

بررسی تأثیر کیتوزان در حذف ماده آلی اسید هیومیک از نمونه های آبی در فرآیند انعقاد الکتریکی با الکتروالومینیم

عبدالمطلب صید محمدی^۱، قربان عسگری^۱، محسن اربابی^۲، محمد احمدیان^۳، اشکان عبدلی^۳،
علی پورمحمدی^{۳*}

^۱مرکز تحقیقات عوامل اجتماعی موثر بر سلامت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران؛ ^۲گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی شهرکرد، شهرکرد، ایران؛ ^۳مرکز تحقیقات توسعه اجتماعی و ارتقاء سلامت، دانشگاه علوم پزشکی کرمانشاه، کرمانشاه، ایران.

تاریخ دریافت: ۹۲/۱۲/۱۱ تاریخ پذیرش: ۹۳/۵/۲۰

چکیده:

زمینه و هدف: وجود اسید هیومیک در آب آشامیدنی می تواند به عنوان یک ترکیب پیش ساز سبب تولید ترکیبات جانبی گندزدایی گردد. این مطالعه با هدف ارزیابی تأثیر کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده کم هزینه و موثر در فرآیند انعقاد الکتریکی به همراه الکتروالومینیم، برای حذف ماده آلی اسید هیومیک از محیط های آبی انجام شده است.

روش بررسی: در این مطالعه تجربی، آزمایشات انعقاد الکتریکی با الکتروالومینیم در pH های ۱۰-۲ با و بدون حضور کیتوزان مورد مطالعه قرار گرفت. اثرات مقادیر متغیر پارامترهای دانسیته جریان، غلظت اولیه اسید هیومیک و غلظت کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده در فرآیند انعقاد الکتریکی در یک راکتور پایلوت از جنس پلکسی گلاس با جریان ناپیوسته مورد بررسی قرار گرفت. در مراحل مختلف مطالعه، غلظت اسید هیومیک با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر اندازه گیری شد.

یافته ها: دانسیته جریان برابر با ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع و pH معادل ۶ به عنوان شرایط بهینه برای حذف اسید هیومیک از محیط آبی بدون کیتوزان حاصل شد. همچنین حضور کیتوزان در غلظت ۲/۵ mg/l به عنوان کمک منعقد کننده در فرآیند انعقاد الکتریکی باعث حذف حداکثری میزان اسید هیومیک (۹۰ درصد) گردید.

نتیجه گیری: ماده کیتوزان به عنوان یک کمک منعقد کننده مناسب و موثر در فرآیند انعقاد الکتریکی در حضور الکتروالومینیم عمل می کند و می تواند سبب افزایش کارایی فرآیند های انعقادی در حذف ماده آلی اسید هیومیک گردد.

واژه های کلیدی: کیتوزان، اسید هیومیک، انعقاد الکتریکی، الکتروالومینیم.

مقدمه:

گندزدائی بر فرآیند تصفیه آب تأثیر می گذارند. مهمترین اثر حضور ترکیبات هیومیکی در آب واکنش آن با کلر به عنوان رایج ترین ماده گندزدای مورد استفاده در فرآیند تصفیه آب و امکان تشکیل محصولات جانبی گندزدائی از جمله تری هالومتان ها و هالواستیک اسید می باشد. این ترکیبات سمی، سرطانزا دارای خاصیت جهش زائی بوده و مشکلاتی نظیر سرطان مثانه، کلیه،

وجود مواد آلی طبیعی در منابع آبی مشکلات عدیده ای در فرآیند تصفیه متداول آب ایجاد نموده است (۱). ترکیبات هیومیکی از جمله مواد پلی الکترولیت آلی هستند که بیشترین قسمت کربن آلی محلول موجود در محیط های آبی را تشکیل می دهند (۲، ۳). این ترکیبات از جنبه های مختلف از جمله اثر بر عملکرد فرآیندهای اکسیداسیون، انعقاد، جذب و فرآیند

*نویسنده مسئول: کرمانشاه- دانشگاه علوم پزشکی کرمانشاه- گروه مهندسی بهداشت محیط- تلفن: ۰۳۸۳-۴۲۱۶۱۴۳

E-mail: apoormohammadi000@yahoo.com

الکتریکی در مقایسه با سایر الکترودهای فلزی راندمان بالاتری در حذف آلاینده های مختلف از خود نشان می دهد (۱۷).

در سال های اخیر استفاده از کواگولانت های طبیعی در فرآیندهای تصفیه ای و علی الخصوص در فرآیند تصفیه آب بسیار مورد توجه قرار گرفته است؛ زیرا استفاده از این ترکیبات علی رغم کاهش هزینه ها، مانع از حضور مواد شیمیایی باقی مانده در آب تصفیه شده می گردد و همچنین لجن تولیدی از فرآیند نیز فاقد ترکیبات آلوده کننده محیط می باشد (۱۴). با نظر به اینکه اکثر کلویید ها دارای بار الکتریکی منفی هستند، بیوپلیمرهای کاتیونی می توانند به عنوان یک جایگزین مناسب برای منعقد کننده های سنتتیک مورد استفاده قرار گیرند. کیتوزان یک پلی الکترولیت کاتیونی طبیعی است که به لحاظ ویژگی های خاص مانند تولید ساده به وسیله خشی سازی کیتین و فراوان ترین بیوپلیمر طبیعی بعد از سلولز امروزه به شکل گسترده ای در فرآیند های تصفیه آب به عنوان منعقد کننده یا کمک منعقد کننده مورد استفاده قرار می گیرد (۱۴، ۱۷). تاکنون مطالعات مختلفی در خصوص کارآیی فرآیند انعقاد الکتریکی در حذف آلاینده ها از محیط های آبی صورت گرفته است (۲۰-۱۷). با توجه به اینکه تاکنون مطالعه ای در زمینه حذف اسید هیومیک به وسیله فرآیند انعقاد الکتریکی در حضور یک ماده کمک منعقد کننده صورت نگرفته است، مطالعه حاضر با هدف بررسی تأثیر ماده کمک منعقد کننده کیتوزان در فرآیند انعقاد الکتریکی با الکتروود آلومینیم در حذف ماده آلی اسید هیومیک از نمونه های آبی مورد بررسی قرار گرفت.

