریکی منفی هستند، بیوپلیمرهای کاتیونی نظیر کیتوزان می‌توانند به عنوان یک جایگزین مناسب برای منعقد کننده‌های سنتتیک مورد استفاده قرار بگیرند (۱۳، ۱۹). تاکنون مطالعات مختلفی در خصوص کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف ترکیبات آلی از محیط‌های آبی صورت گرفته است. از جمله این مطالعات می‌توان به مطالعه Tezcan با عنوان بررسی میزان حذف مواد آلی در آب آشامیدنی به وسیله الکتروکواگولاسیون با الکتروود آلومینیوم (۲۰)، مطالعه Bina با عنوان بررسی کارایی ماده کیتوزان به عنوان یک کمک منعقد کننده طبیعی در تصفیه آب با کدورت بالا (۲۱)، مطالعه Lee و همکاران تحت عنوان بررسی فرآیند الکتروکواگولاسیون در تصفیه آب‌های با کدورت بالا (۱۵) و همچنین مطالعه Kobya و همکاران در خصوص حذف رنگ از محیط‌های آبی با استفاد از فرآیند الکتروکواگولاسیون اشاره نمود (۱۰). بنابراین با توجه به این که تاکنون مطالعه‌ای در زمینه حذف اسید هیومیک به وسیله فرآیند الکتروکواگولاسیون در حضور یک ماده کمک منعقد کننده صورت نگرفته است، مطالعه حاضر با هدف بررسی تأثیر ماده کمک منعقد کننده کیتوزان در

آزمایش و بررسی قرار گرفت. نمونه برداری در زمان-های ۶۰-۱۰ دقیقه از راکتور صورت گرفت. در این مطالعه ۱۴۴ نمونه مورد بررسی قرار گرفت که با احتساب دو بار تکرار مجموعاً ۲۸۸ مورد آزمایش انجام شد. غلظت باقیمانده اسید هیومیک با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر DR 5000 ساخت کشور آمریکا در دامنه طیف UV در طول موج ۲۵۴ نانومتر با استفاده از سل کوارتز اندازه گیری شد (۲۲). تمامی مراحل آزمایشات در دمای اتاق انجام شد و نتایج با استفاده از نرم افزار اکسل مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت.

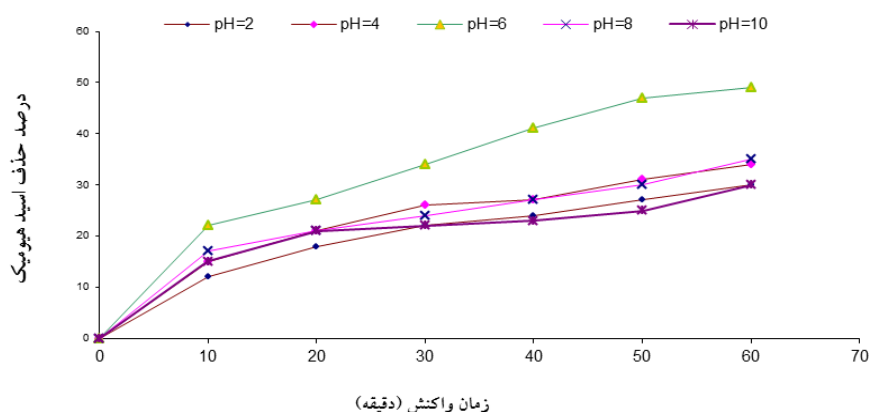
### نتایج

تأثیر pH در فرآیند الکتروکواگولاسیون: نتایج مربوط به بررسی تأثیر مقادیر مختلف pH در فرآیند الکتروکواگولاسیون به همراه الکتروود آهن در شکل ۲ نمایش داده شده است و همان گونه که ملاحظه می-گردد در غلظت اولیه اسید هیومیک ۱۵ میلی گرم در لیتر، ولتاژ ثابت ۴۰ ولت و بدون کیتوزان با افزایش pH از ۲ تا ۶ کارایی حذف اسید هیومیک افزایش یافته است. به طوری که بالاترین راندمان حذف ماده آلی اسید هیومیک بعد از ۶۰ دقیقه در  $pH=6$  معادل ۴۹ درصد مشاهده شد و از سوی دیگر با افزایش pH بالاتر از ۶ کارایی حذف آلاینده کاهش یافت و در  $pH=10$  به حداقل میزان حذف معادل ۳۰ درصد رسیده است. لذا برای ادامه آزمایشات  $pH=6$  به عنوان pH بهینه انتخاب گردید.



