

## **Performance Evaluation of Electrochemical Process using Iron and Aluminum Electrodes in Phenol Removal from Synthetic Aqueous Environment**

Hamed Biglari, \*Edris Bazrafshan

Department of Environmental Health Engineering, Zahedan University of Medical Sciences, Sistan and Balouchestan, Iran

Received: 26 April 2012 ; Accepted: 24 July 2012

### **ABSTRACT**

**Background and Objectives:** Phenol is one of the most important organic chemicals presenting in water and other environments. It not only brings about hygienic problems but also results in forming 11 toxic priority pollutants in aqueous environments. Hence, the performance of electrocoagulation process using iron and aluminum sacrificial anodes was investigated for removal of phenol.

**Materials and Methods:** We used a glass tank in 1.56 L volume (effective volume 1 L) equipped with four iron and aluminum plate electrodes to do experiments (bipolar mode). The tank was filled with synthetic wastewater containing phenol in concentration of 5, 20, 40, and 70 mg/l and to follow the progress of the treatment, each sample was taken at 20 min intervals for up to 80 min. The percent of phenol removal was measured at pH 3, 5, 7, and 9; electrical potential range of 20, 40, and 60 volts; and electrical conductivity of 1000, 1500, 2000, and 3000  $\mu\text{s}/\text{cm}$ .

**Results:** It was found that the most effective removal capacities of phenol (95 and 98 %) could be achieved when the pH was kept 7 and 5 for iron and aluminum electrodes, reaction time 80 min, electrical conductivity 3000  $\mu\text{s}/\text{cm}$ , initial concentration of phenol 5 mg/l, and electrical potential in the range of 20-60 V.

**Conclusion:** The method was found to be highly efficient and relatively fast compared with existing conventional techniques and also it can be concluded that the electrochemical process has the potential to be utilized for the cost-effective removal of phenol from water and wastewater.

**Keywords:** Electrochemical, Electrocoagulation, Phenol, Iron and Aluminum Electrodes

---

\*Corresponding Author: [ed\\_bazrafshan@yahoo.com](mailto:ed_bazrafshan@yahoo.com)

Tel: +98 541 24202983 Fax: +98 541 4100242

## بررسی کارایی فرایند الکتروشیمیایی در حذف فنل از محیط آبی سنتتیک با استفاده از الکتروُد آهنی و آلومینیومی

حامد بیگلری<sup>۱</sup>، ادریس بذرافشان<sup>۲</sup>

نویسنده مسئول: زاهدان، بلوار مشاهیر، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، دانشکده بهداشت، گروه بهداشت محیط، [ed\\_bazrafshan@yahoo.com](mailto:ed_bazrafshan@yahoo.com)

پذیرش: ۹۰/۰۵/۰۲

دریافت: ۹۰/۰۲/۰۶

### چکیده

زمینه و هدف: فنل و مشتقات آن از متداول‌ترین ترکیبات آلاینده محیط زیست هستند که علاوه بر ایجاد مشکلات بهداشتی حضور آنها در محیط آبی موجب تشکیل ۱۱ آلاینده سمی که جزو گروه آلاینده‌های متقدم هستند، می‌گردد و این مهم بر اهمیت حذف این ماده از محیط‌های آبی می‌افزاید. بنابراین در مطالعه حاضر کارایی فرایند الکتروشیمیایی در حذف فنل از محیط آبی سنتتیک با کاربرد الکتروُد آهنی و آلومینیوم مورد بررسی قرار گرفت. روش بررسی: این مطالعه در یک ظرف بوکال (مقاوم در برابر اسید) با حجم موثر ۱L تجهیز شده توسط الکترودهای صفحه‌ای آلومینیومی و آهنی به روش دو قطبی به انجام رسید. در ابتدا راکتور را با نمونه سنتتیک در pH های معادل ۳، ۵، ۷ و ۹ حاوی غلظت‌های اولیه فنل ۷۰، ۴۰، ۲۰، ۵ و هدایت الکتریکی ۳۰۰۰، ۲۰۰۰، ۱۵۰۰، ۱۰۰۰ پر شده و در گستره پتانسیل الکتریکی ۶۰V، ۴۰ و ۲۰ واکنش آغاز شد. در ادامه در فواصل زمانی ۲۰ min در طی حداکثر زمان واکنش ۸۰ min، نمونه‌ها برداشت و غلظت باقی‌مانده فنل در آن به روش طیف‌سنجی استفاده گردید. یافته‌ها: نتایج این مطالعه نشان داد که بیشترین درصد حذف فنل در این فرایند با کاربرد الکترودهای آهنی و آلومینیومی به ترتیب در ۷ و ۵ pH، زمان واکنش ۸۰ min، هدایت الکتریکی ۳۰۰۰  $\mu\text{s/cm}$  و غلظت اولیه ۵ mg/L فنل به ترتیب در حدود ۹۸ و ۹۵٪ بود. نتیجه‌گیری: در مجموع مشخص شد که فرایند الکتروشیمیایی با استفاده از الکترودهای آهنی و آلومینیومی در مقایسه با سایر روش‌ها می‌تواند به عنوان روشی مناسب، اقتصادی و مطمئن جهت تصفیه پساب‌های حاوی فنل مورد استفاده قرار گیرد.

واژگان کلیدی: الکتروشیمیایی، الکتروکواگولاسیون، فنل، الکتروُد آهنی، الکتروُد آلومینیوم

۱- کارشناس ارشد بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان

۲- دکترای بهداشت محیط، دانشیار مرکز تحقیقات ارتقای سلامت دانشگاه علوم پزشکی زاهدان