روش بررسی:

مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی می باشد که در یک راکتور با جریان ناپیوسته به انجام رسید. پایلوت مورد نظر از جنس پلکسی گلاس حجم ۱ لیتر مجهز منبع تغذیه جریان مستقیم برق (SANJESH TEK, 8051) می باشد. تعداد ۴ الکتروود از جنس آلومینیوم و هر یک به

روده بزرگ و روده کوچک در انسان ایجاد می کنند (۴). از دیگر اثرات حضور اسید هیومیک در محیط های آبی ایجاد رنگ، خوردگی فلزات، تشکیل بیوفیلم در شبکه های انتقال و توزیع آب آشامیدنی می باشد (۵، ۶). غلظت مجاز این ترکیبات در آب آشامیدنی توسط سازمان حفاظت محیط زیست آمریکا به ترتیب در مرحله اول اجرای قوانین حدود ۶۰ و ۸۰ میکروگرم در لیتر و در مرحله دوم حدود ۳۰ و ۴۰ میکروگرم در لیتر اعلام شده است (۷). پتانسیل بالقوه ترکیبات آلی هیومیکی علی الخصوص نقش آن به عنوان پیش ساز تشکیل تری هالومتان ها لزوم حذف این ترکیبات از آب را بیش از پیش افزایش داده است (۷).

فرآیندهای انعقاد شیمیایی پیشرفته، اکسیداسیون، جذب سطحی، تبادل یون و فیلتراسیون توسط انواع غشاها از دیگر روش های متداول مورد استفاده در حذف این ترکیبات از منابع آبی هستند (۸-۱۰). در دهه اخیر کاربرد فناوری انعقاد الکتریکی در حذف آلاینده های مختلف نظیر کدورت، مواد روغنی، انواع فلزات سنگین و... از آب بررسی شده است (۱۱-۱۳). استفاده از این فناوری به دلیل عدم استفاده از مواد شیمیایی، بالا بودن عمر واحدهای مورد استفاده، پائین بودن هزینه تجهیزات و بهره برداری، تولید لجن کمتر و آبگیری ساده لجن نیازمند فضای کم برای نصب تجهیزات بوده و در مقایسه با سایر فرآیند های متداول تصفیه آب بیشتر مورد اقبال قرار گرفته است (۱۴-۱۱).

در اغلب فرآیندهای انعقاد الکتریکی به منظور ناپایدار سازی عوامل آلوده کننده آب، مواد معلق و کلوئیدی از جریان الکتریسیته و الکترودهایی عموماً از جنس آلومینیوم و آهن استفاده می شود. در فرآیند مذکور الکترودها طی فرآیند الکترولیز تجزیه شده و عوامل منعقد کننده و هیدروکسید های فلزی تولید می گردند که می توانند سبب تجمع و تشکیل لخته های ناشی از مواد معلق یا جذب عوامل آلاینده های محلول در آب شوند (۱۵، ۱۶). در مطالعات گذشته ثابت شده که استفاده از الکتروود آلومینیوم در فرآیند انعقاد

ابعاد $200 \times 20 \times 2$ میلی متر به فاصله ۲ سانتی متر از هم به صورت شناور تک قطبی (monopolar connection) در راکتور تعبیه شده بود. از یک همزن مغناطیسی برای به هم زدن محتویات داخل راکتور استفاده شد.

دستگاه منبع تغذیه جریان مستقیم برق در مقادیر متغیر مورد استفاده قرار گرفت. ترکیبات شیمیایی مورد استفاده در این مطالعه اسید هیومیک، هیدروکسید سدیم، اسید پرکلریک و کلرید پتاسیم ساخت شرکت مرک آلمان بودند. اسید هیومیک مصرفی قابل حل در آب (Sodium Salt) بود، جهت ساخت نمونه های با غلظت مشخص ابتدا محلول استوک 1000 میلی گرم بر لیتر ساخته و سپس جهت ساخت نمونه های با غلظت مشخص از محلول استوک استفاده گردید. ماده کیتوزان با خلوص ۸۵ درصد از شرکت تجاری سیگما خریداری شد. جهت تنظیم pH از اسید سولفوریک ۱ نرمال و هیدروکسید سدیم ۱ مولار استفاده شد و کنترل آن توسط pH متر مدل Sension 1 انجام شد؛ همچنین پس از انجام هر مرحله از انجام آزمایشات الکتروود ها با استفاده از اسید پرکلریک ۱ نرمال به مدت ۳۰ دقیقه شست و شو داده و سپس با آب مقطر آبکشی نموده و نهایتاً در فور با دمای 130 درجه سانتی گراد خشک گردید. نمونه برداری با استفاده از پیست کاملاً تمیز با حجم 50 میلی لیتر و از عمق 7 سانتی متری راکتور پس از گذشت 60 دقیقه انجام گرفت. به منظور بررسی تأثیر ماده کیتوزان در فرآیند انعقاد الکتریکی با الکتروود آلومینیوم در حذف ماده آلی اسید هیومیک آزمایشات در طی پنج مرحله در دمای اتاق انجام گرفته و به صورت میانگین هر آزمایش سه بار تکرار و گزارش گردید.

در مرحله تعیین pH بهینه حذف اسید هیومیک، با تنظیم pH ورودی در دامنه $10-2$ با افزودن اسید سولفوریک ۱ نرمال و هیدروکسید سدیم ۱ مولار به محلول های آبی حاوی غلظت 15 میلی گرم در لیتر اسید هیومیک و دانسیته جریان ثابت 20 میلی آمپر بر سانتی متر مربع (mA/cm^2)، بدون تأثیر کیتوزان در

زمان های ماند $50, 40, 30, 20, 10$ و 60 دقیقه مورد بررسی قرار گرفت. غلظت باقیمانده اسید هیومیک با استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر (DR 5000 ساخت کشور آمریکا) در دامنه طیف UV در طول موج 254 نانومتر اندازه گیری شد (۲۱).

