



## رنگبری رنگزاهای نساجی با استفاده از روش انعقاد الکتروشیمیایی در سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی

المیرا پژوتن<sup>۱</sup>، مختار آرامی<sup>۲\*</sup>، سید هژیر بهرامی<sup>۳</sup>، نیازمحمد محمودی<sup>۴</sup>، منوچهر نیک آذر<sup>۵</sup>

۱- دانشجوی کارشناسی ارشد، دانشکده مهندسی نساجی، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۵۸۷۵-۴۴۱۳

۲- استاد، دانشکده مهندسی نساجی، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۵۸۷۵-۴۴۱۳

۳- دانشیار، دانشکده مهندسی نساجی، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۵۸۷۵-۴۴۱۳

۴- استادیار، گروه پژوهشی رنگ و محیط زیست، پژوهشگاه علوم و فناوری رنگ، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۶۷۶۵-۶۵۴

۵- استاد، دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی امیرکبیر، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۵۸۷۵-۴۴۱۳

تاریخ دریافت: ۸۹/۲/۱۳ تاریخ پذیرش: ۸۹/۷/۲۱ در دسترس به صورت الکترونیکی از: ۱۳۹۰/۶/۲۰

### چکیده

در این تحقیق رنگبری دو رنگزای متال کمپلکس زرد و اسیدی مشکی (Acid Black 26 و Acid Yellow 59) از پساب‌های نساجی به روش انعقاد الکتروشیمیایی با استفاده از الکترودهای آلومینیومی در سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی انجام گرفته است. عوامل مؤثر بر فرآیند رنگبری مانند هدایت الکتریکی، چگالی جریان، غلظت اولیه رنگزا و pH بررسی شد. در تحلیل سیستم‌های دوجزئی توسط اسپکتروفوتومتر قانون بیر - لامبرت به کار رفت و اندازه‌گیری جذب در دو طول موج برای هر نمونه منجر به محاسبه دقیق غلظت و ضریب خاموشی هر جزء در طول موج حداکثرشان شد. داده‌ها نشان دادند که چگالی جریان تأثیر مثبتی روی بازده رنگبری دارد. همچنین مشخص شد که افزایش هدایت الکتریکی تأثیر زیادی روی بازده رنگبری ندارد اما سبب کاهش ولتاژ سل می‌شود. نتایج نشان داد که داده‌های به دست آمده برای سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی، بسیار به هم نزدیک هستند و بنابراین، انعقاد الکتروشیمیایی یک روش مؤثر برای رنگبری رنگزا در سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی می‌باشد. واژه‌های کلیدی: انعقاد الکتروشیمیایی، رنگزای متال کمپلکس و اسیدی، سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی، رنگبری.

## Textile Dye Removal by Electrocoagulation From Single and Binary Systems

E. Pajootan<sup>1</sup>, M. Arami<sup>2\*</sup>, H. Bahrami<sup>1</sup>, N. M. Mahmoodi<sup>2</sup>, M. Nikazar<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Textile Engineering Department, Amirkabir University of Technology, P.O. Box: 15875-4413, Tehran, Iran

<sup>2</sup> Department of Environmental Research, Institute for Color Science and Technology, P.O.Box: 16765-654, Tehran, Iran

<sup>3</sup> Chemical Engineering Department, Amirkabir University of Technology, P.O. Box: 15875-4413, Tehran, Iran

Received: 03-05-2010

Accepted: 13-10-2010

Available online: 11-12-2011

### Abstract

In this study, the dye removal of acid and metal complex dyes (Acid Black 26 and Acid Yellow 59) by electrocoagulation process using aluminum electrodes were studied at single and binary systems. The effect of several operating parameters such as conductivity, current density, initial dye concentration and pH on the electrocoagulation process was studied. The Beer-Lambert's law has been applied to the binary system analysis by spectrophotometer and measurements at two wavelengths for each sample have led to determine the concentration and extinction coefficient of the two components at their maximum wavelength. It was found that increasing the current density has a positive effect on color removal efficiency. It was also indicated that increasing conductivity, did not have a significant effect on color removal efficiency but decreased the cell voltage. The most important result is that the data for single and binary systems are too close and it can be concluded that the electrocoagulation process is an effective method to remove acid and metal complex dyes from single and binary systems. *J. Color Sci. Tech.* 5(2011), 207-216© Institute for Color Science and Technology.

**Keywords:** Electrocoagulation, Metal complex and acid dye, Single and binary systems, Dye removal.

## ۱- مقدمه

پساب حاصل از صنعت نساجی طی فرآیندهای رنگرزی و تکمیل، برای سالیان متمادی مشکلی بزرگ برای محیط زیست بوده است. نساجی یکی از آلوده‌ترین صنایع به دلیل رنگ زیاد، مواد جامد معلق، pH بالا یا پایین و قابلیت تخریب زیست محیطی کم می‌باشد. تخمین زده می‌شود که هر ساله حدود ۵۰۰۰۰ تن مواد رنگزای حاصل از رنگرزی به محیط زیست تخلیه می‌گردد. پساب رنگی و سمی تخلیه شده به محیط نیز تحت واکنش‌های شیمیایی و بیولوژیکی قرار می‌گیرد و اکسیژن محلول در آب را مصرف می‌کند. بنابراین، تصفیه پساب نساجی از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است [۹-۱].

از آنجایی که تنوع محصولات نساجی افزایش یافته است، رنگزاهای مختلف با ساختارهای متفاوت و پیچیده وارد جریان پساب می‌شود که تصفیه پساب را دشوار می‌سازد [۱۰]. روش‌های متداول تصفیه پساب شامل جذب، ته‌نشینی، تجزیه شیمیایی، انعقاد شیمیایی، تجزیه بیولوژیکی و روش‌های اکسیداسیون پیشرفته است. اگرچه این روش‌ها به طور گسترده‌ای استفاده می‌شوند، معایبی نیز دارند [۱۵-۱۰]. به عنوان مثال، روش‌های بیولوژیکی زمان‌بر هستند و نمی‌توانند رنگزاهای پیچیده و قابلیت تخریب زیست محیطی کم را تخریب کنند و یا به دلیل اثرات مضر برخی رنگزاهای تجاری روی میکرو ارگانیسم‌ها، قابل استفاده نیستند [۱۲]. [۱۱]. به عنوان مثال جاذب‌ها برای تولید مجدد دشوار هستند [۱۳]. انعقاد شیمیایی سبب آلودگی بیشتر بدلیل واکنش‌های نامطلوب در پساب می‌شود و لجن زیادی تولید می‌کند [۱۰]. اکسیداسیون شیمیایی متداول مانند استفاده از کلرین سرعت پایین و نیاز به انتقال و ذخیره‌سازی مواد واکنش‌گر خطرناک دارد. به علاوه در این روش‌ها، بازده تصفیه، کافی نیست چون ترکیبات موجود در پساب بسیار متنوع هستند [۱۴] و روش‌های اکسیداسیون پیشرفته مانند ازناسیون، فوتوکاتالیست و فنتون پرهزینه و از نظر اقتصادی عملی نیستند [۱۳]. بنابراین برای تصفیه پساب نساجی نیاز به روش‌های مؤثرتر و ارزان‌تر است که نیاز به حداقل مواد شیمیایی و مصرف انرژی را داشته باشد. در سال‌های اخیر تحقیقات روی تصفیه پساب به روش‌های انعقاد الکتروشیمیایی متمرکز شده است [۱۴].