شکل ۱: شمای کلی راکتور مورد استفاده (۱- راکتور، ۲- همزن مغناطیسی، ۳- مولد جریان الکتریسته)

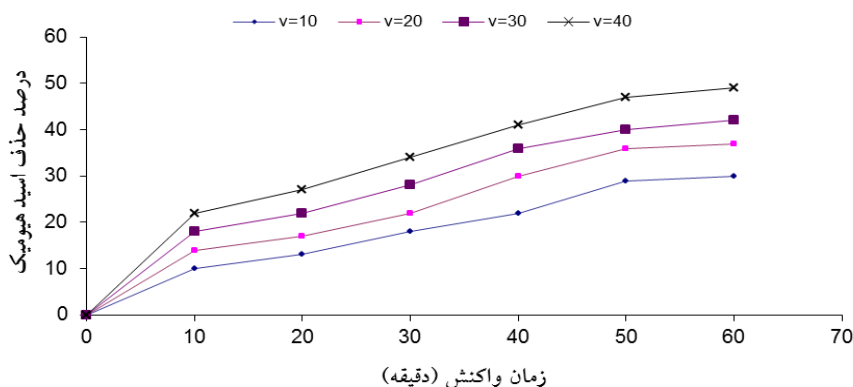
در مطالعه حاضر به منظور بررسی تأثیر ماده کیتوزان در فرآیند الکتروکواگولاسیون با الکتروود آهن در حذف ماده آلی اسید هیومیک، آزمایشات در طی پنج مرحله انجام شد. در مرحله اول به منظور بررسی تأثیر پارامتر pH در فرآیند الکتروشیمیایی به همراه الکتروود آهن، آزمایشات در pHهای مختلف (۲، ۴، ۶، ۸ و ۱۰) بدون حضور کیتوزان انجام شد. در مرحله بعد به منظور تعیین ولتاژ بهینه در فرآیند، آزمایشات بدون حضور کیتوزان در ولتاژهای ۱۰، ۲۰، ۳۰ و ۴۰ انجام شد و همچنین به منظور تعیین غلظت اولیه بهینه اسید هیومیک در فرآیند الکتروشیمیایی غلظت‌های ۵، ۱۰، ۱۵، ۲۰ و ۳۰ میلی گرم در لیتر از این ماده، در فرآیند مورد بررسی قرار گرفته و غلظت‌های ۰/۵، ۱، ۲/۵، ۱، ۲/۵ و ۳ از کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده و با هدف مشخص نمودن غلظت بهینه کیتوزان در فرآیند مورد بررسی قرار گرفت. در نهایت به منظور تعیین pH بهینه در حضور ماده کمک منعقد کننده کیتوزان با غلظت بهینه و ثابت ۲ میلی گرم بر لیتر در طی زمان‌های ماند مذکور مورد



شکل ۲: تأثیر pH در فرآیند الکتروکواگولاسیون (بدون کیتوزان، غلظت اولیه اسید هیومیک ۱۵ mg/l، ولتاژ ثابت ۴۰ ولت)

یافته است به طوری که بالاترین راندمان حذف این ماده در ولتاژهای ۳۰ و ۴۰ ولت به ترتیب معادل ۴۲ و ۴۹ درصد حاصل شد.

تأثیر ولتاژ در فرآیند الکتروکواگولاسیون: نتایج این مرحله از انجام آزمایشات در شکل ۳ ارائه شده است. مطابق با شکل در pH=۶ و غلظت اولیه اسید هیومیک ۱۵ میلی گرم در لیتر با افزایش ولتاژ جریان اعمال شده در فرآیند الکتروکواگولاسیون با الکتروود آهن کارایی حذف ماده آلی اسید هیومیک افزایش

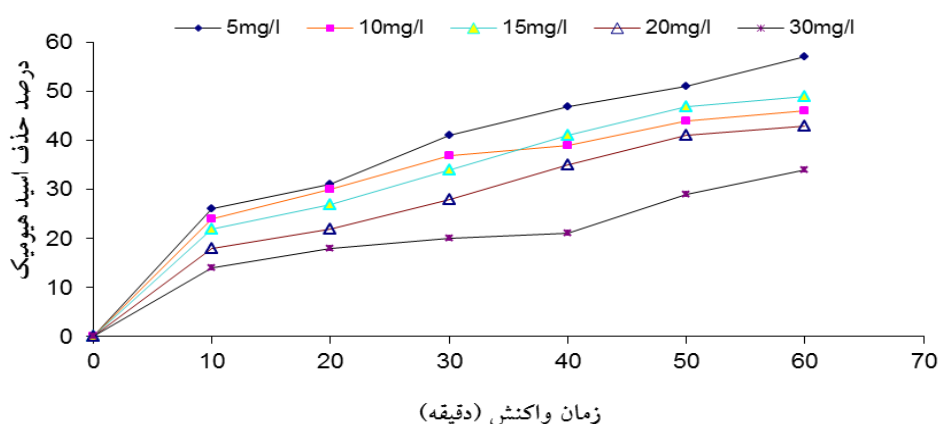


شکل ۳: تأثیر ولتاژ جریان در فرآیند الکتروکواگولاسیون (بدون کیتوزان، غلظت اولیه اسید هیومیک ۱۵ mg/l، pH=۶)

