

حذف کادمیوم از محلول لیچینگ با استفاده از روش الکتروکواگولاسیون

سید مرتضی موسوی‌راد و علی حسن‌زاده سبلوئی

دوره ۶، شماره ۴، زمستان ۱۳۹۹، صفحات ۴۲۹-۴۱۵

Vol. 6(4), Winter 2020, 415 – 429

DOI: 10.22034/jewe.2020.238951.1388

Removal of Cadmium from the Leaching
Solution Using Electrocoagulation

Moosavirad S. M. and Hassanzadeh Sablouei A.



www.jewe.ir

OPEN ACCESS

ارجاع به این مقاله:

موسوی‌راد س. م. و حسن‌زاده سبلوئی ع. (۱۳۹۹). حذف کادمیوم از محلول لیچینگ با استفاده از روش الکتروکواگولاسیون. محیط‌زیست و مهندسی آب، دوره ۶، شماره ۴، صفحات: ۴۱۵-۴۲۹.

Citing this paper: Moosavirad S. M. and Hassanzadeh Sablouei A. (2020). Removal of cadmium from the leaching solution using electrocoagulation. Environ. Water Eng., 6(4), 415–429. DOI: 10.22034/jewe.2020.238951.1388.

حذف کادمیوم از محلول لیچینگ با استفاده از روش الکتروکواگولاسیون

سید مرتضی موسوی راد*^۱ و علی حسن زاده سبلوئی^۲

^۱استادیار، گروه پژوهشی محیط زیست، پژوهشگاه علوم و تکنولوژی پیشرفته و علوم محیطی، دانشگاه تحصیلات تکمیلی صنعتی و فناوری پیشرفته، کرمان، ایران

^۲کارشناس ارشد، معاونت امور معادن و صنایع معدنی، سازمان صنعت، معدن و تجارت استان کرمان، کرمان، ایران

*نویسنده مسئول: s.m.moosavirad@kgut.ac.ir

مقاله اصلی

تاریخ دریافت: [۱۳۹۹/۰۴/۲۵]

تاریخ بازنگری: [۱۳۹۹/۰۶/۲۲]

تاریخ پذیرش: [۱۳۹۹/۰۶/۲۴]

چکیده

در مطالعه حاضر، فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی (الکتروکواگولاسیون) در صنایع معدنی به منظور حذف یکی از فلزات سنگین، کادمیوم، از محلول باردار لیچینگ کارخانه فرآوری مس، مورد بررسی قرار گرفت. روش سطح پاسخ (RSM) برای بهینه سازی عوامل مؤثر بر حذف این فلز، در فرآیند الکتروکواگولاسیون، استفاده شد. بدین منظور جهت بهینه سازی آزمایش ها، از طرح آزمایش باکس بنکن (BBD) استفاده شد. تأثیرات سه پارامتر مستقل مانند pH (X_1)، زمان الکترولیز (X_2)، چگالی جریان (X_3) به منظور بررسی حذف کادمیوم از محلول باردار لیچینگ بررسی شد. از مدل درجه دوم برای پاسخ راندمان حذف کادمیوم استفاده شد. مهم ترین متغیرهای مستقل و تعامل بین آنها با استفاده از آزمون ANOVA ارزیابی شد. این پژوهش نشان داد که شرایط عملیاتی بهینه حذف کادمیوم ۹۶/۹۶٪ در pH اولیه: ۶/۸۳، زمان الکترولیز: ۱۱۶ min و چگالی جریان: ۶۲ A/m² می باشد. نتایج نشان داد که قابلیت فرآیند الکتروکواگولاسیون می تواند به عنوان یک روش قابل اطمینان به منظور حذف کادمیوم از پساب های صنعتی به ویژه در کارخانه های فرآوری مواد معدنی در نظر گرفته شود.

واژه های کلیدی: انعقاد الکتروکواگولاسیون؛ حذف؛ فلزات سنگین؛ کادمیوم.

۱- مقدمه

و کلرید کادمیوم به‌عنوان مواد خطرناک شناخته‌شده است و دستورالعمل‌هایی نیز تعیین‌شده است (Kenneth et al. 2008).

منابع معدنی و ذوب از نظر تاریخی دو صنعت پیشرو در فرآیند تولید فاضلاب حاوی فلزات و نمک‌های مختلف مانند مس و کادمیوم در استان کرمان هستند. توجه به این نکته ضروری است که بسته به فرآیند به‌کار رفته و شرایط محلی، هزینه کلی تصفیه آب آلوده به فلز متفاوت است. به‌طور کلی عوامل اصلی در انتخاب روش تصفیه مناسب پساب معدنی کاربردفنی، سادگی و مقرون‌به‌صرفه بودن هستند. در طول دهه‌های گذشته از شیوه‌های بی‌شماری برای حذف فلزات سمی از فاضلاب استفاده‌شده است این روش‌ها شامل انعقاد شیمیایی (El Samrani et al. 2008)، الکتروکواگولاسیون (da Silva et al. 2016)، جذب (Zhu and Li 2015)، تبادل یونی (VÍctor-Ortega et al. 2016)، اسمز معکوس (Ozaki et al. 2002) و صاف‌سازی غشایی (Kurniawan et al. 2006) هستند. ثابت‌شده است که روش‌های فیزیکی مانند تبادل یونی، اسمز معکوس و الکترودیالیز برای از بین بردن کادمیوم آب بسیار گران یا ناکارآمد هستند. در حال حاضر از روش‌های شیمیایی به‌دلیل مضراتی مانند هزینه‌های بالای نگهداری، مشکلات کار با لجن و دفع آن و خنثی کردن پساب کم‌تر استفاده می‌شود (Hasanzadeh-Sablouei and Moosavirad 2019).