انعقاد الکتروشیمیایی یک روش مؤثر است که عامل منعقدکننده در محل توسط اکسیداسیون الکتریکی آند تولید می‌شود [۱۶]. انعقاد الکتریکی برای تصفیه پساب‌های شامل روغن [۱۷، ۱۸]، مواد غذایی [۱۹]، رنگزا [۲۰]، محلول‌های حاوی فلزات سنگین [۲۱، ۲۲] و غیره به کار رفته است.

پس انعقاد الکتریکی شامل تولید ماده منعقدکننده در محلول توسط انحلال الکتریکی یون‌های آلومینیوم یا آهن به ترتیب از الکترودهای آلومینیوم و آهن است. تولید یون‌های فلزی در آند اتفاق

می‌افتد و گاز هیدروژن در کاتد رها می‌شود [۲۳]. گاز هیدروژن می‌تواند به شناورسازی ذرات توده‌ای برای خروج از آب کمک کند [۲۴].

انعقاد الکتریکی شامل سه مرحله موفقیت‌آمیز است:

(۱) تشکیل ماده منعقدکننده توسط اکسیداسیون الکتروشیمیایی الکتروود مصرف‌شونده (آند)

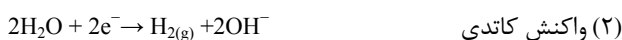
(۲) ناپایداریسازی آلاینده‌ها، سوسپانسیون ذرات و شکستن امولسیون‌ها

(۳) تجمع فاز ناپایدار شده و تشکیل لخته [۲۵].

واکنش اصلی برای آند آلومینیومی به صورت رابطه ۱ است:



الکترولیز آب نیز در کاتد و آند مطابق روابط ۲ و ۳ رخ می‌دهد:



به علاوه، یون‌های فلزی تولید شده در آند و یون‌های هیدروکسید تولید شده در سطح الکتروودها در محلول پساب واکنش می‌دهند و هیدروکسیدهای متنوعی تشکیل می‌دهند و در نتیجه شبکه‌های بزرگی را می‌سازند [۲۶].



یون‌های  $\text{Al}^{3+}$  در حال رشد، منعقدکننده‌های بسیار مؤثری برای توده‌ای کردن ذرات هستند. یون‌های آلومینیوم آبکافت شده می‌تواند شبکه‌های بزرگی از  $\text{Al-O-Al-OH}$  را تشکیل دهد که می‌تواند آلاینده‌ها را به صورت شیمیایی جذب کند [۲۶].

بررسی و مرور مقالات نشان داد که فرآیند الکتروشیمیایی برای رنگبری و تصفیه پساب‌های حاوی یک رنگزا (سیستم‌های یک جزئی) انجام شده است اما تحقیقات در زمینه پساب‌های حاوی رنگزاهای مختلف از جمله سیستم‌های دو جزئی انجام نشده است. از آنجایی که اغلب پساب‌های صنعتی نساجی شامل چندین جزء است، در این تحقیق، آزمایشات برای مطالعه قابلیت کاربرد روش انعقاد الکتروشیمیایی برای حذف دو رنگزای متال کمپلکس زرد و اسیدی مشکی (Acid Black 26 (AB26) و Acid Yellow 59 (AY59) در سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی انجام شده است. تأثیر عامل‌های مؤثر بر فرآیند، مانند غلظت اولیه رنگزا، pH، چگالی جریان و هدایت الکتریکی در انعقاد الکتروشیمیایی بررسی شده است.

## ۲- بخش تجربی

## ۲-۱- مواد

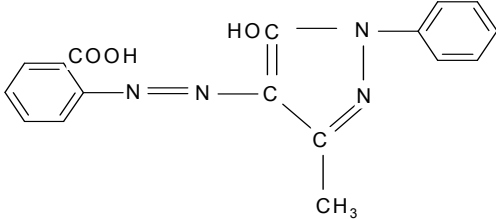
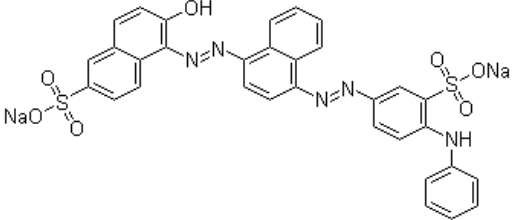
دو رنگزای متال کمپلکس زرد (Acid Yellow 59 (AY59) و اسیدی مشکی (Acid Black 26 (AB26) از شرکت سیبا خریداری گردید و بدون خالص سازی استفاده شدند.

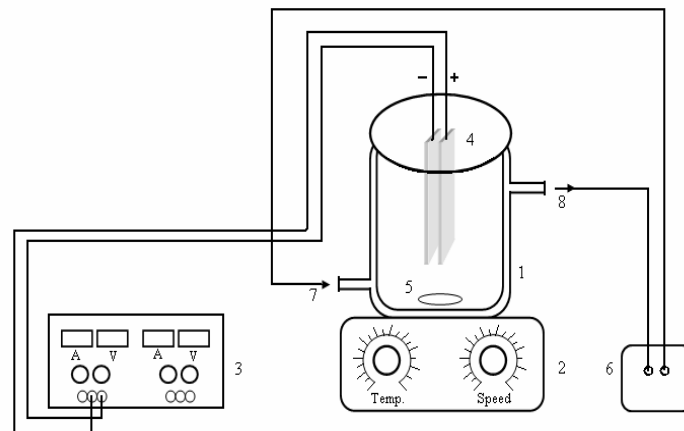
## ۲-۲- روش کار

تجهیزات انعقاد الکتروشیمیایی به طور شماتیک در شکل ۱ ارائه شده

است. راکتور انعقاد الکتروشیمیایی شامل یک سل سیلندری شکل به حجم ۰,۴ لیتر با شیشه دوجداره می باشد که با چرخش آب در آن دما ثابت نگه داشته می شود. تمامی آزمایش ها در دمای  $1 \pm 21^\circ\text{C}$  انجام شد. الکترودهای آلومینیومی با ابعاد  $(50 \times 20 \times 1 \text{ mm}^3)$  که از شرکت آلوپارس اراک (خلوص ۹۸٪) تهیه شد به عنوان آند و کاتد استفاده شد. فاصله بین الکترودها در همه آزمایش ها ۱۰ mm بود. منبع تغذیه دیجیتال (Dual-Tracking DC Power Supply, ESCORT 3060TD) برای کنترل چگالی جریان استفاده شد.