## مقدمه

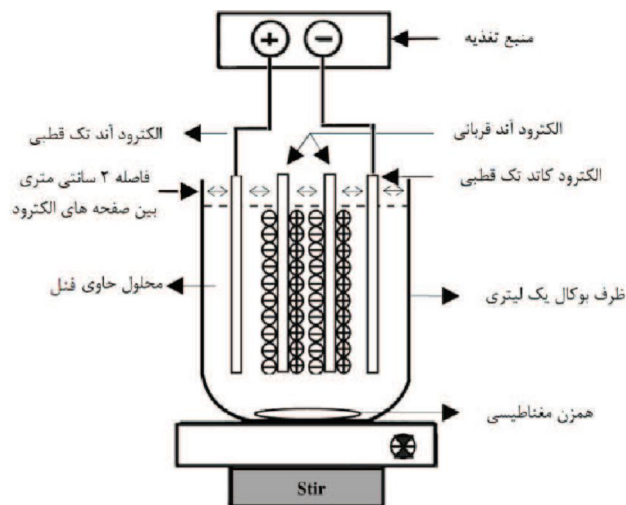
در بین ترکیبات شیمیایی با ماهیت آلی موجود در فاضلاب‌های صنعتی، فنل و مشتقات آن از جمله ترکیبات متداول آلاینده محیط زیست هستند که وجود آنها در آب آشامیدنی حتی به مقدار بسیار ناچیز موجب عدم استفاده و یا عدم استفاده مجدد از آن آب می‌گردد (۱). فنل به طور گسترده در صنایع پتروشیمی و صنایع شیمیایی نظیر ساخت رزین، تولید پلاستیک، آهن، فولاد، آلومینیوم، مواد منفجره، تولید عایق، چسب‌های صنعتی، عطر، صابون، سموم حشره‌کش، قارچ‌کش، باکتری‌کش، علف‌کش، رنگ‌سازی، مواد شوینده، مواد گندزدا، عوامل محافظت‌کننده چوب، نگه‌دارنده مواد غذایی و حتی در تولید دارو نظیر روغن‌های نرم‌کننده، پمادهای روغنی، اسپری و لوسیون‌های ترمیم زخم مورد استفاده قرار می‌گیرد و مسلماً در پساب کلیه این صنایع وجود دارد (۲). فنل علاوه بر روش‌های مصنوعی با روش‌های طبیعی نیز به منابع آبی وارد می‌گردد، این ماده به دلیل پایداری در محیط و قابلیت انحلال در آب و ایجاد مشکلات بهداشتی برای سلامت انسان و سایر موجودات مورد توجه است (۳). علاوه بر مشکلات بهداشتی ناشی از حضور فنل در آب، تشکیل ۱۱ ماده شیمیایی سمی دیگر از ۱۲۶ آلاینده شیمیایی سمی که توسط سازمان بین‌المللی حفاظت محیط زیست امریکا به عنوان آلاینده متقدم شناخته شده‌اند بر اهمیت حذف حضور این ترکیب از منابع آبی می‌افزاید (۴). فنل ماده‌ای سمی، سرطان‌زا، جهش‌زا و موجب ناقص‌الخلقه‌زایی می‌شود (۵). از این رو با توجه به اثر نامطلوب فنل بر سلامت انسان و سایر جانداران، استانداردهای سخت‌گیرانه‌ای برای میزان غلظت مجاز آن در مراجع تدوین استانداردهای آب تعیین گردیده است (۶). بر اساس گزارش رهنمود برنامه ملی سم‌شناسی با توجه به ماهیت این آلاینده و تمایل شدید آن در واکنش با یون‌های کلر و در نهایت مقاوم بودن ترکیب حاصل در برابر فرایندهای متداول تصفیه، این ماده در گروه آلاینده‌های ردیف B2 قرار دارد (۷). هم‌چنین بر اساس رهنمود برنامه ملی سم‌شناسی حداکثر غلظت مجاز فنل در آب آشامیدنی  $0.001 \text{ mg/L}$  و مقدار مجاز مشتقات معروف فنل نظیر نیتروفنل و پنتاکلوروفنل در محیط آبی نیز به ترتیب  $0.06 \text{ mg/L}$  و  $0.3$  تعیین شده است، از طرفی در رهنمود

این سازمان گزارش شده است که چنانچه غلظت‌های دو ماده نیتروفنل و پنتاکلوروفنل از مقادیر فوق بیشتر گردد، آسیب به محیط زیست آبی و به مخاطره افتادن سلامت انسان‌ها محتمل بوده و بر همین اساس این دو ماده در زمره مواد آلاینده با درجه اول احتساب می‌گردند (۸). رهنمود سازمان جهانی بهداشت برای غلظت ماده فنل موجود در آب آشامیدنی، کمتر از  $0.1 \text{ mg/L}$  است (۹). سازمان حفاظت محیط زیست امریکا فنل را در زمره آلاینده‌های متقدم قرار داده و با اعمال قوانین سخت‌گیرانه مقدار مجاز فنل موجود در پساب صنایع را برای تخلیه به رودخانه‌ها کمتر از  $0.1 \text{ mg/L}$  تعیین کرده است، این سازمان هم‌چنین عنوان نموده است که وجود مقادیر بیش از  $1 \text{ mg/L}$  فنل در محیط‌های آبی بر حیات آبزیان اثر محسوسی خواهد گذاشت (۱۰). یکی از روش‌های امروزی در امور تصفیه آب کاربرد تکنولوژی الکتروشیمیایی از جمله فرایند الکتروکواگولاسیون یا به اختصار EC است (۱۱). در این فرایند، منعقدکننده در محل و از طریق اکسیداسیون الکترولیتی الکترودی که قربانی می‌شود (آند) تولید می‌گردد (۱۲). یون‌های فلزی تولید شده در الکترود آند (از جنس آهن یا آلومینیوم) با یون‌های هیدروکسید تشکیل شده در الکترود کاتد، واکنش داده و هیدروکسیدهای فلزی ایجاد می‌کنند و این هیدروکسید فلزی نامحلول با گونه‌های یونی باردار، کلویدها، جامدات معلق و غیره واکنش داده و رسوب می‌کنند (۱۲). مکانیسم حذف در فرایند EC شامل انعقاد، جذب سطحی، ترسیب و شناورسازی است (۱۲). تاکنون مطالعاتی بر پایه استفاده از فرایند الکتروکواگولاسیون در حذف آلاینده فنل از محیط‌های آبی انجام گرفته است، از جمله این مطالعات می‌توان به مطالعه Adhoum و Monser پیرامون حذف پلی فنل از پساب صنعت استخراج روغن از زیتون با کسب راندمان حذف ۹۱٪ (۱۳)، مطالعه Abdelwahab و همکارانش پیرامون حذف فنل از فاضلاب صنایع پالایشگاه روغن با کسب راندمان حذف ۹۸٪ (۱۴)، مطالعه Phutdhawong و همکارانش پیرامون الکتروکواگولاسیون و بازیافت فنل متعاقب آن با کسب راندمان حذف ۱۰۰٪ برای برخی مشتقات آن نظیر تانن (۱۵)، و مطالعه Ugurlu و همکارانش در خصوص حذف لیگنین و فنل از