در بین این روش‌ها، الکتروکواگولاسیون (EC) به‌دلیل غلظت بالای الکترولیت‌ها در فاضلاب به‌عنوان کارآمدترین و اقتصادی‌ترین روش محسوب می‌شود. EC مزایای انعقاد شیمیایی کلاسیک را داراست و در بسیاری از مشکلات اساسی در کاربردهای عملی خود مانند تولید لجن بزرگ، هزینه بالای کار و آلودگی ثانویه برتری دارد. از مزایای استفاده از EC می‌توان به راندمان بالای حذف ذرات، مرکز تصفیه کوچک، هزینه نسبتاً کم و امکان اتوماسیون کامل (خودکاری دستگاه) اشاره کرد. این روش با کاهش تولید

به‌دلیل آلودگی آب، کمبود آب سالم در سراسر جهان وجود دارد (Yoo and Kwak 2013). فلزات سنگین به‌راحتی حذف نمی‌شوند از این‌رو آن‌ها در محیط‌زیست تجمع می‌یابند و مقدارشان در آب زیاد می‌شود. کادمیوم (Cd) عضو گروه IIB از جدول تناوبی است و دارای عدد جرمی ۱۱۲/۴۸ و عدد اتمی ۴۸ است (Banaei et al. 2016). آلودگی آب‌های زیرزمینی به‌دلیل خطرات مربوط به سلامتی در هنگام استفاده از آب آشامیدنی به یک مسئله نگران‌کننده تبدیل‌شده است (Razak et al. 2015) و خطر احتمالی برای سلامتی انسان به‌طور گسترده‌ای مورد مطالعه قرار گرفته است. کادمیوم مانند سایر فلزات سنگین با هوازگی سنگ‌ها یا از طریق معدنکاری و ذوب وارد آب‌های سطحی و زیرزمینی می‌شود (Fetter et al. 2017). میزان آلودگی کادمیوم در آب آشامیدنی با خوردگی لوله‌های آب‌رسانی گالوانیزه، مخازن آب که بستر آن‌ها از کادمیوم و روی است یا با استفاده از وسایل پوشش داده‌شده با رنگ افزایش یافته است (Salehi et al. 2017). یکی دیگر از منابع آلودگی آب آشامیدنی شیرابه زباله‌هاست چون محل دفن پسماندها از پسماندهای شهری و سایر مواد دورریز تشکیل شده است (El-Salam and Abu-Zuid 2015). منابع دیگر آلودگی آب آشامیدنی به کادمیوم استفاده از کودهای آلی و کود حیوانی است (Wu and Sun 2016).

شورای منطقه‌ای وایکاتو نیوزلند آب‌های زیرزمینی، آب‌های سطحی و رسوب دریاچه زغال نارس را کنترل کرده است و به‌دلیل آلودگی زمین‌شناسی مواد اولیه مقدار کادمیوم در رسوبات بالاتر بوده است درحالی‌که در نمونه‌های آب طبیعی بود (Taylor et al. 2017). تحلیل آب آشامیدنی از چاه‌های کم‌عمق با خاک‌های آلوده به کادمیوم خطرات زیادی برای سلامتی جانداران دارد (Muhammad et al. 2017). طبق قانون آب آشامیدنی ایمن توسط EPA حداکثر غلظت کادمیوم در آب آشامیدنی ۰/۰۵ mg/l است. مطابق قانون آب پاک که به‌وسیله USEPA (2001) تعیین‌شده است کادمیوم و ترکیبات آن مانند استات کادمیوم، برمید کادمیوم

¹Electrocoagulation

RSM برای بهینه‌سازی فرایندهای پیچیده است. معمولاً برای بهبود محیط کشت مورد استفاده قرار می‌گیرد (Caroline et al. 2007). در بسیاری از پژوهش‌های علمی پایه و اساس طراحی BBD مورد بررسی قرار گرفته است (Yin et al. 2009).

در فرآیند کارخانه فرآوری، پس از انجام فرآیند لیچینگ، محلول باردار لیچینگ (PLS) به سرند آبیگری منتقل می‌شود. بعد از جداسازی فلز مس موجود از محلول باردار لیچینگ، به منظور حذف فلزات سنگین مضر بخصوص کادمیوم، محلول حاصله وارد راکتور الکتروکاتولایسیون شده و پس از حذف کادمیوم، به سد باطله کارخانه انتقال می‌یابد؛ بنابراین، از ورود این فلز سنگین به منابع آب زیرزمینی جلوگیری می‌شود. این پژوهش با هدف تعیین حذف کادمیوم از محلول PLS با فرآیند EC و بهینه‌سازی تأثیر عوامل مؤثر بر راندمان حذف با استفاده از روش سطح پاسخ (BBD) انجام شد.

۲- مواد و روش‌ها

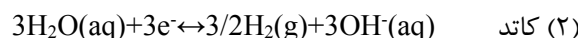
۲-۱- شرح آزمایش

نمونه‌های PLS که در این پژوهش مورد استفاده قرار گرفته است، از خروجی فرآیند لیچینگ و کارخانه تغلیظ مس جمع‌آوری شد. غلظت اولیه کادمیوم در محلول مورد مطالعه به میزان ۱۱/۵ mg/l اندازه‌گیری شد. نمونه‌ها در دمای ۴ °C نگهداری شد و بدون هیچ‌گونه رقیق‌کردنی، مورد استفاده قرار گرفت. مقادیر برخی از پارامترهای کیفی محلول PLS در جدول (۱) آمده است.

جدول ۱- خصوصیات نمونه PLS تهیه‌شده از کارخانه فرآوری
Table 1 Characteristics of PLS sample taken from processing plant

Parameter	Value
Cd (mg/l)	1.5
As (g/l)	4
pH	4.5

لجن، حداقل نیاز مواد شیمیایی و سهولت کارایی توصیف می‌شود. از EC برای تصفیه انواع فاضلاب و پساب حاوی یون‌های کادمیوم استفاده شده است (Umran et al. 2015, Hasanazadeh-Sablouei and Moosavirad 2019). مکانیسم پیشنهادی واکنش‌های شیمیایی که در فرآیند EC رخ می‌دهد با واکنش‌های اصلی ارائه شده در آند (رابطه ۱) و کاتد (رابطه ۲) در الکترودهای آلومینیوم نشان داده شده است (Ilhan et al. 2007):



یون‌های هیدروکسید تولیدشده در کاتد باعث افزایش pH در الکترولیت می‌شوند و در محلول آبی بین یون‌های Al^{3+} و OH^- واکنش داده تا آلومینیوم هیدروکسید تشکیل شود. به‌طور کلی در فرآیندهای EC از جریان مستقیم (DC) استفاده می‌شود. در این حالت ممکن است به دلیل اکسیداسیون یک لایه اکسید غیرقابل نفوذ روی کاتد و همچنین خوردگی روی آند به وجود آید. این‌ها از جریان مؤثر بین آند و کاتد جلوگیری می‌کنند. بنابراین کارایی فرآیندهای EC کاهش می‌یابد. هدف اصلی از این مطالعه بررسی تأثیر DC بر راندمان حذف کادمیوم با استفاده از آلیاژ آلومینیوم به عنوان آند و کاتد است.