جدول ۱: مشخصات رنگزاهای مورد استفاده.

| رنگزا                                      | C.I. Acid Yellow 59                                                                                                  | C.I. Acid Black 26                                                                |
|--------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| ساختار شیمیایی                             | کمپلکس ۱:۲ کروم با ساختار زیر<br> |  |
| دسته بندی شیمیایی                          | آزو (متال کمپلکس)                                                                                                    | دی آزو                                                                            |
| شماره ساختمانی                             | ۱۸۶۹۰                                                                                                                | ۲۷۰۷۰                                                                             |
| طول موج بیشینه $\lambda_{\text{max}}$ (nm) | ۴۳۵,۵                                                                                                                | ۵۵۵                                                                               |



شکل ۱: راکتور انعقاد الکتروشیمیایی. ۱- سل انعقاد الکتروشیمیایی، ۲- همزن مغناطیسی، ۳- منبع تغذیه، ۴- الکترودهای آلومینیومی، ۵- مگنت، ۶- پمپ آب، ۷- ورودی آب، ۸- خروجی آب.

و AB26 می‌باشد.  $A_{YY}$  و  $A_{BY}$  به ترتیب جذب‌های AY59 و AB26 در طول موج بیشینه AY59 و  $A_{BB}$  و  $A_{YB}$  به ترتیب جذب‌های AB26 و AY59 در طول موج بیشینه AB26 می‌باشد. از ترکیب رابطه‌های ۸ و ۹ با رابطه ۷ خواهیم داشت:

$$A_Y = \varepsilon_{YY} C_Y + \varepsilon_{BY} C_B \quad (10)$$

$$A_B = \varepsilon_{YB} C_Y + \varepsilon_{BB} C_B \quad (11)$$

که  $\varepsilon_{YY}$  و  $\varepsilon_{BY}$  به ترتیب ضرایب خاموشی AY59 و AB26 در طول موج بیشینه ( $\lambda_{max}$ ) AY59 می‌باشد.  $\varepsilon_{BB}$  و  $\varepsilon_{YB}$  به ترتیب ضرایب‌های خاموشی AY59 و AB26 در طول موج بیشینه AB26 می‌باشد.  $C_Y$  و  $C_B$  نیز به ترتیب غلظت AY59 و AB26 در سیستم دوجزئی می‌باشد. بعد از محاسبه ضرایب خاموشی،  $C_Y$  و  $C_B$  برای هر نمونه گرفته شده در فواصل زمانی منظم به دست می‌آید. مقادیر ضرایب خاموشی محاسبه شده در جدول ۲ آورده شده است.

جدول ۲: مقادیر محاسبه شده ضرایب خاموشی (L/mol cm).

| ضرایب خاموشی       | مقدار محاسبه شده |
|--------------------|------------------|
| $\varepsilon_{YY}$ | ۵۵۳۵٫۹           |
| $\varepsilon_{BY}$ | ۷۸۲۸٫۹۹          |
| $\varepsilon_{YB}$ | ۱۵۲۲٫۳۷          |
| $\varepsilon_{BB}$ | ۹۲۲۹٫۹۶          |

### ۳- نتایج و بحث

عوامل مختلفی همچون هدایت الکتریکی، چگالی جریان، غلظت اولیه رنگ و pH روی فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی تأثیر دارند. برای بهبود بازده و کارایی این روش، تأثیر این عوامل در سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی مورد بررسی قرار گرفته است.

#### ۳-۱- آزمایشات تکرارپذیری

به منظور محاسبه انحراف معیار استاندارد نسبی طی رنگبری در روش انعقاد الکتروشیمیایی، چهار آزمایش در شرایط یکسان روی AB26 و AY59 انجام شد ( $40 \text{ A/m}^2 =$  چگالی جریان،  $\text{pH}=5$ ،  $2 \text{ g/l} = \text{NaCl}$  و  $200 \text{ mg/l} =$  غلظت اولیه رنگزا).

نتایج حاصل از جدول ۳ نشان می‌دهد که انعقاد الکتروشیمیایی یک روش مناسب تصفیه پساب‌های حاوی مواد رنگزا با تکرارپذیری خوبی می‌باشد ( $R.S.D. < 3\%$ ) [۱۶].

در تمام آزمایش‌ها از ۲۵۰ ml محلول رنگ استفاده شد. از هم‌زن مغناطیسی با سرعت ثابت ۲۰۰ rpm برای هم‌زدن محلول رنگ در طی آزمایش‌ها استفاده شد. نمک سدیم کلراید (شرکت Merck) برای تنظیم هدایت الکتریکی و اسید نیتریک و سدیم هیدروکساید نیز برای تنظیم pH به کار رفتند. آزمایش‌ها با تنظیم جریان در مقدار مورد نظر شروع شد. در طول آزمایش نمونه‌ها در فواصل زمانی منظم گرفته و سپس صاف شدند.

قبل از هر آزمایش الکترودها به ترتیب در محلول HCl و استون برای از بین بردن روغن و ناخالصی‌های سطحی شسته و سپس با سمباده سطح آنها صیقل داده شد و در نهایت به مدت ۳۰ دقیقه در گرم‌خانه  $110^\circ \text{C}$  خشک شدند.

اندازه‌گیری pH و هدایت الکتریکی توسط pH/Conductivity meter (ELMETRON CPC-501) انجام شد. اسپکتروفوتومتر فرابنفش - مرئی CECIL 9200 برای اندازه‌گیری میزان جذب محلول استفاده گردید. طول موج بیشینه ( $\lambda_{max}$ ) برای AB26 و AY59 به ترتیب ۴۳۵٫۵ و ۵۵۵ نانومتر بود که جذب در این طول موج‌ها با غلظت رنگ رابطه خطی دارد، به همین دلیل برای تعیین میزان رنگبری، کاهش جذب در این طول موج‌ها اندازه‌گیری شد. بازده رنگبری با استفاده از رابطه ۶ به دست آمده است:

$$CR\% = [(A_0 - A)/A_0] \times 100 \quad (6)$$

که در آن  $A$  و  $A_0$  به ترتیب میزان جذب نور رنگزا قبل و بعد از رنگبری می‌باشد.