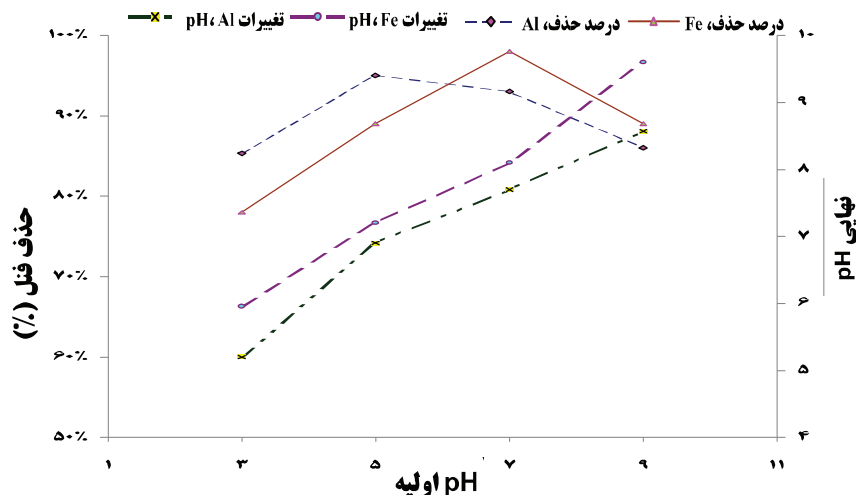
### مواد و روش‌ها

کلیه مواد شیمیایی مورد استفاده در این مطالعه از جمله فنل، هیدروکسید سدیم، اسید سولفوریک و کلرید پتاسیم و ... ساخت شرکت Merck آلمان بودند. تجهیزات مربوط به واحد انعقاد الکتریکی شامل یک منبع تغذیه با اختلاف پتانسیل حداکثر ۸۰V مدل Micro و الکترودهای صفحه‌ای از جنس آلومینیوم و آهن با ابعاد ۱۱×۱۱ cm مستقر در درون یک ظرف بوکال با ابعاد ۱۰×۱۲×۱۳ cm مطابق شکل ۱، بود. اتصال الکترودها به منبع تغذیه به صورت دو قطبی صورت پذیرفت، فاصله بین الکترودها از یکدیگر برابر ۲ cm و حجم خالص ظرف برابر ۱L بود. نمونه‌های سنتتیک با غلظت‌های منتخب اولیه فنل ۵، ۲۰، ۴۰ و ۷۰ با توجه به غلظت فنل موجود در پساب‌های عمومی (۲۱)، پس از تنظیم pH اولیه ۳، ۵، ۷ و ۹ محیط آبی (آب مقطر) توسط اسید سولفوریک و هیدروکسید سدیم ۱ N و ۰/۱ با کنترل توسط pH متر مدل Denver Ultra basic-UB10 ساخت امریکا و هدایت الکتریکی  $\mu\text{s/cm}$  ۳۰۰۰، ۲۰۰۰، ۲۵۰۰، ۱۵۰۰ و ۱۰۰۰ توسط کلرید پتاسیم (KCl) ۱N (۱۱)، با کنترل توسط هدایت‌سنج مدل WTW-Cond 1310 ساخت آلمان، به داخل ظرف بوکال مستقر بر روی همزن مغناطیسی با دور آرام و یکسان برای تمامی نمونه‌ها، تزریق شد. پس از برقراری جریان الکتریکی با اختلاف پتانسیل‌های الکتریکی منتخب ۶۰ V،

پساب صنایع آسیاب چوب با راندمان حذف ۹۸٪ فنل و ۸۰٪ لیگنین، اشاره نمود (۱۶). در کشور ما نیز مطالعات متعددی در زمینه کاربرد فرایند الکتروکواگولاسیون بر حذف سایر آلاینده‌ها نظیر مطالعه Bazrafshan و همکارانش با عنوان کاربرد فرایند الکتروکواگولاسیون با استفاده از الکترودهای آلومینیومی در حذف فلزات سنگین کادمیوم از محیط آبی (۱۱)، مطالعه Ahmadi Moghadam و همکارانش با عنوان بررسی کارایی فرایند الکتروکواگولاسیون در حذف COD از فاضلاب صنعتی (۱۷)، و هم‌چنین مطالعاتی نیز بر حذف فنل توسط روش‌های دیگر از جمله مطالعه Maleki و همکاران با عنوان کاربرد زایدات کشاورزی در حذف فنل در محیط‌های آبی (۱۸)، مطالعه Jamshidi و همکاران با عنوان بررسی حذف فنل از محلول آبی با استفاده از فناوری‌های اکسیداسیون پیشرفته (۱۹)، مطالعه Kermani و همکارانش با عنوان حذف فنل توسط خاکستر شلتوک برنج و کربن فعال (۲۰)، انجام گرفته است. اما از آنجا که در کشور ما تا به این لحظه در زمینه بررسی کارایی فرایند الکتروشیمیایی (الکترو کواگولاسیون) در حذف فنل از محیط آبی، مطالعه اختصاصی انجام نگرفته است و اطلاعات جامعی در دست نیست، این مطالعه با هدف بررسی کارایی فرایند الکتروشیمیایی در حذف فنل از محیط آبی سنتتیک ضمن کاربرد الکتروده آهنی و آلومینیومی انجام پذیرفت.



شکل ۱: دستگاه الکتروکواگولاسیون با روش دو قطبی مورد استفاده (۱۲)

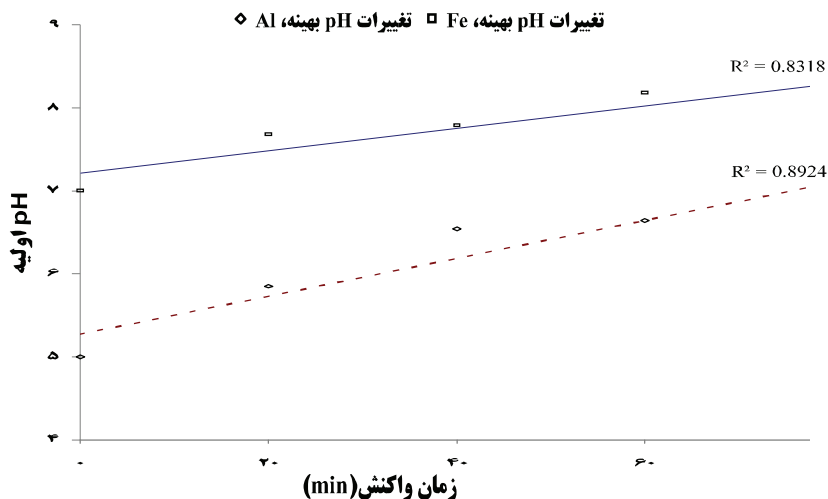


شکل ۲: تغییرات راندمان حذف فنل از محیط‌های آبی در pH های مختلف (غلظت اولیه فنل ۵ mg/L، اختلاف پتانسیل ۶۰ V، زمان واکنش ۸۰ min، هدایت الکتریکی ۳۰۰۰ μs/cm)

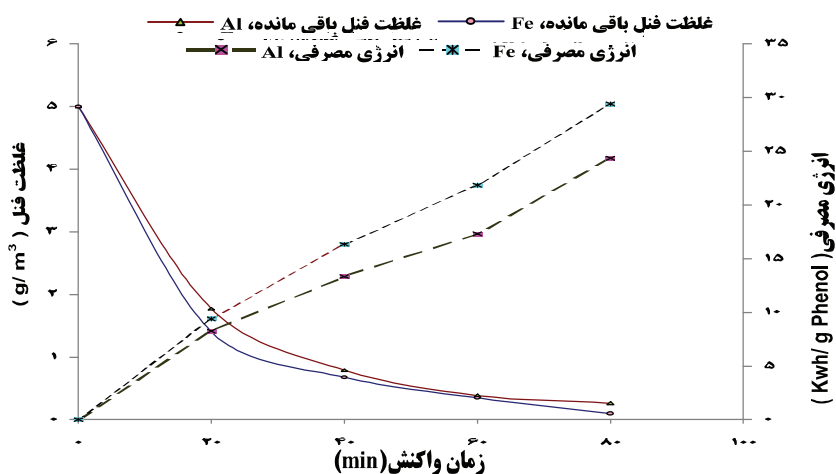
مقادیر آهن و آلومینیوم تولیدی در فرایند نیز توسط قانون فارادای محاسبه و گزارش گردید (۱۴). برای مقابله با کاهش حجم و افزایش غلظت محیط آبی ناشی از تبخیر حاصل از افزایش دما در هنگام انجام فرایند، میزان کاهش حجم محیط آبی در زمان‌های فوق سنجیده و به همان میزان آب دو بار تقطیر به محیط ظرف افزوده شد. به منظور استفاده مجدد الکترودها در سایر آزمایشات، آنها در اسید هیدروکلریک ۱ N نرمال به مدت ۳۰ min مستغرق و سپس با آب مقطر شسته و مورد استفاده قرار گرفتند.