روش ارزیابی واکنش سطحی RSM بر اساس طرح^۱ BBD برای ارزیابی شرایط بهینه استفاده و یک مدل درجه دوم مربوط به حذف کادمیوم به سه متغیر گسترش یافت. RSM از رویکردهای ریاضی و آماری برای ساختن مدل تجربی و ارزیابی تأثیر برخی از عوامل دسترسی به بهترین موقعیت‌ها تشکیل شده است. به وسیله طراحی دقیق آزمایش‌های هدف در نظر گرفتن بهینه‌سازی واکنش به عنوان متغیر خروجی است که به وسیله چندین متغیر مستقل به عنوان متغیرهای ورودی انجام می‌شود. به هر حال روش‌های متداولی وجود دارد که زمان و انرژی صرف می‌کنند. بنابراین، استفاده از RSM برای بهینه‌سازی شرایط آزمایش با هدف کاهش هزینه‌های روش‌های تحلیل و روش‌های زمان‌بر انجام می‌شود (Yaghmaeian 2016). طراحی BBD یک روش مؤثر

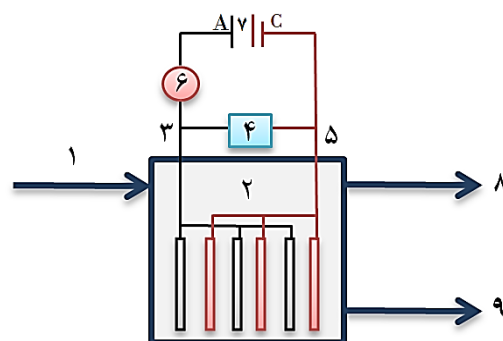
²Pregnant Leach Solution

¹Box -Behnken design

۲-۲- الکترولیز و ساخت سلول

فرآیند الکتروکواگولاسیون اساساً شامل چهار مرحله می‌باشد (Zhao et al. 2014): (۱) واکنش الکترولیتی در سطوح الکترود؛ (۲) تشکیل لخته در فاز آبی؛ (۳) جذب فلزات و آلاینده‌های محلول بر روی لخته‌ها؛ و (۴) رسوب‌گذاری یا شناورسازی توده‌ها. در مطالعه حاضر، آب مخلوط سرریز که به فرآیند EC انتقال می‌یابد به دو قسمت، لایه شناور و آب تصفیه‌شده، تقسیم شد.

در پژوهش حاضر پساب موردنظر ابتدا به داخل مخزن پمپ شد. سپس الکترودها با استفاده از جریان برق فعال شده و در نتیجه عوامل منعقد کننده در آند و گاز هیدروژن در کاتد متصاعد می‌شد. عوامل منعقد کننده به مواد آلاینده چسبیده و باعث تشکیل لخته می‌شد و سپس گاز هیدروژن در حین بالا آمدن آن‌ها را به سطح می‌آورد و پس از شناور شدن در سطح به حوض ته‌نشینی منتقل می‌شد. معمولاً مقدار جریان خروجی همراه با مواد آلاینده از سطح، ۵٪ حجم کل جریان موجود در مخزن می‌باشد. در نهایت آب تصفیه‌شده از سیستم به سد باطله، پمپ می‌شود. مدت زمان فرآیند به طبیعت مواد آلاینده و همچنین آهنگ مورد نیاز حذف مواد به آلاینده‌ها بستگی دارد، ولی به‌طور معمول این زمان تماس، ۳۰ تا ۱۲۰ min می‌باشد.



شکل ۱- شمای پایلوت واحد الکتروکواگولاسیون

- ۱- سرریز تیکنر، ۲- راکتور، ۳- ورودی آند، ۴- ولتاژ متر، ۵- ورودی کاتد، ۶- آمپر متر، ۷- منبع تغذیه، ۸- لجن ۹- آب بازیابی شده

Fig. 1 Electrocoagulation unit pilot image: 1. Tickner overflow, 2. Reactor, 3. Anode input, 4. Voltage meter, 5. Cathode input, 6. Amperemeter, 7. Power supply, 8. Sludge, 9. Recovered water

مطالعه حاضر در یک راکتور با جریان ناپیوسته در آزمایشگاه انجام گردید. پایلوت موردنظر که طرح شماتیک آن در شکل (۱) نشان داده شده است از جنس شیشه به ابعاد mm ۱۰۰×۱۰۰×۳۰۰ به حجم مؤثر L ۵ مجهز به دستگاه مولد جریان الکتریسیته بود. تعداد ۶ الکترود از جنس آلومینیوم به ابعاد mm ۲۰×۱۰۰×۲ به فاصله ۲ cm از یکدیگر و به صورت شناور در راکتور تعبیه شده بودند در هر مرحله الکترودها به مولد جریان الکتریسیته از نوع DC (مدل MEC-ME3030) متصل بود و سه الکترود نقش کاتد و سه الکترود نقش‌اند را داشتند. راکتور EC با شستشوی دو بار با آب مقطر پاک‌سازی شد. در هر آزمایش، نمونه آب بعد از آماده‌سازی منبع تغذیه و جایگذاری الکترودها، به راکتور EC اضافه شد. قبل از انجام هر آزمایش، pH نمونه‌ها به وسیله pH متر (مدل اکستیک، شرکت اکستک، آمریکا) اندازه‌گیری شد و پس از آن متغیرهای آزمایش، مورد مطالعه قرار گرفت.

۲-۳- روش‌های تحلیلی

راندمان حذف کادمیوم با استفاده از رابطه (۳) محاسبه شد (Acharya et al. 2017):

$$\% \text{Removal} = \frac{C_0 - C_1}{C_1} \times 100 \quad (3)$$

که C_0 و C_1 به ترتیب محتوای اولیه مواد و مقدار کادمیوم پس از فرآیند الکتروکواگولاسیون را نشان می‌دهند.