مرحله از انجام آزمایشات در شکل ۴ نمایش داده شده است. مطابق با شکل بالاترین میزان حذف آلاینده در غلظت اولیه اسید هیومیک ۵ میلی گرم در لیتر، معادل ۵۷ درصد و پایین ترین میزان حذف آلاینده در غلظت ۳۰ میلی گرم در لیتر از این ماده

تأثیر غلظت اولیه اسید هیومیک در فرآیند الکتروکواگولاسیون: در این مطالعه جهت بررسی تأثیر غلظت‌های مختلف از اسید هیومیک در فرآیند الکتروکواگولاسیون، در ولتاژ بهینه، pH=۶ و بدون حضور کیتوزان مورد آزمایش قرار گرفتند. نتایج این

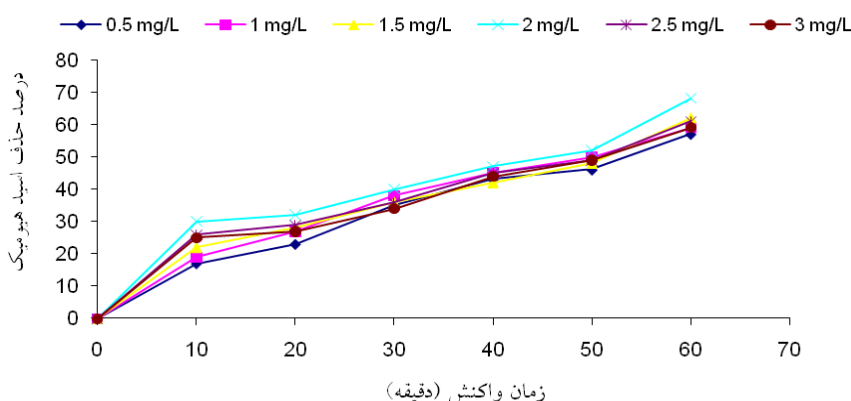
معادل ۳۴ درصد، بعد از ۶۰ دقیقه از زمان واکنش مشاهده شد.



شکل ۴: تأثیر غلظت اولیه اسید هیومیک در فرآیند الکتروکواگولاسیون (بدون کیتوزان، ولتاژ ۴۰ V، pH=۶)

حذف اسید هیومیک معادل ۶۸ درصد در غلظت ۲ میلی گرم در لیتر از ماده کیتوزان و حداقل کارایی فرآیند معادل ۵۷ درصد در غلظت ۰/۵ میلی گرم در لیتر از این ماده حاصل شد. نتایج در شکل ۵ نشان داده شده است.

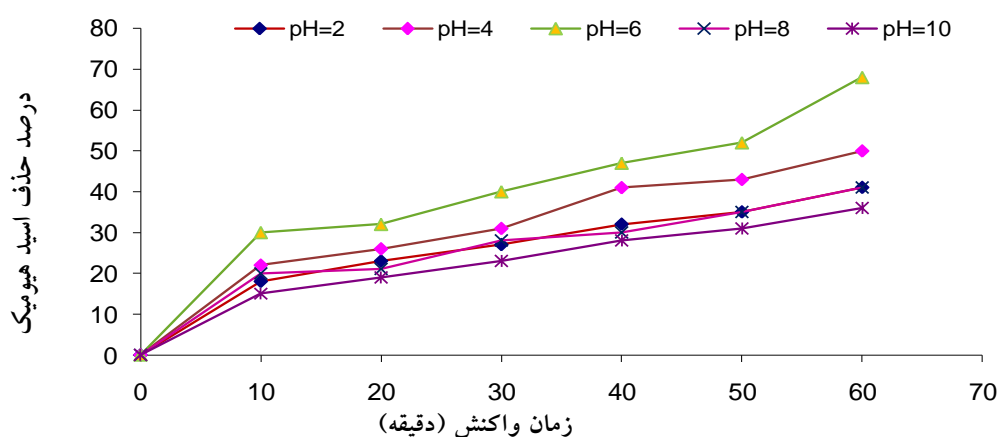
تأثیر غلظت کیتوزان در فرآیند الکتروکواگولاسیون: برای بررسی تاثیر این پارامتر، غلظت های ۰/۵، ۱/۵، ۲، ۳ و ۵ میلی گرم در لیتر غلظت های کیتوزان در شرایط بهینه به دست آمده از مراحل قبل (غلظت اولیه اسید هیومیک ۵ میلی گرم در لیتر، pH=۶ و ولتاژ ۴۰ ولت) مورد آزمایش قرار گرفت و مشاهده شد که حداکثر کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در