۴۰ و ۲۰ با توجه به پیش آزمایشات و مشاهده راندمان حذف فنل بالا و حداکثر توان تولیدی منبع تغذیه، نمونه‌های ۲۵ mL از میانه ظرف در فواصل زمانی ۲۰ min و در طی زمان واکنش حداکثر ۸۰ min تهیه و غلظت باقی‌مانده فنل در نمونه‌های فوق به روش رنگ‌سنجی مطابق با روش ذکر شده در مطالعه Gomez (۲۲)، توسط دستگاه اسپکترومتر مدل UV/ T80 VIS در طول موج ۵۰۵ nm و با استفاده از معادله کالیبراسیون زیر انجام پذیرفت.

$$[\text{Phenol}] = 9.111 \times \text{ABS}_{505} - 0.756, r = 0.994$$



شکل ۳: تغییرات pH های اولیه بهینه ۵ در الکتروکود آلومینیوم و ۷ در الکتروکود آهن در زمان‌های واکنش مختلف (غلظت اولیه فنل ۵ mg/L، اختلاف پتانسیل ۶۰ V، هدایت الکتریکی ۳۰۰۰ μs/cm)

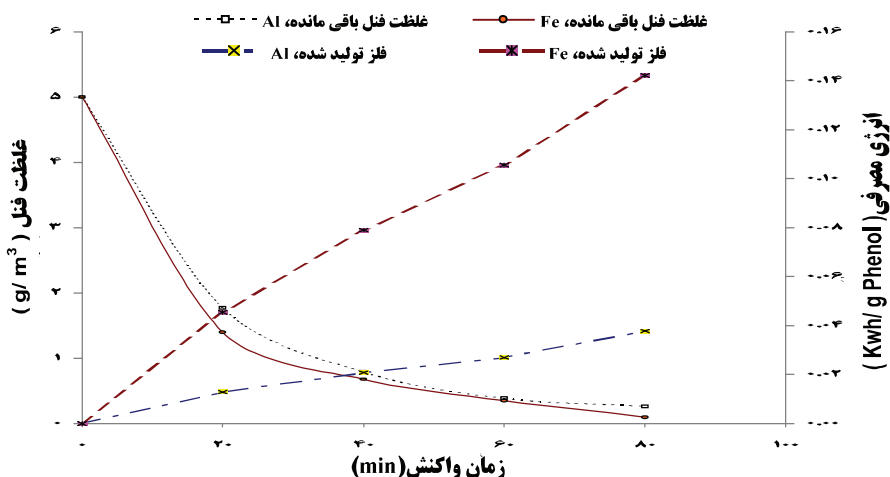


شکل ۴: تغییرات راندمان حذف فنل از محیط‌های آبی و انرژی مصرف شده در زمان‌های واکنش مختلف (غلظت اولیه فنل ۵ mg/L، اختلاف پتانسیل ۶۰V و ۷ و ۵ pH، هدایت الکتریکی ۳۰۰۰ μs/cm)

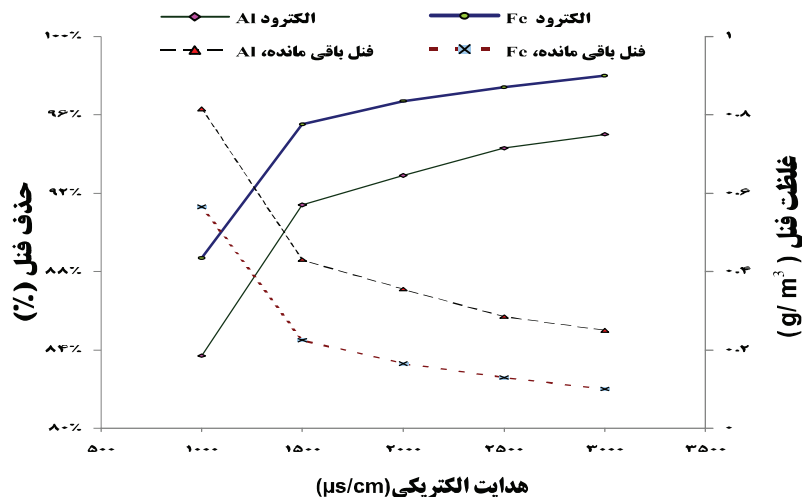
### یافته‌ها

فنل برابر ۵ mg/L، هدایت الکتریکی برابر ۳۰۰۰ μs/cm، اختلاف پتانسیل برابر ۶۰V و زمان واکنش ۸۰ min بود را نشان می‌دهد. این شکل نشان می‌دهد که راندمان حذف فنل از محیط آبی ضمن استفاده از هر دو الکتروود آهنی و آلومینیومی قربانی تقریباً یکسان است. بیشترین راندمان حذف فنل با شرایط فوق در الکتروود آهنی در pH=۷ در حدود ۹۸٪ و در الکتروود آلومینیومی در pH=۵ در حدود ۹۵٪ حاصل شد. شکل ۳ تغییرات pH نهایی را با توجه به pH اولیه بهینه مساوی ۷ در هنگام کاربرد الکتروود آهنی و pH اولیه بهینه مساوی ۵

در این مطالعه به مقایسه و بررسی کارایی استفاده از دو جنس فلز آهن و آلومینیوم با نقش الکتروود آند قربانی ضمن حفظ شرایط انجام آزمایشات کاملاً یکسان برای هر دو جنس فلز پرداخته شده است. از آنجا که آزمایشات با روش ضرب کلیه متغیرهای هر پارامتر در متغیرهای پارامتر دیگر انجام شد و با توجه به حجم زیاد نتایج و عدم امکان ارایه کامل آنها، تنها نتایجی که در آنها متغیرهای بهینه پارامترها حاصل گردید به صورت شکل‌های ۷-۲ در ادامه ارایه شد. (شکل ۲) راندمان حذف فنل را در pH های مختلف در هنگامی که غلظت اولیه



شکل ۵: تغییرات راندمان حذف فنل از محیط‌های آبی و فلز تولید شده در زمان‌های واکنش مختلف (غلظت اولیه فنل ۵ mg/L، اختلاف پتانسیل ۶۰V و ۷ و ۵ pH، هدایت الکتریکی ۳۰۰۰ μs/cm)

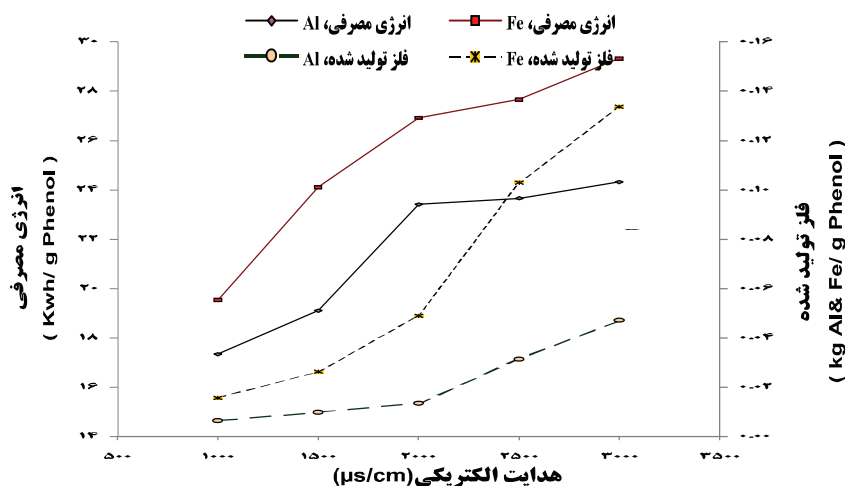


شکل ۶: تغییرات غلظت و راندمان حذف فنل در هدایت‌های الکتریکی مختلف (غلظت اولیه فنل ۵، ۷، ۵ mg/L و pH = ۵، اختلاف پتانسیل ۶۰ V، زمان واکنش ۸۰ min)