۲-۴- طراحی آزمایش

با توجه به اینکه در سال‌های اخیر، از روش پاسخگویی سطح (RSM) در نرم‌افزار Design Expert 10.0 برای بهینه‌سازی فرآیندهای مختلف استفاده شده است. در پژوهش حاضر نیز طراحی آزمایش‌های با استفاده از نرم‌افزار Design Expert 10.0 صورت پذیرفت و آنالیز واریانس یک‌طرفه تحت RSM به عنوان الگوی بهینه‌سازی انتخاب شد.

RSM رایج‌ترین روش مورد استفاده در پژوهش‌های صنعتی است، به‌ویژه در شرایطی که تعداد زیادی متغیر مؤثر بر ویژگی‌های سیستم هستند. همچنین می‌توان به وسیله آن رابطه بین پارامترهای ورودی قابل کنترل و متغیر پاسخ را مشخص کرد. هدف RSM تعیین شرایط بهینه کار یا منطقه

BBD در روش سطح پاسخ با سه عامل عددی در سه سطح برای بررسی اثر تعاملی متغیرهای فرآیند مانند pH (X_1)، زمان الکترولیز (X_2)، چگالی جریان (X_3) و به منظور بررسی راندمان حذف کادمیوم (Y) از محلول لیچینگ تانک با استفاده از روش الکتروکواگولاسیون، مورد بررسی قرار گرفت (جدول ۲).

تحلیل رگرسیون چندگانه مرتبه دوم برای توضیح رفتار سیستم با استفاده از روش رگرسیون حداقل مربعات برای به دست آوردن تخمین پارامتری مدل ریاضی استفاده می شود (Acharya et al. 2017). انتخاب متغیرهای مستقل که در آزمایش ها بیان می شوند، به صورت رابطه (۴) است:

$$X_i = \frac{X_i - X_0}{\Delta X_i} \quad i = 1, 2, \dots, k \quad (4)$$

که X_i به عنوان مقدار جزئی یک متغیر مستقل در نظر گرفته است؛ X_0 مقدار واقعی یک متغیر مستقل است؛ X_0 مقدار واقعی در نقطه مرکزی یک متغیر مستقل است؛ و ΔX_i تفاوت متغیر i از مقادیر واقعی است. بر این اساس، داده های حاصل از معادله بالا برای دستیابی به پیش بینی یک مدل مورد بهره برداری قرار می گیرد. مدل معادلات خطی و درجه دوم برای پیش بینی شرایط بهینه می تواند با توجه به ترتیب در رابطه های (۵) و (۶) بیان شود.

$$Y = \beta_0 + \sum_{j=1}^k \beta_j X_j \quad (5)$$

$$Y = \beta_0 + \sum_{j=1}^k \beta_j x_j + \sum_{j=1}^k \beta_{jj} x_j^2 + \sum_{i < j=2}^k \beta_{ij} x_i x_j + e \quad (6)$$

۲-۵- مطالعات مربوط به طیفسنجی مادون قرمز- تبدیل فوریه

روش طیفسنجی مادون قرمز (FTIR)، یکی از مهم ترین و متداول ترین فن های طیفسنجی جهت شناسایی و اندازه گیری مولکول های مختلف می باشد. به کمک طیفسنجی

برای عوامل در مشخصات عملیاتی خاص است. علاوه بر این، RSM یک روش مبتنی بر آماری قدرتمند برای طراحی آزمایش ها است که به افزایش دقت و کاهش تعداد آزمایش های تجربی کمک می کند (Myers et al. 2008).

BBD در RSM یک ابزار طراحی مهم است که برای بهینه سازی فرآیندها مورد استفاده قرار می گیرد. BBD نتیجه نهایی و اطلاعات مفصلی حتی برای تعداد کمتری از آزمایش ها و اثرات متقابل پارامترهای عملیاتی بر روی همه پاسخ ها ارائه می دهد. پارامترهای عملیاتی و به طور مشخص pH اولیه، زمان الکترولیز و چگالی جریان می توانند بر عملکرد فرآیند الکتروکواگولاسیون، تأثیر به سزایی داشته باشند. از این رو در این پژوهش، تأثیر این پارامترهای عملیاتی بر حذف کادمیوم و با استفاده از روش پاسخ سطح (RSM) و طرح آزمایش BBD مورد بررسی و بهینه سازی قرار گرفت.

جدول ۲- محدوده متغیرهای مستقل و سطوح آنها

Table 2 The range of independent variables and their levels

Variable (unit)	Numerical variable		
	Level		
	-1	0	1
X_2 , Ph	5	7	9
X_1 , Electrolysis time (min)	30	75	120
X_3 , Current density (A/m^2)	10	40	70

*alpha: ± 1.4142

این طرح شامل ۱۷ مجموعه آزمایش با استفاده از سیستم الکتروکواگولاسیون می باشد. در این پژوهش، طراح آزمایش

که در آنها Y به عنوان پاسخ، X_i و X_j متغیرها (i و j از ۱ تا k متغیر هستند)، β_0 عبارت ثابت، β_j ضریب خطی، β_{jj} عامل تعامل، β_{ij} فاکتور درجه دوم و k تعداد پارامترهای مستقل (در این مطالعه $K = 4$ است) می باشند.

⁴Fourier transform infrared

۳- یافته‌ها و بحث

۳-۱- آزمایش‌های حذف کادمیوم

تعداد ۱۷ آزمایش همراه با پاسخ‌ها با طراحی آزمایش BBD در جدول (۳) نشان داده شده‌اند. درصد حذف کادمیوم از ۷۲/۵۱ تا ۹۶/۸۸٪ متغیر بود.