شکل ۵: تأثیر غلظت کیتوزان در فرآیند الکتروکواگولاسیون (pH=۶، غلظت اولیه اسید هیومیک ۵ mg/l، ولتاژ ۴۰ V)

۵۰، ۶۸ و ۴۱ درصد مشاهده شد که نتایج آن در شکل ۶ نشان داده شده است. همانگونه که قابل ملاحظه است پس از گذشت ۶۰ دقیقه از زمان واکنش در pH معادل ۶، کارایی فرآیند به حدود ۶۸ درصد رسیده است که افزایش قابل ملاحظه ای در مقایسه با عدم استفاده از کیتوزان (شکل ۲) را نشان می‌دهد.

تأثیر pH در فرآیند الکتروکواگولاسیون در حضور کیتوزان: در این مرحله به منظور بررسی تأثیر pH در فرآیند الکتروکواگولاسیون در حضور ماده کمک منعقد کننده کیتوزان، آزمایشات در شرایط بهینه ولتاژ ۴۰ ولت، غلظت اولیه اسید هیومیک ۵mg/l و کیتوزان با غلظت ۲mg/l انجام پذیرفت. مطابق با نتایج حاصله از انجام آزمایشات میزان حذف اسید هیومیک در pH های ۴، ۶ و ۸ به ترتیب معادل



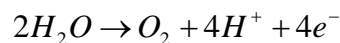
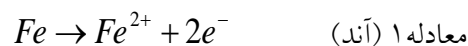
شکل ۶: تأثیر pH در فرآیند الکتروکواگولاسیون در حضور کیتوزان (غلظت اولیه اسید هیومیک ۵ mg/l، ولتاژ ۴۰ V، کیتوزان ۲mg/L)

الکتروکواگولاسیون ولتاژ جریان است، لذا در مطالعه حاضر مقادیر مختلف ولتاژ جریان در فرآیند الکتروکواگولاسیون به همراه آهن مورد بررسی قرار گرفت. نتایج این مرحله از انجام آزمایشات بیانگر آن است که بالاترین راندمان حذف این ماده در ولتاژ های ۳۰ و ۴۰ ولت مشاهده گردید و این موضوع را می‌توان در ارتباط با واکنش‌هایی که در آنند و کاتد اتفاق می‌افتد توجیه نمود. ولتاژ جریان از طریق تأثیر بر واکنش‌های سطح الکتروود و میزان یون‌هایی که از سطح الکتروود کنده می‌شود بر سرعت واکنش‌های الکتروکواگولاسیون تأثیرگذار است (۱۷). بدین

## بحث

در مطالعه حاضر فرآیند الکتروکواگولاسیون به همراه کیتوزان به عنوان یک کمک منعقد کننده به منظور حذف ماده آلی اسید هیومیک از محیط‌های آبی مورد بررسی قرار گرفت. تأثیر پارامترهای مختلف از قبیل: ولتاژ جریان، غلظت اولیه اسید هیومیک ورودی به راکتور، غلظت کمک منعقد کننده کیتوزان و pH اولیه در فرآیند الکتروکواگولاسیون مورد بررسی قرار گرفت که هریک به تفصیل توضیح داده شده است. یکی از پارامترهای مؤثر در فرآیند

صورت در حالت استفاده از الکتروود آهن در آند، کاتد و محلول به ترتیب معادلات ۱، ۲ و ۳ رخ می‌دهد:



مطابق معادله (۱) احیاء آب یون‌های هیدروکسید تولید شده در کاتد در واکنش با یون‌های آهن تولیدی در آند تولید سوسپانسیون هیدروکسید آهن نموده که می‌تواند از طریق مکانیسم‌های جذب سطحی یا ضمن ته‌نشینی لخته‌ها حذف می‌شود و همچنین سطح لخته‌های هیدروکسید آهن با جذب ترکیبات محلول و کلوییدی سبب به دام انداختن این ترکیبات و حذف آن‌ها از محیط‌های آبی به طریق رسوب‌دهی می‌شود (۱۶، ۱۷). نتایج مطالعه حاضر با یافته‌های مطالعه سمرقندی و همکاران در خصوص حذف سیانید از محیط‌های آبی با استفاده از فرآیند الکتروکواگولاسیون مطابقت دارد، به طوری که بالاترین راندمان حذف سیانید معادل ۷۸ درصد، در بالاترین ولتاژ اعمال شده در فرآیند حاصل شد (۲۳). یکی دیگر از عواملی که بر کارایی فرآیند حذف اسید هیومیک در فرآیند الکتروکواگولاسیون می‌تواند مؤثر باشد غلظت اولیه آلاینده است. مطابق با شکل ۴ بالاترین میزان حذف آلاینده در غلظت اولیه اسید هیومیک ۵ میلی‌گرم در لیتر و پایین‌ترین میزان حذف آلاینده در غلظت ۳۰ میلی‌گرم در لیتر مشاهده شد. نتایج تحقیق حاضر بیانگر آن است که با افزایش

غلظت اولیه ماده آلی اسید هیومیک راندمان حذف آلاینده در فرآیند الکتروکواگولاسیون با استفاده از الکتروود آهن کاهش می‌یابد. نتایج سایر مطالعات انجام شده در این زمینه با یافته‌های مطالعه حاضر مطابقت داشته و نشان داده‌اند که در فرآیندهای الکتروکواگولاسیون در شرایط ثابت از نظر شدت جریان و زمان تماس، زمانی که غلظت اولیه ماده آلاینده آلی افزایش می‌یابد، راندمان حذف کاهش می‌یابد (۱۷، ۲۳). این موضوع را می‌توان در ارتباط با میزان هیدروکسید تولیدی در فرآیند الکتروکواگولاسیون دانست، در فرآیند الکتروکواگولاسیون مقادیر مشخصی ترکیبات هیدروکسید تولید می‌گردد که این ترکیب تنها مقدار معینی از ترکیبات آلی را حذف می‌نماید، لذا قادر به حذف مقادیر بیش از حد از آلاینده مورد نظر نیست و بنابراین افزایش غلظت اولیه آلاینده باعث کاهش راندمان فرآیند می‌گردد (۲۴). در مطالعه بیگلری و همکاران در خصوص حذف اسید هیومیک با استفاده از فرآیند اکسیداسیون فنتون مشاهده گردید که با افزایش غلظت اولیه هیومیک اسید غلظت باقی مانده هیومیک اسید افزایش یافت و با گذشت زمان اختلاف میزان حذف بین غلظت‌های متفاوت هیومیک اسید کم شد (۲۵).

همان گونه که اشاره گردید، کیتوزانیک پلی الکتروولیت، کاتیونی طبیعی و غیر سمی است که می‌تواند به عنوان یک جایگزین مناسب برای منعقد کننده‌های سنتتیک یا کمک منعقد کننده در فرآیندهای تصفیه آب مورد استفاده قرار گیرد. براساس نتایج حاصل از انجام آزمایشات تعیین غلظت بهینه کیتوزان در فرآیند مشاهده گردید که حداکثر کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در غلظت ۲ میلی‌گرم در لیتر و



حداقل کارایی فرآیند در غلظت ۰/۵ میلی‌گرم در لیتر از این ماده حاصل شد. علت کارایی بالای فرآیند در حذف ماده آلی اسید هیومیک را می‌توان با ویژگی‌های کیتوزان مرتبط دانست. این پلیمر دارای گروه‌های آمینی فراوان و ساختار ماریپیچی است و در pHهای طبیعی می‌تواند لخته‌های بزرگ‌تر و با چگالی بیشتر تولید نماید. از سوی دیگر در محلول‌های اسیدی به دلیل منبسط و طویل شدن ساختار زنجیره‌ای پلیمر کیتوزان، لخته‌های کوچک و سبک‌تری تولید می‌گردد (۱۳، ۲۰). با نظر به این که در این مرحله، آزمایشات در pH=۶ انجام شد، لذا این امر می‌تواند سبب ناپایداری کلوییدها شده و تولید لخته‌های بزرگتر را بهبود ببخشد که متعاقباً سرعت ته‌نشینی افزایش می‌یابد.