آهن  $pH = 7$  و در هنگام استفاده از الکتروود آلومینیوم  $pH = 5$ ، اختلاف پتانسیل  $60 V$  و هدایت الکتریکی  $3000 \mu s/cm$  بود، را نشان می‌دهد. این شکل بیان می‌کند که با افزایش زمان و افزایش راندمان حذف فنل در هر دو جنس الکتروود مصرف انرژی الکتریکی به صورت خطی افزایش یافته است و میزان مصرف انرژی در الکتروود آهنی بیشتر از هنگام استفاده از الکتروود آلومینیومی مشاهده شد. مصرف انرژی در زمان واکنش  $80 min$  در الکتروود آهن با راندمان حذف حدود  $98\%$  و الکتروود آلومینیوم با راندمان حذف  $95\%$  به ترتیب معادل  $29/40 Kwh$  و  $24/32$  به ازای  $1g$  فنل حذف شده در  $1m^3$  مشاهده شد.

هنگام کاربرد الکتروود آلومینیوم در زمان‌های نمونه‌برداری نشان می‌دهد. این شکل نشان می‌دهد که با کاربرد الکتروود آهنی  $pH$  پایانی در هنگامی که  $pH$  اولیه  $7$  بود با ضریب همبستگی  $0/83$  مساوی  $8/1$  و با کاربرد الکتروود آلومینیومی  $pH$  پایانی در هنگامی که  $pH$  اولیه  $5$  بود با ضریب همبستگی  $0/89$  مساوی  $6/9$  حاصل شد.

شکل ۴ تغییرات راندمان حذف فنل و میزان مصرف انرژی را بر حسب کیلو وات ساعت به ازای  $1g$  فنل حذف شده در یک مترمکعب محیط آب در زمان‌های مختلف واکنش در شرایطی که غلظت اولیه فنل برابر  $5 mg/L$ ، در هنگام استفاده از الکتروود



شکل ۷: تغییرات انرژی الکتریکی و فلز تولید شده در هدایت‌های الکتریکی مختلف (غلظت اولیه فنل  $5 mg/L$  و  $pH = 5$ ، اختلاف پتانسیل  $60 V$ ، زمان واکنش  $80 min$ )

## بحث

## بررسی اثر pH بر کارایی فرایند

تاکنون مطالعات زیادی در خصوص بررسی اثر تغییرات pH اولیه بر میزان حذف آلاینده‌ها توسط فرایند الکتروکواگولاسیون انجام گرفته است و در هر یک از آنها به نقش پراهمیت و اثر محسوس این پارامتر بر میزان حذف آلاینده‌ها اشاره شده است (۱۷-۱۱). در نتایج بسیاری از مطالعات انجام گرفته گزارش شده است که در فرایند الکتروکواگولاسیون با کاربرد الکتروکاتدیوم در واحدهای pH کمتر از ۲ و واحدهای pH بیشتر از ۱۰ با توجه به خاصیت آمفوتریک، ذرات هیدروکسید آلومینیوم در pH های زیر ۲ واحد رسوب نداشته و همچنین در pH های ۱۰ به بالا، حلالیت  $Al(OH)_3$  به فرم  $AlO_2^-$  محلول غیر قابل استفاده افزایش یافته و این امر موجب کاهش کارایی این فرایند در حذف آلاینده‌ها می‌شود. در این مطالعه نیز (شکل ۲) مشاهده شد که راندمان حذف فنل در این دو بازه کاهش محسوسی داشته است به طوری که در  $pH=5$  به بیشترین مقدار خود رسیده است (۲۳ و ۲۴). در بسیاری از مطالعات محققان بر این اصل که پارامتر pH در طول فرایند الکتروکواگولاسیون همواره دارای تغییرات متوسطی است، با یکدیگر اتفاق نظر دارند و عنوان داشته‌اند که این تغییرات pH به جنس الکتروکاتدیوم و به pH اولیه وابسته است (۱۵). در این مطالعه (شکل های ۲ و ۳) مشاهده شد که در هنگام استفاده از الکتروکاتدیوم با جنس آلومینیوم در هنگامی که pH های اولیه کمتر از ۸ تنظیم شده بودند مقادیر pH نهایی پیوسته افزایش داشته و همواره بیشتر از مقدار pH اولیه بود، در حالی که در pH اولیه بالاتر از ۸، مقادیر pH نهایی کمتر از pH اولیه مشاهده گردید. در هنگام استفاده از الکتروکاتدیوم با جنس آهن مشاهده شد که مقادیر نهایی pH همواره روند رو به رشد داشته و بیشتر از مقادیر اولیه pH است (۱۳، ۲۵ و ۲۶). برخی از محققین تغییرات pH را در فرایند الکتروکواگولاسیون ناشی از افزایش هیدروژن تولید شده از الکتروکاتدیوم و برخی دیگر این تغییرات را با توجه به این که اسیدیته در بسیاری از محیط‌های آبی، تابع وجود ترکیباتی همچون دی اکسید کربن محلول و یا اسیدهای آلی مشتق شده از ترکیبات هوموس خاک است، را به خروج گاز دی اکسید کربن ( $CO_2$ ) از محیط آبی تحت فرایند و بر اثر