جدول ۳- طراحی آزمایش فرآیند با استفاده از طرح BBD به همراه پاسخ‌ها

Table 3 Process using BBD with answers

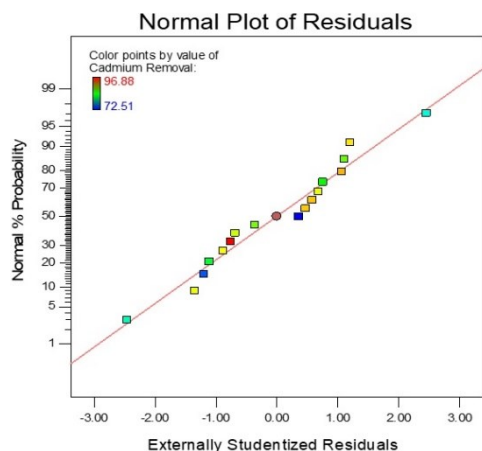
Run No.	X ₁	X ₂ (min)	X ₃ (A/m ²)	Cd removal (%)
1	40	75	7	92.14
2	40	30	9	80.22
3	10	75	9	87.31
4	70	30	7	90.37
5	70	75	9	91.32
6	70	120	7	96.88
7	40	75	7	90.41
8	40	120	5	79.41
9	40	75	7	90.76
10	10	75	5	74.62
11	40	30	5	72.51
12	10	30	7	84.91
13	40	75	7	92.04
14	10	120	7	89.67
15	70	75	5	83.43
16	40	75	7	92.55
17	40	120	9	87.65

می‌توان گروه‌های عاملی مختلف موجود در ترکیبات مولکولی را شناسایی کرده و ساختار احتمالی ترکیب را حدس زد. این روش ارزشمند، برای تعیین ساختار بیشتر برای اندازه‌گیری نمونه‌های شیمیایی به کار می‌رود شناسایی ترکیبات آلی به کار می‌رود، زیرا ترکیبات آلی معمولاً پیچیده هستند و تعداد زیادی پیک‌های حداکثر و حداقل دارند که می‌توان با مقایسه آن‌ها اطلاعات زیادی به دست آورد برای ثبت یک طیف از این دستگاه ابتدا یک طیف پس‌زمینه ثبت می‌شود که شامل جذب مولکول‌های موجود در هوا است. سپس نمونه در جایگاه مخصوص قرار گرفته و طیف دیگری ثبت می‌شود. این طیف شامل جذب هم مولکول‌های نمونه و هم مولکول‌های اتمسفر است. با تقسیم طیف نمونه به طیف پس‌زمینه تمام جذب موجود در پس‌زمینه حذف می‌شود طوری که پیک‌های جذب در طیف نهایی صرفاً مربوط به نمونه است (Ghavami-Lahiji et al. 2018). این عمل می‌تواند بر انواع مختلف طیف‌سنجی اعمال شود که یکی از شاخه‌های آن طیف‌سنجی فروسرخ (FTIR) می‌باشد (Antoine 1968). اسپکتروفتومتر FTIR مدل TENSOR II، ساخت شرکت Bruker یکی از بهترین گزینه‌ها برای QA/QC و کاربردهای R&D پیشرفته در صنعت و دانشگاه می‌باشد که در پژوهش حاضر از آن استفاده شد.

جدول ۴- آنالیز واریانس روند حذف کادمیوم برای مدل درجه در پاسخ سطح

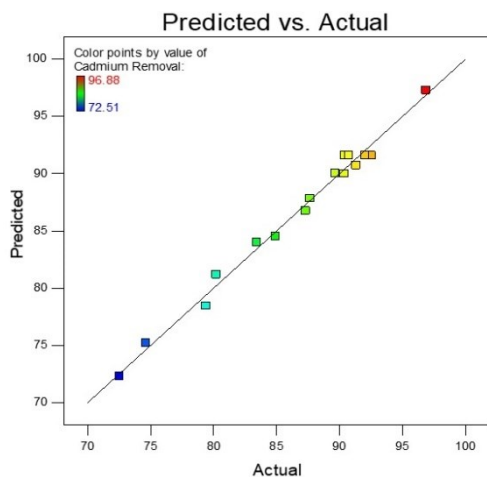
Table 4 Variation analysis of cadmium removal process for grade model in surface response

Source	Sum of Squares	df	Mean Square	F-Value	p-value Prob > F	Comment
Model	719.76	9	79.97	76.06	< 0.0001	significant
A-pH	166.81	1	166.81	158.64	< 0.0001	
B-Time	81.92	1	81.92	77.91	< 0.0001	
C-Current density	81.22	1	81.22	77.24	< 0.0001	
AB	0.070	1	0.070	0.067	0.8035	
AC	5.76	1	5.76	5.48	0.0518	
BC	0.77	1	0.77	0.73	0.4217	
A ²	338.03	1	338.03	321.48	< 0.0001	
B ²	30.07	1	30.07	28.60	0.0011	
C ²	10.12	1	10.12	9.62	0.0173	
Residual	7.36	7	6.27		R ₁ ²	0.9899
Cor Total	727.12	17			Adj. R ₁ ²	0.9769
Std. Dev.	1.03				C. V. %	1.18



شکل ۲- نمودارهای توزیع احتمال نرمال باقی‌مانده‌های داخلی راندمان حذف کادمیوم (%)

Fig. 2 Distribution diagrams of the normal probability of internal residues of cadmium removal efficiency (%)



شکل ۳- همبستگی خطی بین نرخ واقعی و پیش‌بینی‌شده در راندمان حذف کادمیوم (%)

Fig. 3 Linear correlation between actual and projected rates on cadmium removal efficiency (%)

۳-۲- تأثیر پارامترهای عملیاتی بر فرآیند حذف کادمیوم

اثر پارامترهای عملیاتی حاصل از تحلیل پاسخ سطح به‌منظور تخمین حداکثر حذف کادمیوم در هر یک از متغیرها، به‌دست آمد. اثرات هر یک از متغیرها بر روی حذف کادمیوم در زیر ذکر شده و در قالب اشکالی در ادامه ارائه شده است.