پس از تعیین pH بهینه، محلول های آبی حاوی غلظت 15 میلی گرم در لیتر اسید هیومیک (pH بهینه، بدون تأثیر کیتوزان) در دانسیته جریان های مختلف با مقادیر اعمال شده $20, 15, 10, 4$ mA/cm^2 مورد بررسی قرار گرفت. در نهایت پس از طی زمان های تعیین شده غلظت اسید هیومیک نمونه ها اندازه گیری شد.

به دنبال تعیین دانسیته جریان و pH بهینه، محلول های آبی با غلظت های مختلف $20, 15, 10, 5$ و 30 میلی گرم در لیتر اسید هیومیک، بدون تأثیر کیتوزان در دانسیته جریان و pH بهینه تعیین شده، مورد بررسی قرار گرفتند. در نهایت پس از طی زمان های تعیین شده غلظت اسید هیومیک نمونه ها اندازه گیری شد.

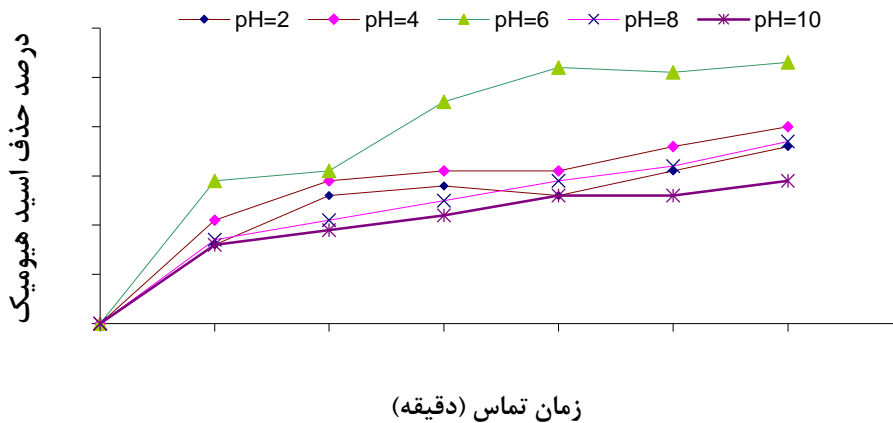
در این مرحله از انجام آزمایشات به منظور تعیین pH بهینه در حضور ماده کیتوزان به عنوان یک کمک منعقد کننده در فرآیند، نمونه هایی از محلول آبی حاوی غلظت 15 میلی گرم در لیتر اسید هیومیک و دانسیته جریان ثابت $20 \text{ mA}/\text{cm}^2$ ، در حضور ماده کیتوزان با غلظت ثابت 2 میلی گرم در لیتر در pH های $10, 8, 6, 4, 2$ مورد بررسی قرار گرفتند. پس از طی زمان های تعیین شده غلظت اسید هیومیک نمونه ها اندازه گیری شد.

در نهایت در این مرحله به دنبال تعیین pH بهینه در حضور ماده کیتوزان در فرآیند نمونه های محلول آبی حاوی غلظت 15 میلی گرم در لیتر اسید هیومیک، دانسیته جریان ثابت $20 \text{ mA}/\text{cm}^2$ و pH معادل 6 ، در حضور ماده کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده با غلظت های $5/5, 1, 2, 5/1, 2$ و 3 میلی گرم در لیتر مورد بررسی قرار گرفتند. پس از طی زمان های تعیین شده غلظت اسید هیومیک نمونه ها اندازه گیری شد.

یافته ها:

افزایش pH بالاتر از ۶، راندمان حذف این ماده کاهش یافته و در pH برابر ۱۰ به حداقل مقدار حذف معادل ۲۹ درصد، رسید. بر این اساس بیشترین مقدار حذف اسید هیومیک در pH ۶ مشاهده گردید (نمودار شماره ۱).

بر اساس نتایج، کارآیی حذف اسید هیومیک در فرآیند انعقاد الکتریکی با الکتروود آلومینیوم بدون حضور کیتوزان با افزایش pH از ۲ تا ۶ بعد از ۶۰ دقیقه از ۳۵ درصد به ۵۳ درصد افزایش یافته است؛ در عین حال با

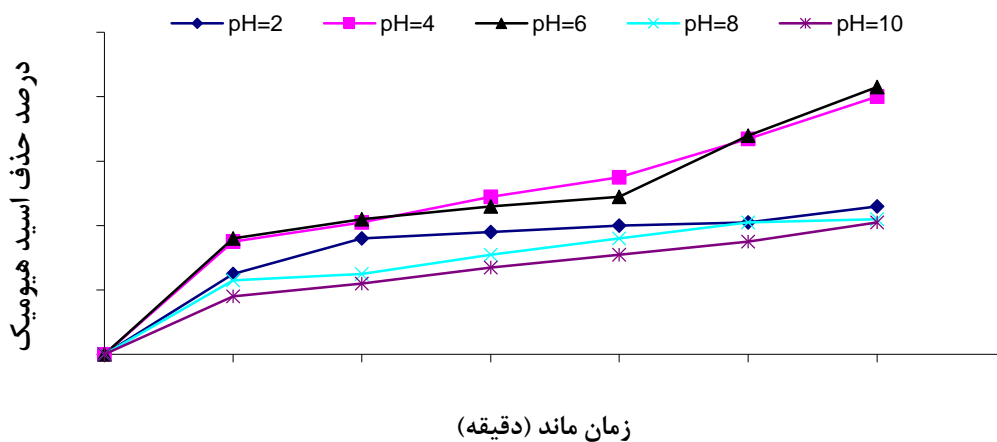


نمودار شماره ۱: تأثیر pH در حذف اسید هیومیک در فرآیند انعقاد الکتریکی

غلظت اسید هیومیک 15 mg/l ، دانسیته جریان 20 mA/cm^2 و بدون تأثیر کیتوزان.