شکل ۵ تغییرات راندمان حذف فنل و میزان یون آهن دو ظرفیتی و آلومینیوم سه ظرفیتی تولیدی را بر حسب کیلوگرم الکتروکاتدیوم به ازای ۱g حذف شده در  $1m^3$  محیط آب که توسط قانون فارادی محاسبه گردیده‌اند را در زمان‌های مختلف واکنش در هنگامی غلظت اولیه فنل برابر  $5 mg/L$ ، اختلاف پتانسیل  $60 V$ ، در هنگام استفاده از الکتروکاتدیوم مسای ۷ و در هنگام استفاده از الکتروکاتدیوم مسای ۵ و هدایت الکتریکی  $3000 \mu s/cm$  بود نشان می‌دهد. این شکل نشان می‌دهد که با افزایش زمان واکنش راندمان حذف فنل در هر دو جنس الکتروکاتدیوم افزایش یافته و با افزایش میزان مصرف انرژی الکتریکی، تولید یون‌های آهن و آلومینیوم نیز به صورت خطی افزایش یافته است، تولید یون آهن در الکتروکاتدیوم بسیار بیشتر از یون‌های آلومینیوم مشاهده شد. تولید یون‌های آهن دو ظرفیتی و آلومینیوم سه ظرفیتی در زمان واکنش  $80 min$  در الکتروکاتدیوم با راندمان حذف حدود  $98\%$  و الکتروکاتدیوم با راندمان حذف  $95\%$  به ترتیب معادل  $0.14 Kg$  و  $0.04$  به ازای  $1g$  فنل حذف شده در  $1m^3$  حاصل شد. میزان بسیار یون آهن تولید شده با دو پارامتر جرم مولکولی و ظرفیت فلز در قانون محاسبه فارادی مرتبط است. شکل ۶ افزایش راندمان حذف فنل را با افزایش هدایت الکتریکی حاصل از افزودن کلرید پتاسیم در غلظت اولیه فنل برابر  $5 mg/L$ ، اختلاف پتانسیل  $60 V$ ، زمان واکنش  $80 min$  و  $pH=5$  در هنگام استفاده از الکتروکاتدیوم و ۷ در هنگام استفاده از الکتروکاتدیوم را نشان می‌دهد. شکل ۷ میزان مصرف انرژی الکتریکی بر حسب Kwh به ازای هر  $1g$  فنل حذف شده و میزان یون‌های آهن دو ظرفیتی و آلومینیوم سه ظرفیتی محاسبه شده بر حسب قانون فارادی را در هدایت‌های الکتریکی مختلف حاصل از افزودن محلول کلرید پتاسیم را نشان می‌دهد. در این شکل مشاهده می‌شود که به صورت خطی مصرف انرژی در هر دو جنس الکتروکاتدیوم افزایش یافته است. مصرف انرژی در هنگام استفاده از الکتروکاتدیوم با جنس آهن به مراتب بیشتر از مصرف انرژی در هنگام استفاده از الکتروکاتدیوم آلومینیومی است. از آنجا که با مصرف انرژی تولید مواد منعقدکننده بیشتری در پی خواهیم داشت مطابق با انتظار میزان تولید یون‌های فلزی آهن و آلومینیوم نیز افزایش محسوسی داشته‌اند.



60min برای حذف آلایندة فنل مناسب نباشد و در صورت نیاز به راندمان بیشتر چنانچه سایر پارامترهای اثرگذار نظیر اختلاف پتانسیل را افزایش و تنظیم کرد، نتیجه مطلوب تری خواهیم داشت و به این مطلب در مطالعات دیگران نیز اشاره شده است (۱۷-۱۱).

#### بررسی اثر دما محیط آبی بر کارایی فرایند

کمترین و بیشترین دمای اولیه محیط آبی قبل از انجام فرایند ثبت شده در این مطالعه به ترتیب  $28/30^{\circ}\text{C}$ ،  $23/90$ ، میانگین و انحراف معیار نیز به ترتیب  $24/46^{\circ}\text{C}$  و  $1/46$  بوده است. بیشترین تغییر درجه حرارت به میزان  $41/64^{\circ}\text{C}$  در اختلاف پتانسیل  $60\text{ V}$  با هدایت الکتریکی  $3000\text{ s/cm}\mu$ ، زمان واکنش  $80\text{min}$  و در  $\text{pH}=5$  در هنگام استفاده از الکتروود آلومینیومی حاصل شد در همین شرایط در هنگام استفاده الکتروود آهنی و در  $\text{pH}=7$  دما در حدود  $36^{\circ}\text{C}$  بود. از آنجا که بیشترین راندمان‌های حذف در بالاترین میزان دمای محیط آبی حاصل شدند، بی شک می‌توان یکی از علل برتری راندمان حذف فنل را در این شرایط به اثر دما بر ارتقای راندمان حذف نسبت داد و در برخی از مطالعات بر این مطلب اشاره شده است (۲۹). با توجه به این که دمای جوش فنل  $182^{\circ}\text{C}$  و فشار بخار آن در دمای  $20^{\circ}\text{C}$ ،  $0/4\text{mmHg}$  است در مطالعه فعلی دما عامل مخلدوش‌کننده در راندمان حذف فنل در فرایند و ایجاد مقادیر راندمان کاذب، محسوب نمی‌شد (۳۰).

#### بررسی اثر هدایت الکتریکی بر کارایی فرایند

آب‌های طبیعی و تمامی فاضلاب‌ها و پساب‌ها همگی محتوی ترکیبات و یون‌های متفاوتی هستند که در صورت ایجاد پل الکتریکی در این محیط‌های آبی، یون‌های موجود مسبب انتقال جریان الکتریکی بین این پل می‌گردند. هر چه قدرت یونی این گونه‌ها بزرگتر باشد انتقال جریان در ولتاژ ثابت افزایش می‌یابد و یا در جریان یکنواخت با افزایش هدایت الکتریکی میزان ولتاژ کاهش می‌یابد (۲۸). از این رو در مطالعه حاضر اثر حضور یون‌ها بر میزان راندمان، میزان انرژی و وزن الکتروود مصرفی جهت حذف فنل در فرایند الکتروود کواگولاسیون بررسی شد (در شکل‌های ۶ و ۷). اثر هدایت الکتریکی بر راندمان حذف، انرژی و وزن الکتروود مصرفی ضمن استفاده از هر دو جنس الکتروود آهن و آلومینیوم نشان داده شده است.

اختلاط حاصل از حباب‌های گاز هیدروژن تولید شده می‌داند (۲۷). براساس این نتایج محققان بر ظرفیت بافری فرایند الکتروکواگولاسیون خصوصا در  $\text{pH}$ های متوسط تا قلیایی با یکدیگر اتفاق نظر دارند (۱۴). در شکل ۳ نیز تغییرات مقادیر  $\text{pH}$  بهینه ۵ واحد برای الکتروود آلومینیوم و ۷ واحد برای الکتروود آهن نشان داده شده است. بیشترین مقادیر راندمان حذف فنل با کاربرد الکتروود با جنس آلومینیوم در  $\text{pH}=4-5$  و با کاربرد الکتروود با جنس آهن در  $\text{pH}=6-8$  است. اهمیت این موضوع بدین علت است که با توجه به مقدار  $\text{pH}$  نهایی پس از پایان فرایند می‌توان پساب را بدون نیاز به انجام اعمال آماده‌سازی برابر با قوانین و استانداردهای  $\text{pH}$  پساب در زمان تخلیه به سایر منابع آبی از قبیل رودخانه‌ها و دریاچه‌ها آن را به راحتی دفع نمود، بنابراین استفاده از فلز آهن معقول به نظر می‌رسد. از طرف دیگر مکانیسم حذف آلایندة‌ها در زمان استفاده از الکتروود با جنس آلومینیوم تنها مکانیسم انعقاد بوده، درحالی که در زمان استفاده از الکتروود با جنس آهن علاوه بر مکانیسم انعقاد، مکانیسم اکسیداسیون هم به انجام می‌رسد (۲۸).