با استفاده از قانون بیر - لامبرت داریم [۲۷،۲۸]:

$$A = \varepsilon l C \quad (7)$$

که  $\varepsilon$ ،  $l$  و  $C$  به ترتیب ضرایب خاموشی (L/mol cm)، طول مسیر (cm) و غلظت محلول (mol/l) می‌باشد. قانون بیر - لامبرت می‌تواند برای تحلیل مخلوط با استفاده از اسپکتروفوتومتر به کار رود. بنابراین اندازه‌گیری جذب در دو طول موج برای هر نمونه منتج به یک دستگاه دو معادله و دو مجهول می‌شود که با حل دستگاه، ضرایب خاموشی هر جزء را می‌توان به دست آورد [۲۸]. برای سیستم دو جزئی می‌توان نوشت:

$$A_Y = A_{YY} + A_{BY} \quad (8)$$

$$A_B = A_{YB} + A_{BB} \quad (9)$$

که  $A_Y$  و  $A_B$  به ترتیب جذب کلی در طول موج بیشینه AY59 ( $\lambda_{max}$ )

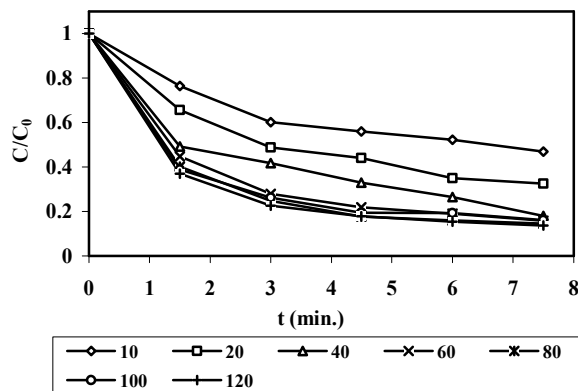
۳-۲- تأثیر چگالی جریان

در تحقیقات گذشته نشان داده شده است که چگالی جریان (CD)، بر بازده فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی تأثیر زیادی دارد [۱۶،۲۷].  
تأثیر چگالی جریان روی رنگبری در سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی با تغییر در محدوده  $10-120 \text{ A/m}^2$  بررسی شد. شکل ۲ (a, b, c و d) تأثیر چگالی جریان را بر بازده رنگبری نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که با افزایش چگالی جریان تا  $40 \text{ A/m}^2$ ، بازده رنگبری تا حدود  $82\%$  برای AB26 و تا حدود  $94\%$  برای AY59 در سیستم یک جزئی و دو جزئی افزایش می‌یابد. از طرف دیگر با دو برابر شدن چگالی جریان یعنی  $80 \text{ A/m}^2$ ، بازده رنگبری تا حدود  $85\%$  برای AB26 و تا حدود  $95\%$  برای AY59 و با سه برابر شدن چگالی جریان یعنی  $120 \text{ A/m}^2$  بازده رنگبری تا حدود  $86\%$  برای AB26 و تا حدود  $96\%$  برای AY59 در سیستم یک جزئی و دو جزئی افزایش می‌یابد. بنابراین با افزایش چگالی جریان از  $40 \text{ A/m}^2$  تا  $120 \text{ A/m}^2$  بازده رنگبری به مقدار ناچیزی در هر دو سیستم یک جزئی و دو جزئی افزایش می‌یابد. بنابراین چگالی جریان  $40 \text{ A/m}^2$  به عنوان مقدار بهینه برای هر دو سیستم تک جزئی و دو جزئی انتخاب شده است.

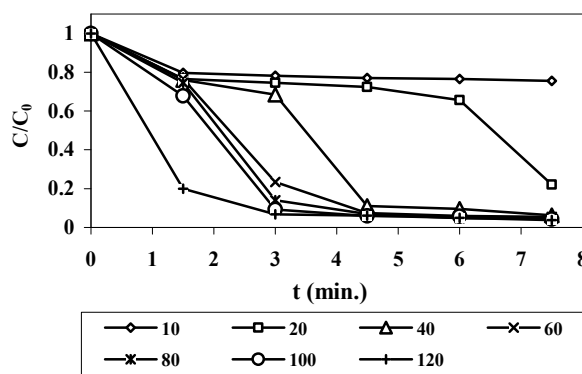
جدول ۳: نتایج آزمایشات تکرارپذیری.

| شماره آزمایش                                                 | Acid Yellow 59   | C.I. Acid Black 26 |
|--------------------------------------------------------------|------------------|--------------------|
|                                                              | C/C <sub>0</sub> | C/C <sub>0</sub>   |
| آزمایش ۱                                                     | ۰,۰۶۰۷۸۴         | ۰,۱۸۱۸۵۷           |
| آزمایش ۲                                                     | ۰,۰۶۱۹۷۹         | ۰,۱۸۰۳۰۹           |
| آزمایش ۳                                                     | ۰,۰۶۱۲۷۵         | ۰,۱۷۱۸۵۲           |
| آزمایش ۴                                                     | ۰,۰۶۲۳۳۴         | ۰,۱۷۷۲۱۵           |
| $\bar{x} = \sum_{i=1}^n \frac{x_i}{n}$                       | ۰,۰۶۱۵۶۸         | ۰,۱۷۷۸۰۸           |
| $R.S.D(\%) = \left(\frac{S_r}{\bar{x}}\right) \times 100$    | ۱,۰۷۴۵۱۴         | ۲,۴۸۲۹۹۶           |
| $S_r(x) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n-1}}$ | ۰,۰۰۰۶۶۲         | ۰,۰۰۴۴۱۵           |

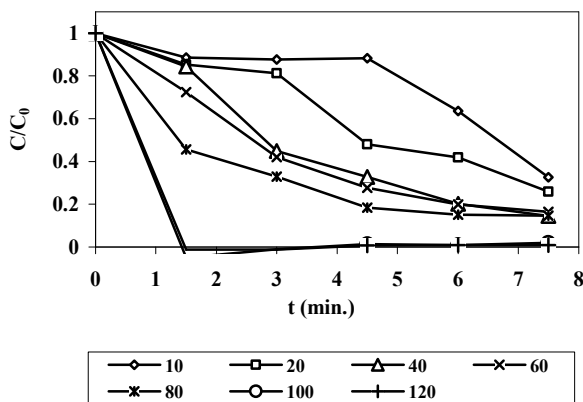
$n=4^*$  تعداد آزمایشات انجام شده،  $\bar{x}$  میانگین،  $Sr(x)$  انحراف معیار استاندارد تکرارپذیری و R.S.D. انحراف معیار استاندارد نسبی می‌باشد.



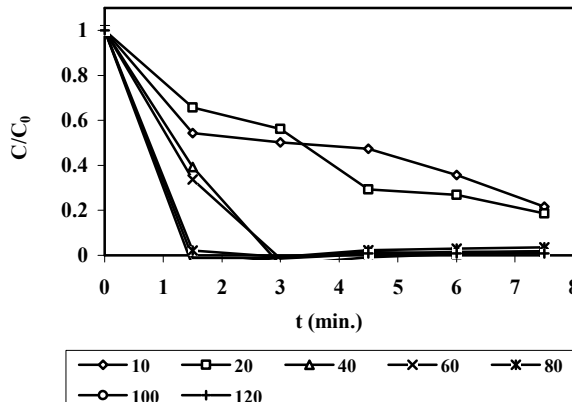
(b)



(a)



(d)



(c)

شکل ۲: تأثیر چگالی جریان (CD) روی حذف رنگزا در فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی (۲۰۰ mg/l = غلظت اولیه رنگزا، pH=۵ و NaCl = ۲ g/l). (a) AY59 در سیستم یک جزئی، (b) AB26 در سیستم یک جزئی، (c) AY59 در سیستم دو جزئی، (d) AB26 در سیستم دو جزئی.