یافته است؛ اما با افزایش pH بالاتر از ۶ راندمان حذف آلاینده کاهش یافته و در pH برابر ۱۰ به حداقل مقدار حذف اسید هیومیک معادل ۴۰ درصد رسیده است. بر این اساس بیشترین راندمان حذف ماده آلی اسید هیومیک در pH محیط برابر با ۶ بدست آمد (نمودار شماره ۲).

نتایج مشابهی در فرآیند انعقاد الکتریکی با الکتروود آلومینیوم در هنگام استفاده از ماده کیتوزان به عنوان یک ماده کمک منعقد کننده حاصل گردید. نتایج آزمایشات این مرحله بیانگر آنست که با افزایش pH از ۲ تا ۶ بعد از ۶۰ دقیقه راندمان حذف اسید هیومیک به ترتیب از ۴۶ درصد به ۸۳ درصد افزایش

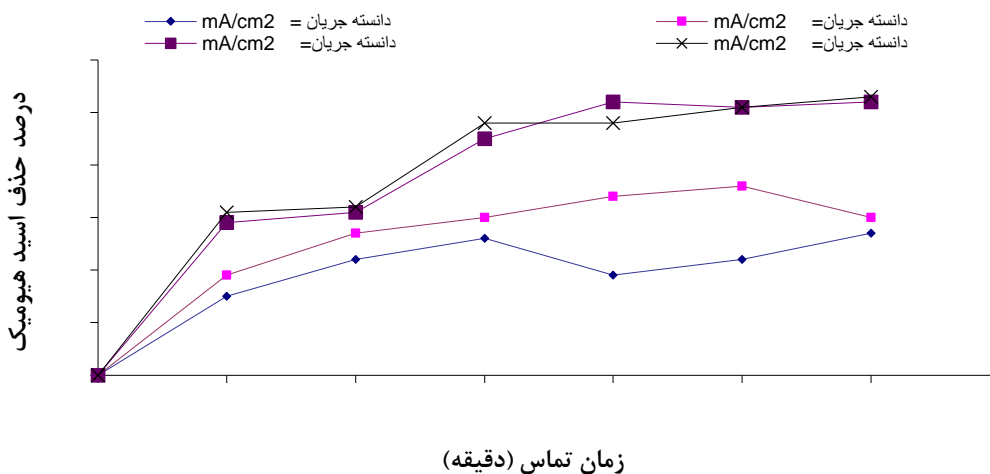


نمودار شماره ۲: تأثیر pH در حذف اسید هیومیک در فرآیند انعقاد الکتریکی

غلظت اسید هیومیک 15 mg/l ، دانسیته جریان 20 mA/cm^2 و در حضور کیتوزان با غلظت 2 mg/l .

راندمان حذف اسید هیومیک از ۲۷ به ۵۳ درصد افزایش یافت و در زمان ماند ۳۰ دقیقه راندمان حذف اسید هیومیک در در دانسیته های جریان ۱۵ و 20 mA/cm^2 به ترتیب ۴۵ و ۴۸ درصد است. بطور کلی با افزایش شدت جریان راندمان حذف اسید هیومیک افزایش یافته ضمن آنکه زمان ماند کمتری مورد نیاز است (نمودار شماره ۳).

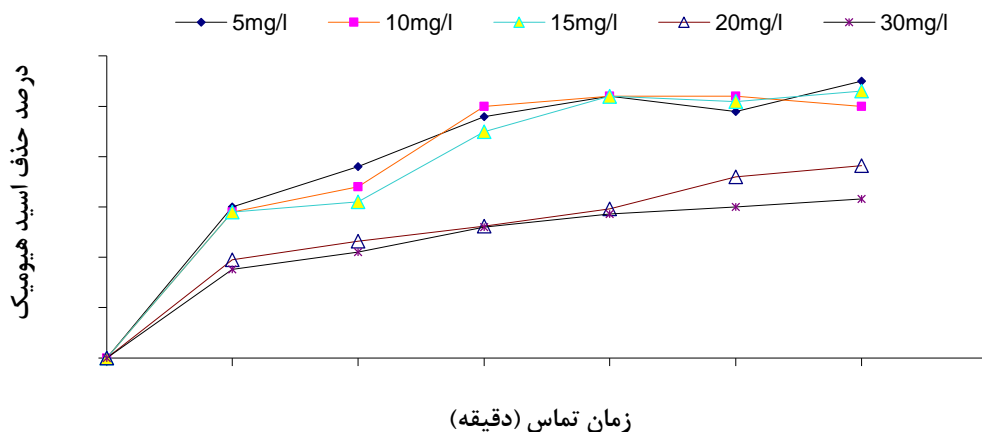
از دیگر فاکتورهایی که در مطالعه حاضر بررسی گردید، تأثیر تغییرات دانسیته جریان و تعیین مقادیر بهینه دانسیته جریان در فرآیند الکتروکواگولاسیون در pH بهینه، غلظت ثابت اسید هیومیک ۱۵ میلی گرم در لیتر و بدون تأثیر کیتوزان بود. مطابق با این نتایج، با افزایش دانسیته جریان از ۴ تا 20 mA/cm^2 (در زمان واکنش ۶۰ دقیقه)



نمودار شماره ۳: تأثیر دانسیته جریان در حذف اسید هیومیک در فرآیند انعقاد الکتریکی، pH بهینه و غلظت اسید هیومیک 15 mg/l .

غلظت اولیه ماده آلی اسید هیومیک راندمان حذف کاهش یافته است، بطوریکه در غلظت های ورودی ۵ تا ۳۰ میلی گرم بر لیتر (زمان واکنش ۶۰ دقیقه) راندمان حذف از ۵۳ به $31/6$ درصد کاهش یافته است (نمودار شماره ۴).