#### بررسی اثر زمان واکنش بر کارایی فرایند

تقریبا در تمامی مطالعات این پارامتر جزء اصلی، اولیه و پر اهمیتی در بررسی هر فرایند داشته چرا که علاوه بر کاهش هزینه‌های اقتصادی بر قدرت و قابلیت استفاده از فرایند مربوط نیز افزوده خواهد شد. در مطالعات بسیاری گزارش شده است که با افزایش زمان واکنش راندمان حذف آلایندة‌ها نیز افزایش می‌یابد اما هر چه به سمت زمان‌های واکنش بالاتر پیش برویم راندمان حذف رشد کمتری را از خود نشان می‌دهد. در واقع برای هر فرایند در حذف هر آلایندة یک زمان واکنش بهینه و ایده‌آل وجود دارد که مرز اقتصادی بودن فرایند را تعیین می‌کند. همان‌طور که در این مطالعه هم در شکل‌های ۴ و ۵ مشاهده می‌شود، با افزایش زمان واکنش راندمان حذف به سرعت افزایش داشته است و نرخ رشد آن در زمان‌های پایانی فرایند نسبت به زمان‌های واکنش اولیه کمتر بوده است. از آنجا که تنها بعد از گذشت زمان واکنش  $80\text{min}$  راندمان حذف در هر دو جنس الکتروود در حدود  $95\%$  و  $97\%$  حاصل شده است پیش‌بینی می‌شود که در نظر گرفتن زمان واکنش بیش از

حذف فنل نیز افزایش می‌یابد اشاره شده است (۳۱). در عین حال می‌بایستی در نظر داشت که افزایش راندمان و افزایش اختلاف پتانسیل افزایش هزینه‌های جانبی نظیر افزایش انرژی الکتریکی و وزن الکتروود را نیز در پی خواهد داشت.

#### بررسی اثر غلظت اولیه فنل بر کارایی فرایند

در این مطالعه آزمایشات بر روی محلول‌های سنتتیک فنل با غلظت‌های اولیه متفاوت ۵-۷۰ mg/L انجام پذیرفت. نتایج حاصل از انجام آزمایشات در شرایط ثابت با انواع غلظت‌های اولیه فنل نشان داد که غلظت اولیه می‌تواند راندمان حذف را تحت تاثیر قرار دهد به نحوی که در هنگام حضور غلظت‌های بالاتر به ولتاژ و زمان واکنش بیشتری نیاز است. در این مطالعه اثر غلظت‌های اولیه فنل مورد بررسی بر فرایند حذف ناچیز بود و کاهش اندکی در راندمان حذف با افزایش غلظت اولیه فنل مشاهده شد. این مطلب با سایر مطالعات گذشته مطابقت دارد به عنوان مثال در مطالعه Chaudhary و همکارانش گزارش شده است که با افزایش غلظت اولیه آلاینده راندمان حذف آن کاهش می‌یابد (۳۲). این موضوع توسط تئوری محلول‌های رقیق قابل تفسیر است بدین ترتیب که در محلول‌های رقیق، تشکیل لایه پراکنده در نزدیکی الکتروود سبب کندتر شدن واکنش می‌شود اما در محلول‌های غلیظ لایه پراکنده اثری بر روی میزان انتشار یون‌های فلزی به سطح الکتروود ندارد (۱۱).

#### نتیجه‌گیری

نتایج این مطالعه نشان داد که بیشترین درصد حذف فنل در این فرایند با کاربرد الکتروودهای آهنی و آلومینیومی به ترتیب در pH های ۷ و ۵، زمان واکنش ۸۰ min، هدایت الکتریکی ۳۰۰۰  $\mu\text{s}/\text{cm}$  و غلظت اولیه ۵ mg/L فنل به ترتیب در حدود ۹۵ و ۹۸ درصد است. این مطالعه نشان داد که راندمان حذف فنل در فرایند الکتروشیمیایی با تغییرات غلظت اولیه فنل از غلظت ۵ mg/L به ۷۰ با اندکی کاهش قابل چشم‌پوشی همراه بود که می‌توان با افزایش زمان واکنش تا نیل به راندمان حذف مورد نظر اثر تغییرات غلظت را از بین برد. همچنین این مطالعه نشان داد که استفاده از الکتروود آهنی هم از جنبه اقتصادی و هم از جنبه بهداشتی مناسب‌تر از الکتروود آلومینیومی است. از

حضور یون‌های کلراید در آب موجب از بین رفتن لایه اکسید غیرفعال تشکیل شده از سطوح الکتروود می‌شود بنابراین میزان مصرف انرژی در اختلاف پتانسیل ثابت افزایش یافته و راندمان حذف فنل بهبود یافته است (۱۱). این شکل نشان می‌دهد که با افزایش هدایت الکتریکی از ۳۰۰۰-۱۰۰۰۰  $\mu\text{s}/\text{cm}$ ، راندمان حذف فنل در هنگام استفاده از هر دو جنس الکتروود نیز به صورت محسوسی افزایش داشته است. در واقع مصرف انرژی بیشتر با اختلاف پتانسیل ثابت در این دو نقطه علاوه بر افزایش تولید مواد منعقدکننده، با افزایش تولید حباب‌های حاصل از متصاعد شدن گاز هیدروژن، افزایش اندازه و رشد لخته‌های تولیدی افزایش راندمان در فرایند انعقاد الکتریکی را موجب شده است (۱۱، ۲۳، ۲۵، ۲۶).

#### بررسی اثر اختلاف پتانسیل بر کارایی فرایند

در این مطالعه اثر اختلاف پتانسیل‌های ۶۰ V، ۴۰ و ۲۰ بر حذف آلاینده فنل از محیط آبی سنتتیک مورد بررسی قرار گرفت. مطابق با انتظار مشاهده شد که در یک زمان واکنش ثابت راندمان حذف فنل به طور محسوسی با افزایش اختلاف پتانسیل افزایش می‌یابد. در این مطالعه سریع‌ترین راندمان حذف در حدود ۹۸٪ در هنگام کاربرد الکتروود آهن و ۹۵٪ در هنگام استفاده از الکتروود آلومینیوم در اختلاف پتانسیل ۶۰ V در زمان واکنش ۲۰ min حاصل شد و از طرفی پایین‌ترین راندمان حذف فنل در حدود ۲۳٪ در هنگام کاربرد الکتروود آهن و ۱۸٪ در هنگام استفاده از الکتروود آلومینیوم در شرایطی حاصل شد که اختلاف پتانسیل الکتریکی در کمترین مقدار خود یعنی ۲۰ V قرار داشت. در این مطالعه راندمان حذف فنل در اختلاف پتانسیل‌های مختلف در زمان‌های اولیه واکنش با یکدیگر اختلاف چشم‌گیری داشتند و به تدریج راندمان حذف آنها در هر دو جنس الکتروود به یکدیگر نزدیک شد. این مطلب بیان‌گر این واقعیت است که در اختلاف پتانسیل‌های بالا مقادیر فلز اکسیدشده افزایش یافته و لخته‌های هیدروکسید بیشتری جهت حذف آلاینده‌ها تولید می‌گردد، به علاوه این نکته به اثبات رسیده است که با افزایش اختلاف پتانسیل دانسیته حباب‌ها افزایش و اندازه آنها کاهش می‌یابد و این امر حذف سریع‌تر و بیشتر آلاینده‌ها را به دنبال خواهد داشت (۱۱). در مطالعات مختلف از جمله مطالعه Nafaa و همکارانش بر این مطلب که با افزایش اختلاف پتانسیل راندمان

طرفی در مجموع مشخص شد که فرایند الکتروشیمیایی قادر است آلاینده فنل را با راندمان بالا از محیط آبی سنتتیک حذف نماید.