pH محلول‌های آبی یکی از فاکتورهای مؤثر در فرآیندهای انعقاد شیمیایی همگام با فرآیندهای شیمیایی دیگر است (۲۶). در بسیاری از مطالعات گذشته به تأثیر این پارامتر بر کارایی حذف آلاینده‌ها در فرآیند انعقاد شیمیایی و الکتروشیمیایی اشاره شده است. بالاترین راندمان حذف ماده آلی اسید هیومیک در pH=۶ مشاهده شد و از سوی دیگر با افزایش pH بالاتر از ۶ کارایی حذف آلاینده کاهش یافت. لذا برای ادامه آزمایشات pH=۶ به عنوان pH بهینه انتخاب گردید. این موضوع را می‌توان بدین صورت تفسیر نمود که در حین استفاده از الکتروده آهن، در محیط اسیدی  $Fe(OH)_2$ ، در محیط خنثی  $Fe(OH)_3$  و در محیط قلیایی  $Fe(OH)_3$  به صورت غالب تولید می‌گردد، بنابراین در محیط آبی با pH خنثی به دلیل تولید بیشتر  $Fe(OH)_3$  و  $Fe(OH)_2$  امکان تشکیل لخته‌های بیشتر، کارایی حذف آلاینده افزایش می‌یابد. از سوی دیگر در فرآیند

الکتروکواگولاسیون تمامی هیدروکسیل‌های فلزی تولیدی در طی فرآیند در محدوده pH=۵-۵/۸ به صورت غیر قابل حل در محیط‌های آبی هستند (۲۴). بنابراین انتظار می‌رود که بالاترین راندمان حذف آلاینده در فرآیند الکتروکواگولاسیون در این محدوده pH رخ دهد. در سایر مطالعات انجام گرفته نیز در واکنش‌های الکتروشیمیایی، از pH محیط به عنوان یک عامل مهم و تأثیرگذار در حذف آلاینده‌ها نام برده شده است. نتایج مطالعه انجام گرفته توسط بیگلری و همکاران نشان داد که در فرآیند اکسیداسیون فنتون با افزایش pH، راندمان حذف اسیدهیومیک کاهش یافته است به طوری که در pH=۵ غلظت اسیدهیومیک باقی مانده ۰/۲۴۹ میلی‌گرم بر لیتر می‌باشد. همچنین بیشترین راندمان حذف در این مطالعه در pH=۳ با غلظت باقی مانده هیومیک اسید ۰/۰۳۱ میلی‌گرم بر لیتر حاصل شد (۲۵)، در پژوهش گائو که از فرآیند الکتروکواگولاسیون/فلوتاسیون با استفاده از الکتروده آلومینیوم به منظور حذف جلبک استفاده شده است بالاترین کارایی فرآیند (۱۰۰ درصد) در pHهای ۵-۷ بوده است (۱۷).

مطابق با نتایج حاصل از تعیین pH بهینه در حضور کمک منعقد کننده کیتوزان نیز مشاهده گردید که در pH=۶ به طور قابل ملاحظه‌ای کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف ماده آلی اسید هیومیک افزایش یافته است. نتایج کسب شده مطالعه بذرافشان و همکاران در خصوص حذف اسیدهیومیک از محیط‌های آبی توسط فرآیند انعقاد الکتریکی توأم با افزودن هیدروژن پراکسید، نشان می‌دهد که بیشترین کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی در حضور پراکسید هیدروژن در حذف اسید هیومیک برابر ۶۳/۴۸ درصد

فرآیند الکتروکواگولاسیون با الکتروود آهن مورد ارزیابی قرار گرفت. فرآیند به pH وابسته بود و افزایش ولتاژ جریان سبب افزایش کارایی فرآیند گردید. براساس یافته‌های مطالعه حاضر فرآیند الکتروکواگولاسیون، فرآیندی مناسب در حذف اسید هیومیک می‌باشد. همچنین پلی الکتروولیت کاتیونی کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده مناسب در فرآیند الکتروکواگولاسیون به همراه الکتروود آهن عمل نموده و سبب افزایش کارایی فرآیند و متعاقباً باعث افزایش حذف آلاینده‌ها اسید هیومیک از محیط‌های آبی می‌شود.

### تشکر و قدردانی

بدین وسیله از زحمات پرسنل آزمایشگاه شیمی دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی همدان که ما را در انجام این تحقیق یاری دادند، تقدیر و تشکر می‌گردد.

در pH=5 حاصل شد (27)، که با یافته‌های حاصل از مطالعه حاضر همخوانی دارد. این موضوع می‌تواند با ویژگی‌های ساختاری اسید هیومیک و کیتوزان مرتبط باشد. اسید هیومیک در pHهای بالاتر از 1/6 دارای بار الکتریکی منفی بوده (28)، از سوی دیگر گروه‌های آمینی موجود در کیتوزان سبب ایجاد بار کاتیونی در pHهای طبیعی می‌شوند. بنابراین انتظار می‌رود که در pHهای خنثی بالاترین کارایی در فرآیند انعقاد شیمیایی و الکتروشیمیایی مشاهده شود (29، 30). همچنین زنجیره‌های طویل پلیمری (گروه‌هایی آمینی ماده کیتوزان) می‌توانند با ایجاد بار مثبت در pH آب های طبیعی به نحو مؤثری به لخته‌سازی مواد آلی مخصوصاً اسید هیومیک کمک نموده و به وسیله فرآیندهای جذب سطحی و پل زنی بین ذرات سبب حذف این ترکیبات شوند.