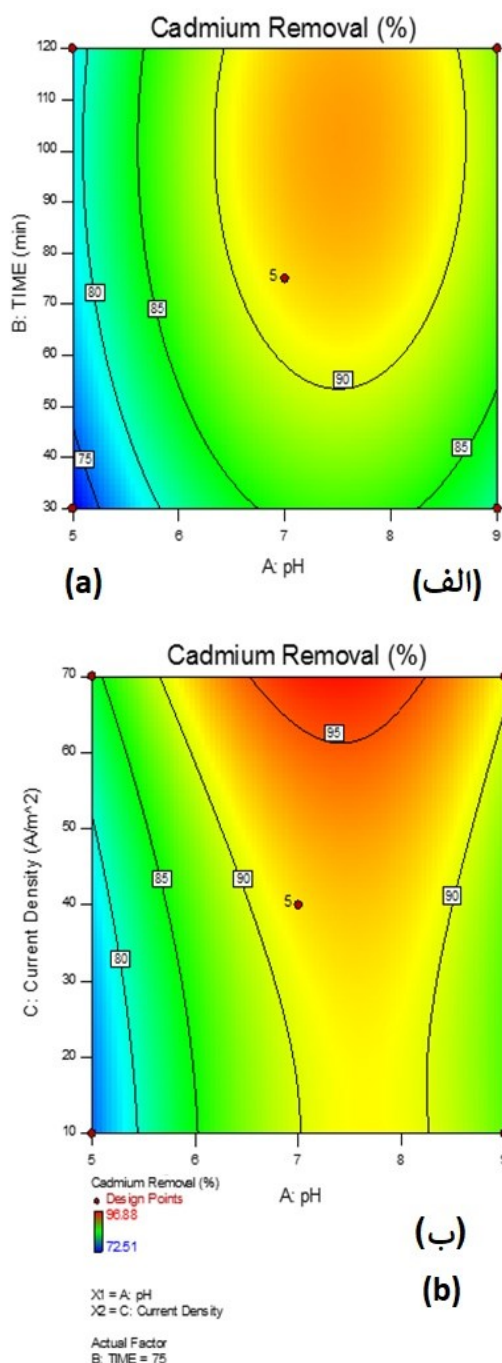
۳-۱-۱- تلفیق فرآیند EC و مدل حذف کادمیوم به‌وسطه آنالیز واریانس

نتایج آنالیز واریانس ANOVA مدل درجه دوم برای حذف کادمیوم در جدول (۴) آورده شده است. مقدار F-value برای حذف کادمیوم ۷۶/۰۶ می‌باشد، به این معنی که مدل معنی‌دار می‌باشد. فقط یک احتمال ۰/۰۱٪ وجود دارد که مقادیر F-value این مدل‌های بزرگ بر پایه شانس آورده شده باشد. مقادیر "Prob.> F" کم‌تر از ۰/۰۵ نشان می‌دهد که اصطلاحات مدل‌ها معنی‌دار هستند. با توجه به مطالعه Myers et al. (2008)، برای سازگاری مناسب یک مدل، ضریب همبستگی باید حداقل ۰/۸ باشد. در مدل راندمان حذف کادمیوم، مقدار R_1^2 ۰/۹۸۹۹ در سازگاری مناسبی با R_1^2 تنظیم‌شده، ۰/۹۷۶۹ می‌باشد که در جدول (۴) ذکر شده است. پس از این، مدل را می‌توان برای ترسیم فضای طرح استفاده کرد. ثابت‌ها و ضرایبی که با استفاده از داده‌های ذکر شده در جدول (۴) به‌صورت رابطه (۷) به‌دست می‌آید.

$$\text{Cd Removal, } Y(\%) = 91.58 + 4.56 \times A + 3.20 \times B + 3.18 \times C + 0.13 \times AB - 1.20 \times AC + 0.43 \times BC - 8.96 \times A^2 - 2.67 \times B^2 + 1.55 \times C^2 \quad (7)$$

این شاخص از این جنبه اهمیت دارد که مدل انتخاب‌شده تقریب مناسبی برای یک سیستم واقعی فراهم می‌کند. با استفاده از نمودارهای تشخیصی، از جمله توزیع نرمال در مقابل باقیمانده‌های استاندارد و مقادیر پیش‌بینی‌شده در مقابل مقادیر واقعی، اعتبار مدل را می‌توان مورد قضاوت قرارداد (Myers et al. 2008; Ke-di et al. 2013).

شکل (۲) نمودار توزیع نرمال باقی‌مانده‌های استاندارد برای استخراج اولیه تحلیل‌ها را نشان می‌دهد؛ باقی‌مانده‌ها یک توزیع نرمال را دنبال می‌کنند و نقاط به‌دنبال یک خط مستقیم می‌باشند که نشان‌دهنده این است که مدل‌ها و داده‌های تجربی معتبر و قابل‌اعتماد هستند. همان‌طور که در شکل (۳) نشان داده شده است، مقادیر واقعی پاسخ داده‌های تجربی برای یک اجرای خاص و مقادیر پاسخ پیش‌بینی‌شده توسط توابع تقریبی، هستند. مقادیر پیش‌بینی‌شده با مقادیر تجربی همخوانی خوبی دارند که نشان می‌دهد که مدل معتبر است و به‌طور مطلوبی با داده‌های آزمایشی متناسب است.



شکل ۴- تأثیرات الف- pH اولیه و زمان الکترولیز (چگالی جریان: ۴۰ A/m²) و ب) pH اولیه و چگالی جریان (زمان: ۷۵ دقیقه) بر راندمان حذف کادمیوم (/.)

Fig. 4 Effects of a) initial pH and electrolysis time (current density: 40 A/m²) and b) initial pH and current density (time: 75 minutes) on cadmium removal efficiency (/.)

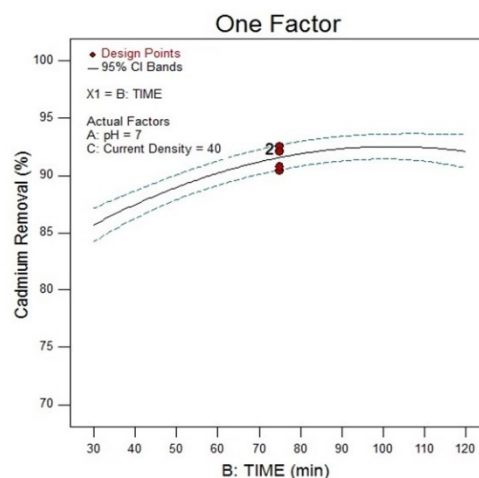
۳-۲-۱- اثر pH اولیه

همان‌طور که در بخش‌های قبل ذکر شد، اثبات گردید که pH پارامتری مهمی است که بر عملکرد فرآیند EC تأثیر می‌گذارد (Karichappan et al. 2014a). تأثیر pH در محدوده ۴ تا ۱۰ به‌منظور تعیین راندمان حذف کادمیوم مورد بررسی قرار گرفت. در شکل ۴ (الف) اثر pH اولیه و زمان الکترولیز بر حذف کادمیوم نشان داده شده است. نتایج نشان می‌دهد که راندمان حذف با افزایش pH آب به سطح قلیایی، افزایش می‌یابد. هنگامی که pH از سطح اسیدی به قلیایی افزایش یافت، آلاینده‌ها (کادمیوم) به‌طور مؤثر کاهش یافتند. در pH: ۷ حذف کادمیوم ۹۶/۸۸٪ بود. از سوی دیگر اثر pH اولیه و چگالی جریان بر روی حذف فلز کادمیوم در شکل ۴-ب) نشان داده شده است. افزایش بیش از اندازه pH باعث کاهش مداوم کادمیوم نشد، اما با افزایش چگالی جریان، حذف کادمیوم افزایش می‌یابد به‌گونه‌ای در pH: ۹ راندمان حذف کادمیوم ۸۵/۷۸٪ به دست آمد. pH بالا موجب افزایش کادمیوم در اطراف کاتد شده است.