### ۳-۳- تأثیر pH

برای بررسی اثر pH روی رنگبری، pH محلول حاوی رنگ از ۲٫۵ تا ۱۰ تغییر داده شد، که شکل ۴ (a, b, c و d) تأثیر pH روی رنگبری را نشان می‌دهد.

نتایج نشان می‌دهد که در هر دو سیستم یک جزئی و دو جزئی در pH=۵، میزان رنگبری بیشتر از سایر مقادیر pH است.  $Al^{3+}$  برحسب pH محیط می‌تواند به گونه‌های مونومری قابل حل مانند  $Al(OH)_2^+$ ،  $Al(OH)_3$ ،  $Al(OH)_4^-$  و  $Al(OH)_2^+$  در محیط اسیدی و  $Al(OH)_4^-$  در محیط بازی، یون‌های غالب هستند که کاتیون‌ها می‌توانند به گونه‌های پلیمری مانند  $Al_2(OH)_2^{4+}$ ،  $Al_6(OH)_{15}^{3+}$  و ... تبدیل شوند. همچنین کاتیون‌ها می‌توانند به گونه غیر قابل حل  $Al(OH)_3$  نیز تبدیل گردند. هیدروکسیدهای آلومینیوم تولید شده در pH حدود ۵، کم‌ترین حلالیت را دارند و به عنوان منعقد کننده عمل می‌کنند و گروه‌های آنیونیکی رنگزا توسط اتصال با کاتیون‌های پلیمری آلومینیوم یا جذب شیمیایی به لخته‌های دارای بار مثبت  $Al(OH)_3$  از محلول رنگ جدا می‌شود. در pHهای بالاتر از ۶٫۵ تولید  $Al(OH)_4^-$  و ته‌نشینی  $Al(OH)_3$  با بار منفی افزایش می‌یابد و مانع سازوکار جذب به دلیل وجود نیروی دافعه می‌شود. مقداری از آلومینیوم منعقدکننده حل می‌شود و مقداری از رنگ جذب شده را به محلول باز می‌گرداند [۲۰۷، ۱۴].

در pH حدود ۲ به دلیل رفتار آمفوتریک  $Al(OH)_3$ ، عمل منعقدسازی انجام نمی‌شود [۱۶]. در شکل ۴ مشاهده می‌شود که تأثیر pH در رنگبری در سیستم یک جزئی و دو جزئی به هم نزدیک است. به عنوان مثال بازده رنگبری در pH=۵ برای AB26 به ترتیب ۸۳٪ و ۸۴٪ و برای AY59، ۹۴٪ و ۹۱٪ در سیستم یک جزئی و دو جزئی می‌باشد. بنابراین pH=۵ به عنوان pH بهینه برای هر دو سیستم یک جزئی و دو جزئی انتخاب شده است.

### ۳-۴- تأثیر غلظت الکترولیت (هدایت الکتریکی)

تأثیر غلظت NaCl روی رنگبری در شکل ۵ ارائه شده است. نتایج نشان می‌دهد که افزایش غلظت نمک تأثیر چندانی بر بازده رنگبری در هر دو سیستم یک جزئی و دو جزئی ندارد. افزایش غلظت نمک از ۲ تا ۸ g/l، بازده رنگبری AB26 در سیستم یک جزئی و دو جزئی را تقریباً تغییر نمی‌دهد و بازده رنگبری AY59 را در حدود ۳٪ افزایش داده است. مشاهده می‌شود که تأثیر افزایش غلظت نمک نیز در سیستم یک جزئی و دو جزئی مشابه است.

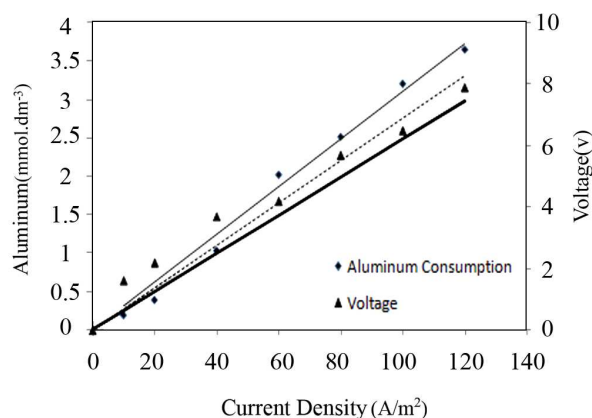
در شکل ۲ مشاهده می‌شود که نتایج حاصل از اعمال چگالی جریان‌های مختلف در سیستم یک جزئی بسیار شبیه به نتایج موجود در سیستم دو جزئی است. بنابراین چگالی جریان بهینه برای هر دو سیستم یک مقدار است. وقتی چگالی جریان افزایش می‌یابد مقدار  $Al^{3+}$  حاصل از اکسایش در آند نیز مطابق قانون فارادی افزایش می‌یابد (معادله ۱۲). هرچه مقدار یون آلومینیوم افزایش یابد، بازده لخته‌سازی و در نتیجه رنگبری افزایش می‌یابد. بعلاوه سرعت تولید گاز هیدروژن نیز افزایش می‌یابد و شناورسازی لخته‌های تولید شده بیشتر می‌شود. اما وقتی جریان بیش از حد زیاد باشد، ولتاژ سل نیز زیاد می‌شود و احتمال هدر رفتن انرژی الکتریکی و گرم شدن آب وجود دارد. همچنین جریان بیش از حد منجر به کاهش بازده جریان می‌شود [۲۹].

قانون فارادی رابطه جریان الکتریکی ( $I$  به مدت  $t$ ) را با مقدار یون آلومینیوم ( $m$ ) تولید شده در سل الکترولیتی نشان می‌دهد.

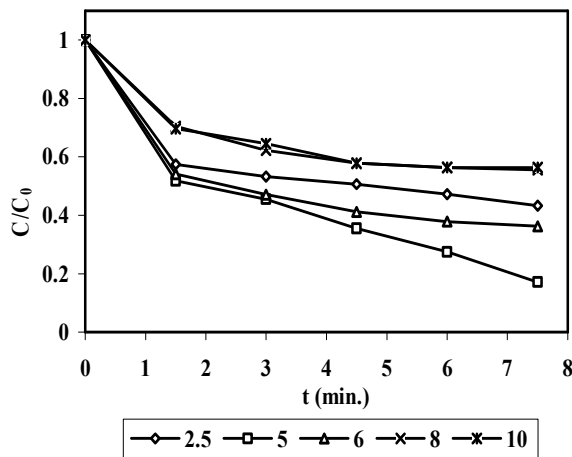
$$m = (I \cdot t \cdot M) / (z \cdot F) \quad (12)$$

که در آن  $F$  و  $M$  به ترتیب تعداد الکترون‌های جابجا شده در واکنش‌های الکترودها (۳ برای آلومینیوم)، وزن مولکولی ( $g/mol$ ) و ثابت فارادی ( $96500 C/mol$ ) می‌باشد [۳۰].