### نتیجه‌گیری

در مطالعه حاضر ماده کیتوزان که یک ماده کمک منعقد کننده طبیعی و کم هزینه می‌باشد به منظور حذف ماده آلی اسید هیومیک از محلول‌های آبی در

### References

1. Low SC, Liping C, Hee LS. Water softening using a generic low cost nanofiltration membrane. *Desalination*. 2008 Mar;221(1-3):168-73.
2. Simpson DR. Biofilm processes in biologically active carbon water purification. *Water Res*. 2008 Jun;42(12):2839-48.
3. Crittenden JC, Trussell RR, Hand DW, Howe KG, Tchobanoglous G. *Water treatment: Principles and Design*. 2th ed. New York: John Wiley; 2005.
4. Fan SC, Wang YC, Li CL, Lee KR, Laiw DJ, Huang HP, et al. Effect of coagulation media on membrane formation and vapor permeation performance of novel aromatic polyimide membrane. *J Membrane Sci*. 2002;204(1-2):67-79.
5. Huang WJ, Chen LY, Peng HS. Effect of NOM characteristic on brominated organics formation by ozonation. *Environ Int*. 2004 Feb;29(8):1049-55.
6. Zhang X, Minear RA. Formation, adsorption and separation of high molecular weight disinfection byproducts resulting from chlorination of aquatic humic substances. *Water Res*. 2006 Jan;40(2):221-30.
7. Fearing DA, Banks J, Guyetand S, Monfort Eroles C, Jefferson B, Wilson D, et al. Combination of ferric and MIEEX for the treatment of a humic rich water. *Water Res*. 2004 May; 38(10):2551-8.
8. Ke-xin Z, Hong-weil W, Shu-guang X. Performance of combined pre-ozonation and biofiltration for the purification of water from Chin Yellow River. *Journal of Environmental Protection Science*. 2007;1:52-61.
9. Babi KG, Koumenides KM, Nikolaou AD, Makri CA, Tzoumerkas FK, Lekkass TD. Pilot study of the removal of THMs, HAAs and DOC from drinking water by GAC adsorption. *Desalination*. 2007 Jun 10;210(1-3):215-24.