با توجه به اینکه در کاتد، تولید H₂ و OH⁻ یک افزایش پیوسته pH را برای همه آزمایش‌های در پی دارد. این امر با کاهش روند صعودی میزان آلاینده‌ها پس از رسیدن به pH خنثی، مشابه بود. این موضوع ممکن است به این دلیل باشد که در pH های خنثی، به دلیل اینکه مقدار زیاده‌تری از OH⁻ موجود در محلول می‌باشد که OH⁻ کمتری تولید می‌کند. از طرفی دیگر pH بالا تمایل به رفتن به سمت چپ و در pH پایین تمایل به عمل بیش‌تری در سمت راست دارد. این پدیده باعث افزایش بیش‌تر pH در هنگام پایین بودن آن می‌شود (Koby et al. 2014; Malakootian et al. 2014). از طرفی دیگر، وقتی pH از سطح پایین به سطح بالا افزایش یافت که به‌وضوح نشان داد که جریان با حذف فرآیند EC نقش غالب نسبت به pH در حذف کادمیوم دارد. هنگامی که دو عامل چگالی جریان و زمان از سطح پایین به سطح بالا منتقل شدند افزایش قابل توجهی در حذف کادمیوم مشاهده شد. این نتایج با مطالعات پیشین مطابقت مناسبی داشت (Vasudevan et al. 2010).

۳-۲-۲- اثر زمان الکترولیز

زمان الکترولیز یکی دیگر از پارامترهای مهمی است که باید در روند EC موردتوجه قرار گیرد (Hasanzadeh and Moosavirad 2019). محدوده زمانی ۳۰ تا ۱۲۰ min برای درک چگونگی تأثیر زمان بر راندمان حذف بررسی شد. پارامترهای دیگر مانند pH و چگالی جریان به ترتیب در ۷ و ۴۰ ثابت نگه داشته شدند. همان طور که در شکل (۵) نشان داده شده است یک روند افزایشی از حذف کادمیوم با افزایش زمان الکترولیز به دست آمده است. بر اساس قانون فارادی، مقدار لخته موجود در سیستم که به مصرف الکترودها مربوط می شود، تحت تأثیر زمان الکترولیز است. زمان الکترولیز می تواند موجب افزایش یون های آزاد شده در سیستم شود و اثر زمان یک پارامتر مهم در فرآیندهای الکتروشیمیایی به منظور کنترل سرعت واکنش، می باشد (Asaithambi et al. 2016).



شکل ۵- تأثیر زمان الکترولیز (الف) بر حذف کادمیوم (%). (نوع الکتروده: Fe-Al; pH: ۷; چگالی جریان: 104.10 A/m^2)

Fig. 5 The effect of electrolysis time a) on cadmium removal (%) electrode type: Fe-Al; pH: 7, (current density: 104.10 A/m^2)

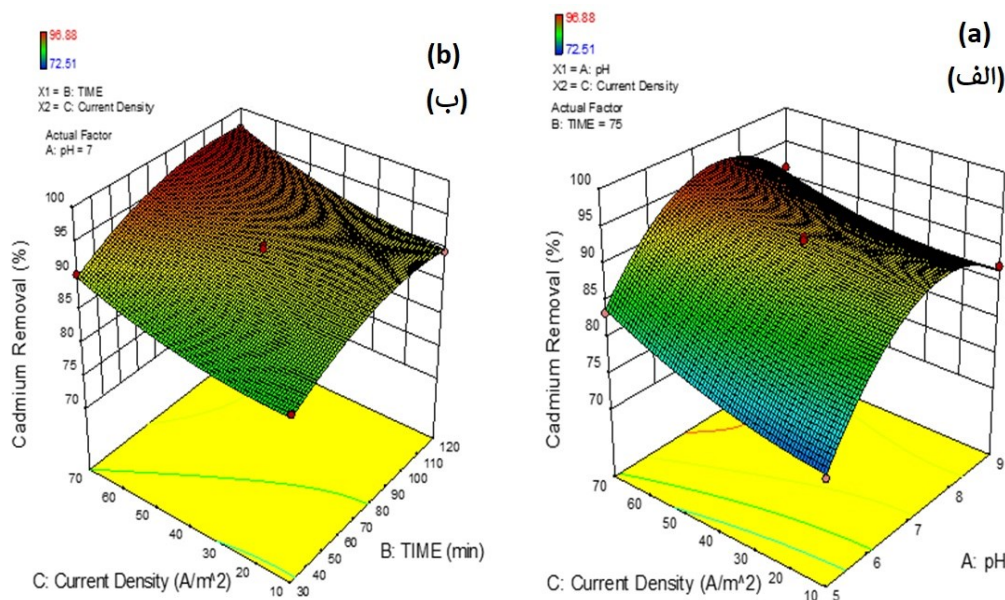
از آنجایی که مقدار لخته های محلول در الکتروده افزایش یافته است، راندمان حذف افزایش می یابد که ممکن است با مقدار کافی انحلال لخته های حاصل از مصرف الکترودها تأمین شود تا لایه دوگانه هیدروکسیدهای فلزی معلق را کاهش دهد و به بی ثبات سازی آن ها، کمک کند (Chou et al. 2009).