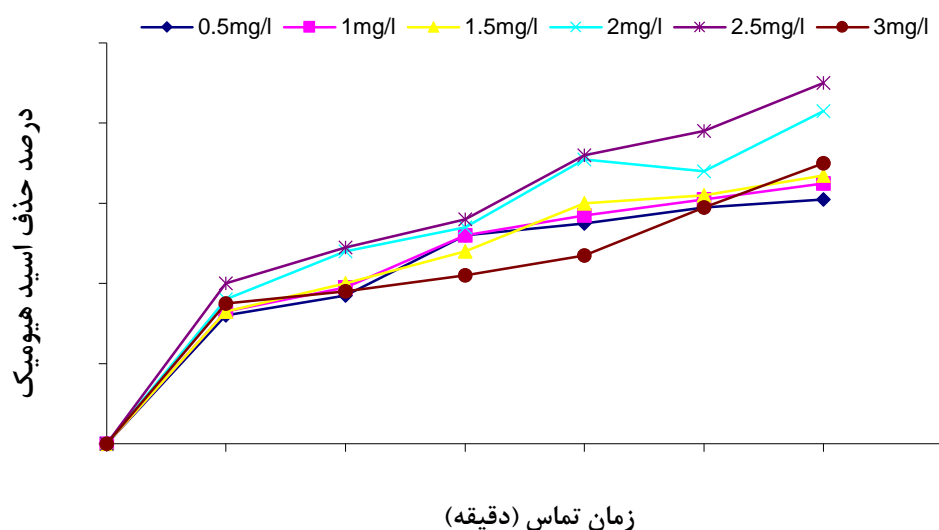
در مطالعه حاضر تأثیر غلظت های متفاوت اسید هیومیک به عنوان پارامتر کیفی در کارایی فرآیند الکتروشیمیایی با استفاده از الکتروکواگولاسیون در دانسیته جریان و pH بهینه بدون تأثیر کیتوزان، نیز مورد بررسی قرار گرفت. یافته ها نشان می دهد که با افزایش



نمودار شماره ۴: تأثیر غلظت اولیه اسید هیومیک در فرآیند انعقاد الکتریکی، pH بهینه و دانسیته جریان بهینه.

و ۳ میلی گرم در لیتر از کیتوزان به ترتیب راندمان حذف اسید هیومیک ۶۱ و ۷۰ درصد و در غلظت ۲/۵ میلی گرم در لیتر از این ماده حداکثر میزان حذف اسید هیومیک معادل ۹۰ درصد حاصل گردیده است (نمودار شماره ۵).

نتایج مربوط به انجام آزمایشات غلظت های مختلف از کیتوزان به عنوان کمک منعقد کننده در فرآیند انعقاد الکتریکی با شرایط بهینه (pH معادل ۶، دانسیته جریان 20 mA/cm^2 و زمان ماند ۶۰ دقیقه) تعیین شده؛ همانطور که مشاهده می شود در غلظت های ۰/۵



نمودار شماره ۵: تأثیر غلظت کیتوزان بر کارایی حذف اسید هیومیک در فرآیند انعقاد الکتریکی، غلظت اسید هیومیک ۱۵ mg/l، دانسیته جریان بهینه و pH بهینه.

بحث:

انعقاد الکتریکی در هنگام استفاده از الکتروکود آلومینیوم نقش موثری دارد. نتایج بدست آمده در این مطالعه بیانگر آن است که بیشترین راندمان حذف ماده آلی اسید هیومیک با و بدون حضور کیتوزان در pH محیط برابر با ۶ حاصل گردید که با نتایج مطالعات Matilainena و همکاران (۲۴) Savas و همکاران (۱۸) و مطالعه Feng و همکارانش (۲۵) در خصوص حذف اسید هیومیک در محیط های آبی در فرآیند الکتروکودگولاسیون مطابقت دارد. در عین حال در pH های پایین تر یا بالاتر از ۶، راندمان حذف این ماده کاهش یافته و در pH برابر ۱۰ به حداقل مقدار حذف رسید. این موضوع را می توان بدین صورت تفسیر نمود که در فرآیند های انعقاد شیمیایی تغییرات pH محیط از

همگام با سایر فرآیندهای شیمیایی دیگر، pH محلول های آبی یکی از فاکتورهای بسیار کلیدی و موثر در فرآیندهای انعقاد شیمیایی است (۲۲، ۲۳). در بسیاری از مطالعات به تأثیر pH بر کارایی حذف آلاینده ها در فرآیند انعقاد شیمیایی اشاره شده است و نتایج پژوهش های انجام گرفته در این زمینه نشان داده است که تأثیر pH اولیه محیط بسته به نوع فرآیند مورد استفاده و نوع آلاینده بسیار متفاوت است (۲۳). در مطالعه حاضر نیز فرآیند الکتروکودگولاسیون با الکتروکود آلومینیوم با و بدون حضور کیتوزان به عنوان ماده کمک منعقد کننده در pH های متغیر مورد بررسی قرار گرفت. نتایج این مرحله از انجام آزمایشات حاکی از آنست که تغییرات pH محیط در حذف اسید هیومیک در فرآیند

طریق تأثیر بر تشکیل انواع هیدروکسیدهای فلزی بر کارایی فرآیند تأثیرگذار است. بررسی نتایج مطالعات مختلف در این خصوص نشان داده است که در فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی و در pH محلول های آبی در محدوده ۲-۴ گونه های فلزی غالب $Al(OH)^{+2}$ و Al^{+3} هستند و در pH بالاتر از ۱۰ انواع $Al(OH)^{-4}$ (۲۱) جایگزین هیدروکسید آلومینیوم می شوند که قابلیت تشکیل فلاک آن ها از $Al(OH)^{+3}$ کمتر است (۲۶)؛ همچنین نتایج مطالعات اخیر نشان داده است که با افزایش pH محیط به بیش از ۱۰ یون های OH^- تولید شده در خلال واکنش به الکتروود کاتد حمله کرده و طی واکنشی در حضور آب تشکیل یون های $Al(OH)^{-4}$ می دهند که جایگزین عامل اصلی انعقاد یعنی $Al(OH)^{+3}$ شده است (۱۹). ضمن آنکه در pH محیط بین ۴ تا ۹ یون های Al^{+3} و OH^- وارد واکنش شده و گونه های فلزی واسطه ای تولید می شوند که در نهایت به تولید هیدروکسید فلزی آلومینیوم کمک می کنند (۲۷).