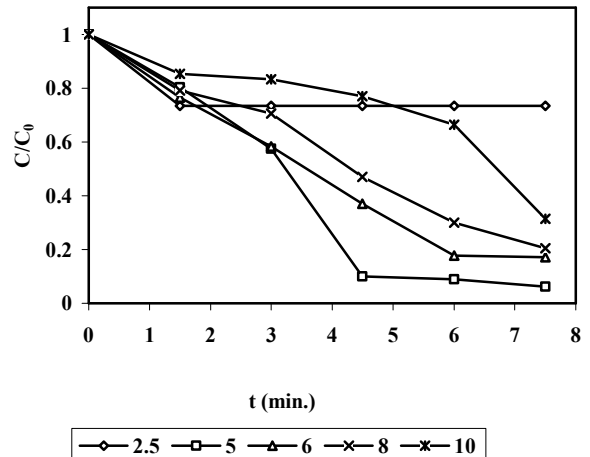
شکل ۳ تغییرات میزان آلومینیوم تولید شده را نسبت به چگالی جریان در فرآیند الکتروشیمیایی با مقدار پیش‌بینی شده توسط قانون فارادی نشان می‌دهد. همان‌طور که دیده می‌شود با افزایش چگالی جریان، میزان آلومینیوم تولید شده به صورت خطی افزایش می‌یابد. مقادیر تجربی بیشتر از مقدار پیش‌بینی شده است (زمانی که فرآیند کاملاً الکتروشیمیایی باشد). این اختلاف مشاهده شده به دلیل تجزیه شیمیایی سطح الکترودها می‌باشد [۳۱، ۳۲].



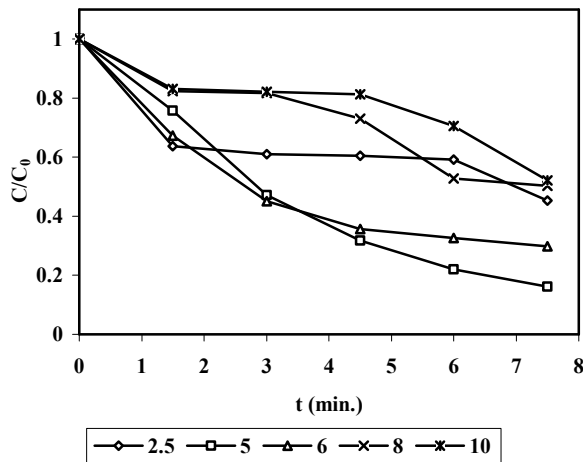
شکل ۳: تغییرات ولتاژ با چگالی جریان، (---) تغییرات آلومینیوم تولید شده در فرآیند، (—) آلومینیوم تولید شده بر اساس قانون فارادی، غلظت اولیه رنگزا، pH=۵ و NaCl = ۲ g/l.



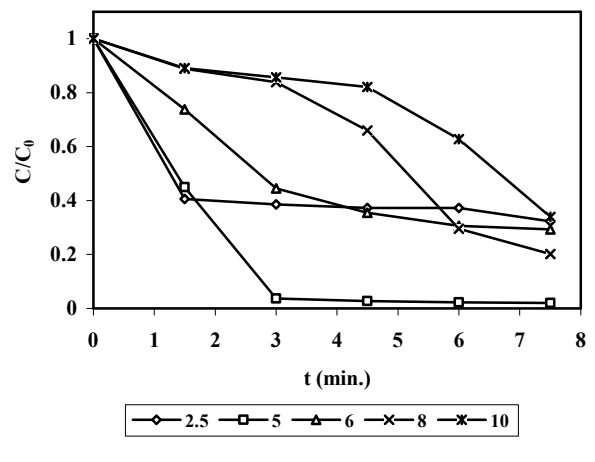
(b)



(a)

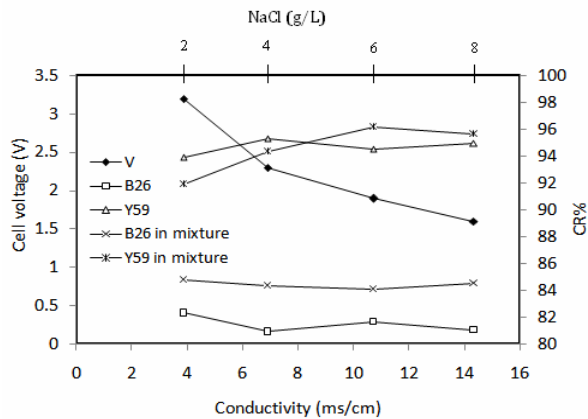


(d)



(c)

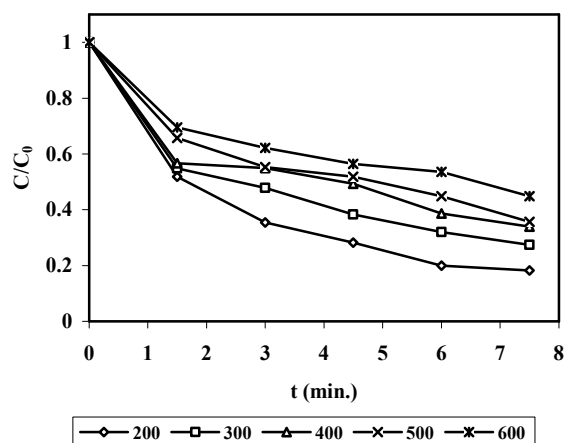
شکل ۴: تأثیر pH روی حذف رنگزا در فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی (۲۰۰ mg/l = غلظت اولیه رنگزا،  $CD=40 \text{ A/m}^2$  و  $\text{NaCl}=2 \text{ g/l}$ ). (a) AY59 در سیستم یک جزئی، (b) AB26 در سیستم یک جزئی، (c) AY59 در سیستم دو جزئی، (d) AB26 در سیستم دو جزئی.



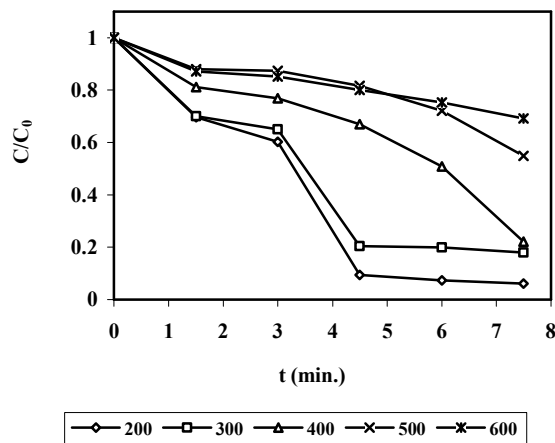
شکل ۵: تأثیر غلظت الکتروولت روی هدایت الکتریکی، ولتاژ سل و بازده رنگبری در فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی ( $\text{pH}=5$ ،  $CD=40 \text{ A/m}^2$  و  $200 \text{ mg/l}$  = غلظت اولیه رنگزا).

انتظار می‌رود که در حضور نمک، بازده رنگبری با افزایش فلز منعقدکننده در محلول به دلیل کاهش لایه پوشاننده در سطح الکترودها افزایش یابد چون این لایه پوشاننده پتانسیل بین الکترودها را افزایش می‌دهد و به میزان قابل توجهی بازده جریان را کاهش می‌دهد [۲۴، ۳۳].