10. Kobya M, Demirbas E, Can OT, Bayramoglu M. Treatment of levafix orange textile dye solution by electrocoagulation. *J Hazard Mater*. 2006 May 20;132(2-3):183-8.
11. Can OT, Bayramoglu M, Kobya M. Decolorization of reactive dye solutions by electrocoagulation using Aluminum electrodes. *Ind Eng Chem Res*. 2003 Jun 11;42(14):3391-6.
12. Shin SH, Kim YH, Jung SK, Sun KH, Kang SG, Jeong SK, Kim HG. Combined performance of electrocoagulation and magnetic separation processes for treatment of dye wastewater. *Korean J Chem Eng*. 2004 Jul 1;21(4):806-10.
13. Divakaran R, Pillai VN. Flocculation of river silt using chitosan. *Water Res*. 2002 May; 36(9):2414-8.
14. Matilainen A, Vepsalainen M, Sillanpaa M. Natural organic matter removal by coagulation during drinking water treatment: a review. *Adv Colloid Interfac*. 2010 Sep15; 159(2):189-97.
15. Lee PC, Gau SH, Song CC. Particle removal of high-turbidity reservoir water by electro-aggregation. *J Environ Eng & Manage*. 2007; 17(5):371-5.
16. Jiang JQ, Graham N, Andre C, Kelsall GH, Brandon N. Laboratory study of electro-coagulation-flotation for water treatment. *Water Res*. 2002 Sep; 36(16):4064-78.
17. Gao S, Yang J, Tian J, Ma F, Tu G, Du M. Electro-coagulation-flotation process for algae removal. *J Hazard Mater*. 2010 May 15;177(1-3):336-43.
18. Donini JC, Kan J, Szykarczu T, Hassan A, Kar KL. The operating cost of electrocoagulation. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*. 1994 Dec;72(6):1007-12.
19. Ogawa K, Yui T, Okuyama K. Three D structures of chitosan. *Int J Biol Macromol*. 2004 Apr; 34(1-2):1-8.
20. Tezcan Un, U, Koparal, AS, Bakir Ogutveren U. Electrocoagulation of vegetable oil refinery wastewater using aluminum electrodes. *J Environ Manage*. 2009;90(1):428-33.
21. Bina B, Mehdinejad MH, Nikaeen M, Attar HM. Effectiveness of chitosan as natural coagulant aid in treating turbid water. *Iran J Environ Health Sci Eng*. 2009;6(4):247-52. Persian.
22. American Public Health Association (APHA), American Water Works Association (AWWA), Water Environment Federation (WEF). Standard method for the examination of water and wastewater. 20th ed. Washington DC : APHA-AWWA-WEF; 1998.
23. Samarghandi MR, Ahmadian M, Mehralipur J, Shabanlo A, Poormohammadi A. Studies on removal of cyanide from aqueous environments using aluminum electrodes. *Fresenius Environmental Bulletin*. 2014; 23(2):613-9.
24. Zongo I, Maiga AH, Wethe J, Valentin G, Leclerc JP, Paternotte G, et al. Electrocoagulation for the treatment of textile wastewaters with Al or Fe electrodes: compared variations of COD levels, turbidity and absorbance. *J Hazard Mater*. 2009 Sep 30;169(1-3):70-6.
25. Biglari H, Kord Mostafapour F, Joneidi Jafari A, Bazrafshan E. Removal of humic acid from environmental aqueous by fenton oxidation process. *J North Khorasan Univ Med Sci*. 2013;5(1):37-45.
26. Merzouk B, Gourich B, Sekki A, Madani K, Chibane M. Removal turbidity and separation of heavy metals using electrocoagulation-electroflotation technique; A case study. *J Hazard Mater*. 2009 May 15;164(1):215-22.
27. Bazrafshan E, Joneidi Jaafari A, Kord Mostafapour F, Biglari H. Humic acid removal from aqueous environments by electrocoagulation process duad with Adding Hydrogen Peroxide. *Iran J Health & Environ*. 2012;5(3):211-24.
28. Katsumata H, Sada M, Kaneco S, Suzuki T, Ohta K, Yobiko Y. Humic acid degradation in aqueous solution by the photo-Fenton process. *Chem Eng J*. 2008;Apr 1;137(2):225-30.
29. Pan JR, Huang C, Chen S, Chan YC. Evaluation of modified chitosan biopolymer for coagulation of colloidal particles. *Colloid Surface A*. 1999 Feb15; 147(3):359-64.

## The Efficiency of Electrocoagulation Process Using Iron Electrode in Removal of Humic Acid from Water in the Presence of Chitosan as a Coagulant Aid

Abdolmotaleb Seidmohammadi<sup>1</sup>, Ghorban Asgari<sup>1</sup>, Ahmad Rajabizadeh<sup>2</sup>, Ali Poormohammadi<sup>3</sup>,  
Mohammad Ahmadian<sup>3</sup>

### Abstract

**Background:** Natural organic substances in water cause problems during water treatment processes. The potential of these compounds as precursor of trihalomethanes formation has increased the necessity of removing these compounds from water more than ever. In the current study, the effect of chitosan, as a cheap and efficient coagulant, in the electrocoagulation process with iron electrode for removal of humic acid from aqueous solutions was evaluated.

**Methods:** In this study, a batch reactor equipped with 4 iron electrodes in dimensions of 2\*20\*200 mm, with a volume of 1 L and connected to an electrical source was used. The effects of current density, initial humic acid concentration, chitosan concentration and pH in the electrocoagulation process were investigated. Excel software was used to analyze the obtained results.

**Results:** The results indicated pH = 6, current density=40 V, and chitosan concentration= 2 mg/L as the optimal conditions for the process. Also, in the presence of chitosan as a coagulant aid in the electrocoagulation process, after 60 min, the process efficiency reached 68%.

**Conclusion:** Based on the current findings, electrocoagulation process is a suitable process in removal of humic acid. Also, chitosan is an efficient coagulant aid in the electrocoagulation process with iron electrode and increases the process efficiency.

**Keywords:** Electrocoagulation, Humic acid, Coagulant aid, Chitosan

1- Assistant Professor, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

2- Lecturer, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Kerman University of Medical Sciences, Kerman, Iran

3- MSc, Social Development & Health Promotion Research Center, Kermanshah University of Medical Sciences, Kermanshah, Iran

**Corresponding Author:** Mohammad Ahmadian **Email:** moh.ahmadian@yahoo.com

**Address:** Social Development & Health Promotion Research Center, Kermanshah University of Medical Sciences, Kermanshah

**Fax:** 08314239050 **Tel:** 08314216143