در فرآیندهای انعقاد شیمیایی یکی دیگر از فاکتورهایی که می تواند نقش قابل توجهی در حذف آلاینده ها داشته باشد تأثیر تغییرات دانسیته جریان است (۱۱، ۱۲). این فاکتور از طریق تأثیر بر میزان یون های فلزی که از سطح الکتروود کنده می شوند بر سرعت انجام واکنش های الکتروکاتالیز شده تأثیرگذار است (۱۲)؛ لذا مقادیر بهینه دانسیته جریان در هر فرآیند الکتروشیمیایی می بایست تعیین گردد. از این رو در این پژوهش پس از تعیین pH بهینه، کارایی فرآیندهای الکتروکاتالیز شده در غلظت ثابت اسید هیومیک ۱۵ میلی گرم بر لیتر و بدون تأثیر کیتوزان مورد بررسی قرار گرفت. یافته های حاضر نشان داد که به طور کلی با افزایش شدت جریان سرعت واکنش و به تبع راندمان حذف آلاینده افزایش یافته ضمن آنکه زمان ماند کمتری مورد نیاز بوده است. این نتایج سازگار با نتایج مطالعات قبلی است که در آن ها با افزایش دانسته جریان میزان حذف آلاینده های مختلف در آب ماند

آرسنیک، اسید هیومیک و سختی افزایش نشان می دهد (۲۸-۱۸). دلیل افزایش راندمان حذف ماده آلی اسید هیومیک با افزایش دانسته جریان را می توان تحت تأثیر واکنش هایی که در آند و کاتد اتفاق می افتد توجیه کرد. یون های هیدروکسید تولید شده در کاتد با یون های آلومینیم تولید شده در آند، لخته های هیدروکسید آلومینیم تشکیل می دهند که این لخته های تولید شده می توانند از طریق مکانیسم های جذب سطحی، جذب الکترواستاتیک و انعقاد جارویی ضمن ترسیب لخته ها ماده آلی اسید هیومیک را به دام انداخته و لذا سبب حذف آن ها به طریق رسوبدهی می شود (۲۹). لخته های سبک نیز از طریق اتصال به گاز هیدروژن تولیدی در کاتد به سطح آب آمده و حذف می گردد. راندمان حذف ماده آلی اسید هیومیک به مقدار آلومینیم تولید شده در محلول بستگی دارد و با توجه به این که مقدار آلومینیوم تولید شده به دانسیته جریان بستگی دارد، با افزایش دانسیته جریان مقدار ماده منقدکننده افزایش یافته و سبب حذف بیشتر اسید هیومیک می شود (۳۰).

البته افزایش دانسیته جریان محدودیت هایی نیز دارد به عنوان مثال با بالا رفتن دانسیته جریان جریان مصرف الکتروود افزایش یافته، انرژی الکتریکی بیشتری مصرف شده و تولید لجن بیشتر می شود. از طرفی در دانسیته جریان کم مقدار یون های آلومینیوم جدا شده از الکتروود آلومینیوم کمتر بوده و به همان نسبت کارایی فرآیند در حذف اسید هیومیک کاهش می یابد (۲۷).

از دیگر پارامترهای کیفی که بر کارایی فرآیند حذف اسید هیومیک در فرآیند انعقاد شیمیایی می تواند موثر باشد غلظت اولیه اسید هیومیک در آب ورودی به راکتور است. نتایج تحقیق حاضر نشان داد که با افزایش غلظت اولیه ماده آلی اسید هیومیک راندمان حذف آلاینده در فرآیند الکتروکاتالیز شده با استفاده از الکتروود آلومینیوم در دانسیته جریان و pH بهینه بدون تأثیر کیتوزان، کاهش می یابد. نتایج مطالعات قبلی مطابق با یافته های مطالعه حاضر بوده اند و نشان داده اند که در فرآیند های الکتروشیمیایی در شرایط ثابت از نظر

به اینکه pH بهینه ۶ در این مرحله از آزمایشات مورد استفاده قرار گرفت؛ لذا این امر می تواند سبب ناپایداری کلوییدها شده و تولید لخته های بزرگتر را بهبود ببخشد که متعاقباً سرعت ته نشینی افزایش می یابد (۱۷)؛ بنابراین این زنجیره های طویل پلیمری (گروه هایی آمینی ماده کیتوزان) با ایجاد بار مثبت در pH آب های طبیعی به نحو موثری به لخته سازی مواد آلی علی الخصوص اسید هیومیک کمک نموده و به وسیله فرایندهای جذب سطحی و پل زنی بین ذرات سبب حذف این ترکیبات می شوند (۱۴، ۱۷).

نتیجه گیری:

در مطالعه حاضر کیتوزان به عنوان کمک منعقدکننده طبیعی در فرآیند انعقاد الکتریکی به همراه الکتروالومینیم، برای حذف ماده آلی اسید هیومیک محیط های آبی مورد ارزیابی قرار گرفت. حضور کیتوزان در غلظت ۲/۵ میلی گرم بر لیتر به عنوان کمک منعقدکننده در فرآیند انعقاد الکتریکی بطور چشمگیری باعث افزایش راندمان و حداکثر میزان حذف اسید هیومیک معادل ۹۰ درصد گردید؛ بنابراین ماده کیتوزان به عنوان یک کمک منعقدکننده موثر در فرآیند انعقاد الکتریکی با الکتروالومینیم عمل می کند و همچنین می تواند سبب افزایش کارایی فرآیند های انعقادی در حذف ماده آلی اسید هیومیک گردد. اگرچه به مطالعات بیشتری جهت بررسی تأثیر این ماده در سایر فرایندهای انعقادی و در مقیاس های بزرگتر می باشد.