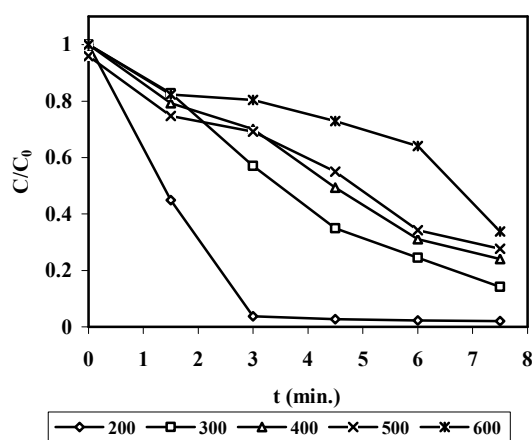
افزایش غلظت الکتروولت سبب افزایش هدایت الکتریکی محلول و در نتیجه کاهش مصرف انرژی می‌شود. شکل ۵ تأثیر غلظت الکتروولت را بر هدایت الکتریکی محلول و ولتاژ سل نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که با افزایش غلظت الکتروولت، ولتاژ سل کاهش و هدایت الکتریکی محلول افزایش می‌یابد.



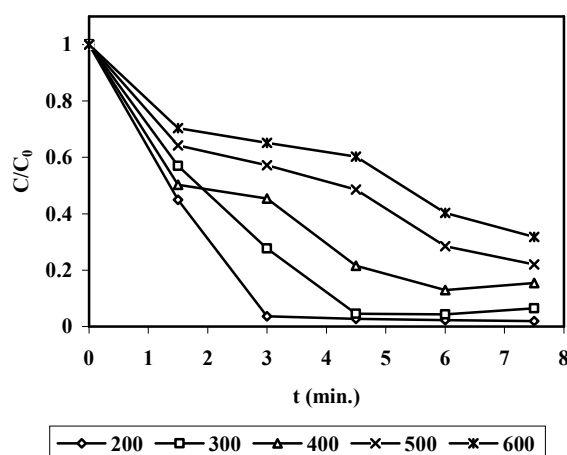
(b)



(a)



(d)



(c)

شکل ۶: تأثیر غلظت اولیه رنگزا روی حذف رنگزا در فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی (NaCl = ۲ g/l و CD = ۴۰ A/m<sup>2</sup>، pH = ۵). (a) AY59 در سیستم یک جزئی، (b) AB26 در سیستم یک جزئی، (c) AY59 در سیستم دو جزئی، (d) AB26 در سیستم دو جزئی.

جریان ثابت مقدار مشخصی  $Al^{3+}$  در تمام غلظت‌های رنگزا وارد محلول می‌شود. در نتیجه توده‌های تشکیل شده در غلظت‌های بالا برای جذب مولکول‌های رنگ در محلول ناکافی هستند. به عبارت دیگر، با افزایش غلظت رنگزا، میزان رنگبری به مقدار قابل ملاحظه‌ای کاهش می‌یابد [۷، ۱۴].

#### ۴- نتیجه‌گیری

در این تحقیق، رنگبری دو رنگزای متال کمپلکس زرد (Acid Yellow 59) و اسیدی مشکی (Acid Black 26) و مخلوط آنها با استفاده از روش انعقاد الکتروشیمیایی با الکتروالومینیومی در سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی مورد بررسی قرار گرفت. پساب‌های واقعی اغلب حاوی بیش از یک جزء هستند و مطالعه رنگبری پساب‌های حاوی

#### ۳-۵- تأثیر غلظت اولیه رنگزا

شکل ۶ (a، b، c، d) اثر غلظت اولیه رنگزا بر فرآیند رنگبری را با تغییر غلظت از ۲۰۰ تا ۶۰۰ mg/l نشان می‌دهد. بعد از ۷٫۵ دقیقه رنگبری، به ترتیب بازده رنگبری ۸۲٪، ۷۲٪، ۶۶٪، ۶۴٪ و ۵۵٪ برای AB26 و ۹۴٪، ۸۲٪، ۷۸٪، ۴۵٪ و ۳۱٪ برای AY59 در غلظت‌های اولیه ۲۰۰، ۳۰۰، ۴۰۰، ۵۰۰ و ۶۰۰ mg/l به دست آمده است. همچنین در محلول‌های دو جزئی به ترتیب بازده رنگبری ۸۴٪، ۸۲٪، ۷۶٪، ۷۲٪ و ۶۶٪ برای AB26 و ۹۰٪، ۸۸٪، ۷۸٪، ۷۰٪ و ۶۶٪ برای AY59 در غلظت‌های اولیه ۲۰۰، ۳۰۰، ۴۰۰، ۵۰۰ و ۶۰۰ mg/l به دست آمده است.

مشاهده می‌شود که بازده رنگبری در سیستم‌های دو جزئی در غلظت‌های بالا تقریباً مشابه و در غلظت‌های پایین بیشتر از سیستم‌های یک جزئی است. طبق قانون فارادی در زمان و چگالی



نشان داد که با افزایش غلظت اولیه رنگزا بازده رنگبری کاهش می‌یابد و pH=5 نیز pH بهینه برای رنگبری می‌باشد. نتیجه بسیار مهم این مطالعه این است که تأثیر عوامل مختلف روی بازده و کارایی روش انعقاد الکتروشیمیایی برای سیستم‌های یک جزئی و دو جزئی تقریباً یکسان بود و مقادیر بازده رنگبری بسیار به هم نزدیک بود. بنابراین می‌توان نتیجه گرفت که فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی یک روش مؤثر با بازده رنگبری بالا برای حذف رنگزا از پساب‌های حاوی یک یا بیش از یک جزء می‌باشد.

مخلوط رنگزاهای مانند سیستم‌های دو جزئی می‌تواند برای تصفیه پساب‌های واقعی بسیار سودمند باشد. نتایج حاصل از این مطالعه به وضوح نشان می‌دهد که روش انعقاد الکتروشیمیایی می‌تواند یک روش دوستدار محیط زیست برای رنگبری پساب حاوی مخلوط رنگزاهای باشد. مشاهده شد که با افزایش چگالی جریان تا  $40 \text{ A/m}^2$  میزان بازده رنگبری برای AB26 و AY59 به ترتیب تا ۸۲٪ و ۹۴٪ افزایش می‌یابد. نتایج نشان داد که افزایش هدایت الکتریکی تأثیر چندانی در بازده رنگبری ندارد اما ولتاژ سل را کاهش می‌دهد. همچنین نتایج