### تشکر و قدردانی

این مقاله حاصل از طرح تحقیقاتی با کد ۲۲۳۱-۹۰ و عنوان "ارزیابی راندمان حذف فنل محلول در محیط‌های آبی توسط فناوری انعقاد الکتریکی" مقطع کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط در دانشگاه علوم پزشکی زاهدان است که با حمایت مالی معاونت محترم تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی زاهدان به انجام رسیده است. بدینوسیله از آقای دکتر فردوس کرد مصطفی پور عضو هیئت علمی گروه بهداشت محیط دانشگاه علوم پزشکی زاهدان که در حل مشکلات پیش روی این مطالعه راهنمایی‌های ارزنده‌ای داشتند، تشکر و قدردانی می‌گردد.

### منابع

- 1- Dabrowski A, Podkoscielny P, Hubicki Z, Barczak M. Adsorption of Phenolic compounds by activated carbon a critical review. *Chemosphere*. 2005;58(8):1049-70.
- 2- Sullivan JB, Krieger GR. *Clinical Environmental Health and Toxic Exposures*. 2nd ed. Philadelphia: Lippincott Williams & Wilkins; 2001.
- 3- Nemerow, NL, Dasgupta A. *Industrial and Hazardous Waste Treatment*. New York: Van Nostrand Reinhold; 1991.
- 4- Caturla F, Martin-Martinez JM, Molina-Sabio M, Rodriguez-Reinoso F, Torregrosa R. Adsorption of substituted phenols on activated carbon. *Journal of Colloid and Interface Science*. 1988;124(2):528-34.
- 5- Autenrieth RL, Bonner JS, Akgerman A, Okaygun M, McCreary EM. Biodegradation of phenolic wastes. *Journal of Hazardous Materials*. 1991;28(1-2):29-53.
- 6- Patterson JW. *Industrial Wastewater Treatment Technology*. Michigan: Ann Arbor Science Publishers; 1975.
- 7- Riser-Roberts E. *Bioremediation of Petroleum Contaminates Sites*. Port Hueneme, CA: C.K. Smoley; 1992.
- 8- Hammer MJ Sr, Hammer MJ Jr. *Water and Wastewater Technology*. 5th ed. New Delhi: Prentice Hall of India Pvt. Ltd.; 2003.
- 9- WHO. *Guidelines for Drinking Water Quality*. Vol. 2. Health Criteria and Other Supporting Information. Geneva: World Health Organization; 1984.
- 10- Gupta SK, Gupta SK, Hung YT. Treatment of Pharmaceutical Waste. In: Wang LK, Hung YT, Lo HL, Yapijakis C. *Waste Treatment in the Process Industries*. Boca Raton: CRC Taylor and Francis; 2006. P.167-233.
- 11- Bazrafshan, E, Mahvi AH, Naseri S, Mesdaghinia AR. Performance evaluation of electrocoagulation process for removal of chromium (VI) from synthetic chromium solutions using iron and aluminum electrodes. *Turkish Journal of Engineering & Environmental Sciences*. 2008;32(2):59-66.
- 12- Mollah MYA, Morkovsky P, Gomes JAG, Kesmez M, Parga J, Cocke DL. Fundamentals, Present and Future Perspectives of Electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials*. 2004;114(1-3):199-210.
- 13- Adhoum N, Monser L. Decolourization and

- removal of phenolic compounds from olive mill wastewater by Electrocoagulation. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*. 2004;43(10):1281–87.
- 14- Abdelwahab O, Amin NK, El-Ashtouky ESZ. Electrochemical removal of phenol from oil refinery wastewater. *Journal of Hazardous Materials*. 2009;163(2-3):400-12.
- 15- Phutdhawong W, Chowwanapoonpohn S, Buddhasukh D. Electrocoagulation and subsequent recovery of phenolic compounds. *Analytical Science*. 2000;16(10):1083-83.
- 16- Ugurlu M, Gurses A, Dogar C, Yalcin M. The removal of lignin and phenol from paper mill effluents by electrocoagulation. *Journal Of Environmental Management*. 2008;87(3):420–8.
- 17- Ahmadi Moghadam M, Amiri H. Investigation of TOC removal from industrial wastewaters using electrocoagulation process. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2010;3(2):185-94 (in Persian).
- 18- Maleki A, Mahvi AM. Application of agricultural waste products for removal of phenol in aqueous systems. *Hormozgan Medical Journal*. 2007;10(4):393-9 (in Persian).
- 19- Jamshidi N, Torabian A, Azimi AA, Nabi Bidhendi G, Jafarzadeh M. Investigation of Phenol Removal in Aqueous Solutions Using Advanced Photochemical Oxidation (APO). *Water and Wastewater*. 2010;20(4):24-9 (in Persian).
- 20- Kermani M, Pourmoghadas H, Bina B, Khazaei Z. Removal of phenol from aqueous solution by rice hush ash and actived carbon. *Pakistan Journal of Biological Science*. 2006;9(10):1905-10.
- 21- Edwards Jd. *Industrial Wastewater Treatment, A Guidebook*. Boca Raton: Lewis Publishers; 1995.
- 22- Gomez JL, Bodalo A, Gomez E, Bastida J, Hidalgo AM, Gomez M. Immobilization of peroxidases on glass beads: An improved alternative for phenol removal. *Enzyme and Microbial Technology*. 2006;39(5):1016-22.
- 23- Shen F, Chen X, Gao P, Chen G. Electrochemical removal of fluoride ions from industrial wastewaters. *Chemical Engineering Science*. 2003;58(3):987–93.
- 24- Holt PH, Barton GW, Wark M, Mitchell CA. A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 2002;211(2-3):233–48.
- 25- Nouri J, Mahvi AH, Bazrafshan E. Application of electrocoagulation process in removal of zinc and copper from aqueous solutions by aluminum electrodes. *International Journal of Environmental Research*. 2010;4(2):201-8.
- 26- Bazrafshan E, Mahvi AH, Nasser S, Shaighi M. Performance evaluation of electrocoagulation process for diazinon removal from aqueous environment by using iron electrodes. *Iranian Journal of Environmental Health Science & Engineering*. 2007;4(2):127-32.
- 27- Twort AC, Ratnayaka DD, Brandt MJ. *Water Supply*. 5th ed. Oxford: Butterworth-Heinemann; 2000.
- 28- Kobya M, Taner Can O, Bayramoglu M. Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation using iron and aluminum electrodes. *Journal of Hazardous Materials*. 2003;100(1-3):163–78.
- 29- Koparal AS, Yildiz YS, Keskinler B, Demircioglu N. Effect of initial pH on the removal of humic substances from wastewater by electrocoagulation. *Separation and Purification Technology*. 2008;59:175–82.
- 30- Quint U, MiiUer RT, Miiller G. Characteristics of phenol. *Archives of Orthopaedic and Trauma Surgery*. 1998;117(1- 2):43-6.
- 31- Adhoum N, Monser L, Bellakhal N, Belgaied JE. Treatment of electroplating wastewater containing Cu<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup> and Cr(VI) by electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials*. 2004;112(3):207–13.
- 32- Chaudhary AJ, Goswami NC, Grimes .M. Electrolytic removal of hexavalent chromium from aqueous solutions. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*. 2003;78:877–83.