تشکر و قدر دانی:

بدین وسیله از دانشگاه علوم پزشکی همدان به لحاظ تأمین منابع مالی این پروژه و مسئول آزمایشگاه شیمی دانشکده بهداشت به لحاظ همکاری در تأمین دستگاه های مورد نیاز تشکر و قدردانی می گردد.

شدت جریان و زمان تماس، زمانی که غلظت اولیه ماده آلاینده آلی افزایش می یابد راندمان حذف کاهش نشان می دهد (۲۱-۱۸) و این موضوع بدین صورت قابل تفسیر است که در فرآیند انعقاد شیمیایی مقادیر مشخصی ترکیبات هیدروکسید آلومینیم تولید می گردد که این ترکیب تنها مقدار معینی از ترکیبات آلی را حذف می نماید؛ لذا قادر به حذف مقادیر بیش از حد از آلاینده مورد نظر نیست و متعاقباً باعث کاهش راندمان فرآیند می گردد (۲۹). همچنین این بخش از یافته های مطالعه با نتایج مطالعات سمرقندی در خصوص حذف سیانید با استفاده از فرآیند الکتروکواگولاسیون با کمک منعقدکننده نانوذرات آهن مطابقت دارد (۳۱). همانطور که قبلاً ذکر شد کیتوزان یک پلی الکترولیت کاتیونی طبیعی و غیر سمی است که می تواند به عنوان یک جایگزین مناسب برای منعقدکننده های سنتتیک یا کمک منعقدکننده در فرآیند های تصفیه آب مورد استفاده قرار گیرد. بررسی غلظت های مختلف کیتوزان به عنوان کمک منعقدکننده در فرآیند انعقاد الکتریکی و شرایط بهینه تعیین شده نشان داد که غلظت ۲/۵ میلی گرم در لیتر از این ماده حداکثر میزان حذف اسید هیومیک را در پی دارد و این موضوع ممکن است در ارتباط با ویژگی های ساختاری کیتوزان باشد؛ زیرا این پلیمر دارای گروه های آمینی فراوان و ساختار مارپیچی است و در pH های طبیعی می تواند لخته های بزرگ تر و چگال تولید نماید. از سوی دیگر در محلول های اسیدی به دلیل منبسط و طویل شدن ساختار زنجیره ای پلیمر کیتوزان، لخته های کوچک و سبک تری تولید می گردد؛ همچنین اسید هیومیک در pH های بالاتر از ۱/۶ دارای بار الکتریکی منفی بوده و تنها در pH های کمتر از ۱/۶ دارای بار الکتریکی مثبت است (۳۲). از سوی دیگر گروه های آمینی موجود در کیتوزان سبب ایجاد بار کاتیونی در pH های طبیعی می شود. با توجه

منابع:

1. Simpson DR. Biofilm processes in biologically active carbon water purification. *Water Res.* 2008; 42(12): 2839-48.
2. Shakeri K, Sadeghi M, Fadaei AM, Drees F, Riahi A, Najafi-Chaleshtori A. Survey of microbial quality of drinking water in the public vehicles and education effect of drivers on the water quality improvement. *J Shahrekord Univ Med Sci.* 2014; 16(2): 113-20.
3. 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; 137(2): 225–30.
4. Morran JY, Bursill DB, Drikas M, Nguyen H. A new technique for the removal of natural organic matter. *Proceedings of AWWA Watertec Convention, Sidney;* 1996.
5. Fan SC, Wang YC, Li CL, Lee KR, Laiw DJ, Huang HP, et al. Effect of coagulation media on memborn formation and vapor permeation performance of novel aromatic polyimide membrane. *J Memb Sci.* 2002; 204(1-2): 67-9.
6. Huang WJ, Chen LY, Peng HS. Effect of NOM characteristic on brominated organics formation by ozonation. *Environ Int.* 2004; 29(8): 1049-55.
7. Zhang X, Minear RA. Formation, adsorption and separation of high molecular weight disinfection byproducts resulting from chlorination of aquatic humic substances. *Water Res.* 2006; 40(2): 221-30.
8. Fearing DA, Banks J, Guyetand S, Monfort Eroles C, Jefferson B, Wilson D, et al. Combination of Ferric and MIEX for the treatment of a humic rich water. *Water Res.* 2004; 38(10): 2551-8.
9. Moussavi SP, Emamjomeh MM. Study of adsorption isotherms and adsorption kinetics of reactive blue 19 dye from aqueous solutions by multi -wall carbon nanotubes. *J Shahrekord Univ Med Sci.* 2014; 16(1): 72-80.
10. Babi K, Koumenides K, Nikolaou A, Makri C, Tzoumerkas F, Lekkas T. Pilot study of the removal of THMs, HAAs and DOC from drinking water by GAC adsorption. *Desalination.* 2007; 210(3): 215–24.
11. Gomes JA, Daida P, Kesmez M, Weir M, Moreno H, Parga JR, et al. Arsenic removal by electrocoagulation using combined Al-Fe electrode system and characterization of products. *J Hazard Mater.* 2007; 139(2): 220-31.
12. Hu CY, Lo SL, Kuan WH. Effects of co-existing anions on fluoride removal in electrocoagulation (EC) process using aluminum electrodes. *Water Res.* 2003; 37(18): 4513-23.
13. Carmona M, Khemis M, Leclerc J-P, Lapique F. A simple model to predict the removal of oil suspensions from water using the electrocoagulation technique. *Chem Eng Sci.* 2006; 61(4): 1237-46.
14. Divakaran R, Pillai VN. Flocculation of river silt using chitosan. *Water Res.* 2002; 36(9): 2414-8.
15. Beagles A. Electrocoagulation (EC) – Science and applications. California: ECO Services International; (2004 ted 2002 Jul 9). Available from: <http://www.eco-web.com/edi/050526.html>.
16. Daneshvar N, Sorkhabi HA, Kasiri MB. Decolorization of dye solution containing Acid Red 14 by electrocoagulation with a comparative investigation of different electrode connections. *J Hazard Mater.* 2004; 112(1-2): 55-62.
17. Bina B, Mehdinejad M, Nikaeen M, Attar HM. Effectiveness of Chitosan as natural coagulant aid in treating turbid water. *J Environ Health Eng.* 2009; 6(4): 247-52.
18. Savas A, Yalcin K, Yildiz S, Keskinler B, Demircioglu N. Effect of initial pH on the removal of humic substances from wastewater by electrocoagulation. *Sep Purif Technol.* 2008; 59(2): 175-82.
19. Lee PC, Gau SH, Song CC. Particle removal of high-turbidity reservoir water by electro-aggregation. *Environ Eng Manag J.* 2007; 17(5): 371-75.
20. Bazrafshan E, Joneidi Jaafari A, Mostafapour F, Biglari H. Humic acid removal from aqueous environments by electrocoagulation process duad with adding hydrogen peroxide. *Iran J Health Environ.* 2011; 5(2): 211-24.