## ۵- مراجع

- N. M. Mahmoodi, M. Arami. Numerical finite volume modeling of dye decolorization using immobilized titania nanophotocatalysis. *Chem. Eng. J.* 146(2009), 189-193.
- C. A. Martı'nez-Huı'tle, E. Brillas, Decontamination of wastewaters containing synthetic organic dyes by electrochemical methods: A general review. *Appl. Catal. B: Environ.* 87 (2009), 105-145.
- N. M. Mahmoodi, M. Arami. Modeling and sensitivity analysis of dyes adsorption onto natural adsorbent from colored textile wastewater. *J. Appl. Polym. Sci.* 109(2008), 4043-4048.
- A. R. Tehrani-Bagha, N. M. Mahmoodi, M. Markazi. E. Talaee, Removal of a cationic dye from wastewater by Low-cost Kaolin. *J. Color Sci. Tech.* 3(2009), 145-155.
- A. Maljaei, M. Arami, N. M. Mahmoodi, Decolorization and aromatic ring degradation of colored textile wastewater using indirect electrochemical oxidation method. *Desalination.* 249(2009), 1074-1078.
- A. Fernandes, A. Morao, M. Magrinho, A. Lopes, I. Goncalves, Electrochemical degradation of C. I. Acid Orange 7. *Dyes Pigments.* 61(2004), 287-296.
- N. Daneshvar, A. R. Khataee, A. R. Amani Ghadim, M. H. Rasoulifard, Decolorization of C.I. Acid Yellow 23 solution by electrocoagulation process: Investigation of operational parameters and evaluation of specific electrical energy consumption (SEEC). *J. Hazard Mater.* 148(2007), 566-572.
- O. T. Can, M. Bayramoglu, M. Kobya, Decolorization of reactive dye solutions by electrocoagulation using aluminum electrodes. *Ind. Eng. Chem. Res.* 42(2003), 3391-3396.
- A. Savas, Y. Kopal, C. Y. Gurel, U. B. Ogutveren, Electrochemical degradation and toxicity reduction of C.I. Basic Red 29 solution and textile wastewater by using diamond anode. *J. Hazard Mater.* 145(2007), 100-108.
- M. Kobya, M. Bayramoglu, M. Eyvaz, Techno-economical evaluation of electrocoagulation for the textile wastewater using different electrode connections. *J. Hazard Mater.* 148(2007), 311-318.
- N. Mohan, N. Balasubramanian, C. Ahmed Basha, Electrochemical oxidation of textile wastewater and its reuse. *J. Hazard Mater.* 147(2007), 644-651.
- Z. Zaroual, M. Azzi, N. Saib, E. Chainet, Contribution to the study of electrocoagulation mechanism in basic textile effluent. *J. Hazard Mater.* 131(2006), 73-78.
- O. T. Can, M. Kobya, E. Demirbas, M. Bayramoglu, Treatment of the textile wastewater by combined electrocoagulation. *Chemosphere.* 62(2006), 181-187.
- N. Daneshvar, A. Oladegaragoze, N. Djafarzadeh, Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: An investigation of the effect of operational parameters. *J. Hazard Mater.* 129(2006), 116-122.
- M. Bayramoglu, M. Kobya, O. T. Can, M. Sozbir, Operating cost analysis of electrocoagulation of textile dye wastewater. *Sep. Purif. Technol.* 37(2004), 117-125.
- M. Zaied, N. Bellakhal, Electrocoagulation treatment of black liquor from paper industry. *J. Hazard Mater.* 163(2009), 995-1000.
- K. Bensadok, S. Benammar, F. Lopicque, G. Nezzal, Electrocoagulation of cutting oil emulsions using aluminium plate electrodes. *J. Hazard Mater.* 152(2008), 423-430.
- P. Ca'nizares, F. Martı'nez, C. Jim'enez, C. S'aez, M. A. Rodrigo, Coagulation and electrocoagulation of oil-in-water emulsions. *J. Hazard Mater.* 151(2008), 44-51.
- C. Barrera-Dı'az, G. Roa-Morales, L. A. Vila-Co'rdoba, T. Pavo'n-Silva, B. Bilyeu, Electrochemical treatment applied to food-processing industrial wastewater. *Ind. Eng. Chem. Res.* 45(2006), 34-38.
- F. Zidane, P. Drogui, Br. Lekhlif, J. Bensaı'd, J. F. Blais, S. Belcadi, K. El kacemi, Decolourization of dye-containing effluent using mineral coagulants produced by electrocoagulation. *J. Hazard Mater.* 155(2008), 153-163.
- D. Ghosh, H. Solanki, M. K. Purkait, Removal of Fe(II) from tap water by electrocoagulation technique. *J. Hazard Mater.* 155(2008), 135-143.
- J. A. G. Gomes, P. Daida, M. Kesmez, M. Weir, H. Moreno, J. R. Parga, G. Irwin, H. McWhinney, T. Grady, E. Peterson, D. L. Cocke, Arsenic removal by electrocoagulation using combined Al-Fe electrode system and characterization of products. *J. Hazard Mater.* 139(2007), 220-231.
- D. Ghosh, H. Solanki, M. K. Purkait, Removal of Fe(II) from tap water by electrocoagulation technique. *J. Hazard Mater.* 155(2008), 135-143.
- G. Chen, Electrochemical technologies in wastewater treatment. *Sep. Purif. Technol.* 38(2004), 11-41.
- M. Y. A. Mollah, R. Schennach, J. R. Parga, D. L. Cocke, Electrocoagulation (EC) science and applications. *J. Hazard Mater.* 84(2001), 29-41.

26. I. Heidmann, W. Calmano, Removal of Zn(II), Cu(II), Ni(II), Ag(I) and Cr(VI) present in aqueous solutions by aluminium electrocoagulation. *J. Hazard Mater.* 152(2008), 934-941.
27. W. L. Chou, Y. H. Huang, Electrochemical removal of indium ions from aqueous solution using iron electrodes. *J. Hazard Mater.* 172(2009), 46-53.
28. J. D. J. Ingle, S. R. Crouch, Spectrochemical analysis, Prentice Hall, New Jersey (1988).
29. K. Bensadok, S. Benammara, F. Lopicque, G. Nezzal, Electrocoagulation of cutting oil emulsions using aluminium plate electrodes. *J. Hazard Mater.* 152(2008), 423-430.
30. M. Asselin, P. Drogui, H. Benmoussa, J. F. Blais, Effectiveness of electrocoagulation process in removing organic compounds from slaughterhouse wastewater using monopolar and bipolar electrolytic cells. *Chemosphere.* 72(2008), 1727-1733.
31. P. Canizares, C. Jimenez, F. Marti'nez, C. Sa'ez, M. A. Rodrigo, Study of the electrocoagulation process using aluminum and iron electrodes. *Ind. Eng. Chem. Res.* 46(2007), 6189-6195.
32. P. Canizares, M. Carmona, J. Lobato, F. Marti'nez, M. A. Rodrigo, Electrodissolution of aluminum electrodes in electrocoagulation processes. *Ind. Eng. Chem. Res.* 44(2005), 4178-4185.
33. A. K. Golder, A. N. Samanta, S. Ray, Removal of Cr<sup>3+</sup> by electrocoagulation with multiple electrodes: Bipolar and monopolar configurations. *J. Hazard Mater.* 141(2007), 653-661.