21. American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation. Standard method for the examination of water and wastewater. 20th ed. Washington DC: APHA Pub; 1998.
22. 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; 169(1-3): 70-6.
23. Kaliniichuk, EM, Vasilenko II, Shchepanyuk VY, Sukhoverkhova NA, Makarov IS. Treating refinery wastewaters to remove emulsified oils by electrocoagulation and electroflotation. *Int Chem Eng.* 1976; 16(3): 434-35.
24. Matilainen A, Vepsalainen M, Sillanpaa M. Natural organic matter removal by coagulation during drinking water treatment: a review. *Adv Colloid Interface Sci.* 2010; 159(2): 189-97.
25. Feng Qy, Xiang dL, Yu Jie Ch, Meng L, Meng Q. Removal of humic acid from groundwater by electrocoagulation. *J China Univ Min Technol.* 2007; 17(4): 513-20.
26. Bayramgol M, Kobya M, Taner Can O, Sozbir M. Operating cost analysis of Electrocoagulation of textile dye wastewater. *Sep Purif Technol.* 2003; 37(2), 117-125.
27. Malakootian M, Mansoorian HJ, Moosazadeh M. Performance evaluation of electrocoagulation process using iron-rod electrodes for removing hardness. *Desalination.* 2010; 255(3), 67-71.
28. Kilic MG, Hosten C. A Comparative study of electrocoagulation and coagulation of aqueous suspensions of kaolinite powders. *J Hazard Mater.* 2010; 176: 735-40.
29. Raghu S, Ahmed Basha C. Chemical or electrochemical techniques, followed by ion exchange, for recycle of textile dye wastewater. *J Hazard Mater.* 2007; 149(2): 324-30.
30. Zaroual Z, Azzi M, Saib N, Chainet E. Contribution to the study of electrocoagulation mechanism in basic textile effluent. *J Hazard Mater.* 2006; 131(1-3): 73-8.
31. Samarghandi MR, Ahmadian M, Mehralipur J, Shabanlo A, Poormohammadi A. Studies on removal of cyanide from aqueous environments using aluminum electrodes. *Fresenius Environ Bull.* 2014; 23(2): 613-9.
32. Pan JR, Huang C, Chen S, Chung Y. Evaluation of modified chitosan biopolymer for coagulation of colloidal particles. *Colloids Surf A Physicochem Eng Asp.* 1999; 147(3): 359-64.

Investigation on effect of chitosan aid in removal of humic acid from aqueous solutions by electrocoagulation process using aluminum electrode

Seid-Mohammadi AM¹, Asgari GH¹, Arbabi M², Ahmadian M³, Abdoli A³,
Poormohammadi A^{3*}

¹Social Determinants of Health Research Center (SDHRC), Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, I.R. Iran; ²Environmental Health Engineering Dept., Shahrekord University of Medical Sciences, Shahrekord, I.R. Iran; ³Social Development & Health Promotion Research Center, Kermanshah University of Medical Sciences, Kermanshah, I.R. Iran.

Received: 2/Mar/2014 Accepted: 11/Aug/2014

Background and aims: Presence of humic acids in drinkable water resources as a precursor can lead to the formation of disinfection by products. This study aimed to evaluate the effectiveness of chitosan as an effective coagulant with low cost in the electrocoagulation process with aluminum electrode for removal of humic acid from aqueous solutions.

Methods: In this experimental study, electrocoagulation experiments with the aluminum electrode were studied in pH range of 2-10, in the presence and absence of chitosan. Moreover, the effects of pH values, current density parameters, initial humic acid concentrations, and various concentrations of chitosan as coagulant aid in the electrocoagulation process were investigated in a batch reactor. The used pilot made of plexiglass and equipped with an electricity generator device. Humic acid concentrations were determined by spectrophotometer.

Results: A current density equal to 20 mA/cm² and PH equal to 6 was obtained as the optimal conditions for the removal of humic acid from aqueous solutions in presence and absences of chitosan. The presence of chitosan in concentration of 2.5 mg/l as a coagulant aid in electrocoagulation process led to remove the maximum amount of humic acid (90%).

Conclusion: Chitosan has acted as an appropriate and effective coagulant aid in the electrocoagulation process with the aluminum electrode. Moreover, it can increase the efficiency of coagulation processes in removing humic acid natural substances.

Keywords: Chitosan, Humic acid, Electrocoagulation, Aluminum electrode.

Cite this article as: Seid-Mohammadi AM, Asgari GH, Arbabi M, Ahmadian M, Abdoli A, Poormohammadi A. Investigation on effect of chitosan aid in removal of humic acid from aqueous solutions by electrocoagulation process using aluminum electrode. J Shahrekord Univ Med Sci. 2015; 17(1): 59-69.

***Corresponding author:**

Social Development & Health Promotion Research Center, Kermanshah University of Medical Sciences, Kermanshah, I.R. Iran. Tel: 00988334216143, E-mail: apoormohammadi000@yahoo.com