هنگامی که زمان الکترولیز طولانی تر می شود، یون ها و هیدروکسید آزاد شده از الکترودهای متشکل از لخته های هیدروکسید بیش تری هستند که توسط ذرات آلاینده بیش تر جذب می شوند (Drouiche et al. 2009). هنگامی که جریان افزایش می یابد، افزایش قابل توجهی در میزان انعقاد ایجاد می شود؛ بنابراین، حذف کادمیوم بستگی به در دسترس بودن محل ها و میزان انعقاد دارد. از مشاهدات فوق، نتیجه گیری شد که حذف کادمیوم از محلول آبی با استفاده از فرآیند EC عمدتاً به زمان و جریان الکترولیز بستگی دارد (Acharya et al. 2017).

۳-۲-۳- اثر چگالی جریان

چگالی جریان هر دو مقدار دوز انعقاد و آهنگ تولید حباب را تعیین می کند و همچنین به شدت مخلوط محلول و انتقال جرم در الکترودها را تحت تأثیر قرار می دهد (Nanseu-Njiki et al. 2009). با توجه به قوانین الکترولیز فارادی، انعقاد تولید شده از آند، متناسب با کل بار الکتریکی است که از طریق آن عبور می کند و این مفهوم چگالی جریان را در بر می گیرد. با افزایش چگالی جریان، مقادیر زیادی از لخته ها برای بی ثبات کردن ذرات کلوئیدی تولید می شود و همراه با تشکیل رسوبات بیش تر می توانند به راحتی از آب حذف شوند (Tir and Moulai-Mostefa 2008).

از سوی دیگر، با توجه به شدت جریان بیش تر، مقدار بیش تری از H_2 از کاتد تولید می شود. همچنین اندازه حباب ها با افزایش چگالی جریان کوچک تر می شود، در مطالعه انجام شده توسط (Chen et al. 2004)، نتیجه افزایش تراکم حباب، حرکت سریع رو به بالای حباب ها به سمت سطح آب، گزارش شد. در ضمن، حباب های کوچک تر سطح بالاتری را برای پیوست ذرات فراهم کرده و اطمینان بالاتری از کارایی جداسازی حاصل می شود (Chen et al. 2002). در پژوهش حاضر کادمیوم موجود در محلول باردار لیچینگ از طریق این فرآیند شناورسازی لخته ها که به وسیله مقدار زیادی از حباب های کوچک به سمت بالا می روند، حذف می شوند. این دلایل نشان می دهد که چگالی جریان بالا باعث کاهش بهتر راندمان حذف کادمیوم می شود.



شکل ۶- تأثیرات الف) چگالی جریان و pH و ب) چگالی جریان و زمان الکترولیز بر راندمان حذف کادمیوم (%).
Fig. 6 Effects of a) Current density and pH and b) Current density and electrolysis time on cadmium removal (%)

با توجه به نتایج (شکل ۶، الف و ب)، مشخص گردید که راندمان حذف کادمیوم با افزایش چگالی جریان، افزایش می یابد. این موضوع نشان می دهد هنگامی که چگالی جریان افزایش پیدا می کند، تولید انعقاد توسط آند و کاتد هم افزایش می یابد؛ بنابراین، تولید هیدروکسیدهای فلزی $M(OH)_3$ در راکتور EC افزایش یافته و از این رو به بهبود راندمان حذف، کمک می کند.

۳-۳- تعیین شرایط بهینه و تأیید مدل فرآیند حذف کادمیوم

با توجه به نتایج، شرایط بهینه EC به ترتیب pH: ۶/۸۳، زمان: ۱۱۶ min و چگالی جریان $69/62 \text{ A/m}^2$ ، تعیین شد. در این شرایط، بالاترین حذف کادمیوم (۹۶٪/۹۶) با درجه مطلوبیت ۱ به دست آمد (جدول ۴). به منظور بررسی شرایط بهینه، آزمایش های سه گانه تحت شرایط بهینه انجام شد و میانگین مقادیر حاصل از آزمایش های واقعی، اعتبار شرایط بهینه را نشان داد (Karichappan et al. 2014b). این موضوع نشان می دهد که طراحی BBD همراه با توابع مطلوبیت می تواند به طور قابل ملاحظه ای برای بهینه سازی طراحی آزمایش های برای حذف کادمیوم در فرآیند EC استفاده شود.

جدول ۴- مقایسه مقادیر تأیید و پیش بینی شده راندمان حذف کادمیوم توسط فرآیند EC در حداکثر شرایط مطلوب

Response	optimum condition			Experimental	Predicted
	X ₁	X ₂	X ₃		
%Cd grade	6.83	116	69.62	97.04	96/96

Notes: Where X₁ = pH, X₂ = electrolysis time (min), X₃ = current density (A/m²)

پژوهش بررسی تغییر محل و شکل باندهای طیف FTIR همراه با تغییرات محیط مولکولی است که می تواند راهنمای مناسبی راجع به ساختمان مولکولی یک ترکیب باشد و انطباق کامل تمام پیک های طیف یک ماده بر طیف ماده دیگر بیان گر یکسان بودن ترکیب آن دو ماده بود (Roop 2005) که نتایج حاصله در شکل (۷) نشان داده شده است.

۳-۳- مطالعات FTIR

در مطالعه حاضر نمونه های لجن (خشک شده) حاصل از فرآیند الکتروکواگولاسیون به صورت $1/2 \text{ mg}$ پودر ریز در محفظه هایی آماده شده و مورد تحلیل FTIR قرار گرفتند. پس از آماده سازی نمونه، دیسک درون دستگاه طیف سنج قرار داده شد و طیف حاصل از سنجش مقدار عبور در محدوده های طول موج $400-4000 \text{ cm}^{-1}$ به دست آمد. هدف از این بخش

به دست خواهد آمد.

$$F = 1 \times 0.2 \times 49800 = 1494 \text{ Rls}$$

میزان برق مصرفی در این سیستم برحسب آب متغیر است، اما برای تصفیه پساب مورد نظر با مشخصات گفته شده در الکتروکواگولاسیون 0.5 kw/h می توان آن را با کمک رابطه (۹) محاسبه کرد.

$$J = Q \times G \times H \quad (9)$$

که، I: قیمت برق مصرفی (Rls)، G: میزان مصرف برق (Kw/h) و H: قیمت هر کیلووات برق (Rls)

$$I = 1 \times 0.5 \times 3200 = 1600 \text{ Rls}$$

در مجموع هزینه های راهبردی برای تصفیه 1 m^3 آب مورد نظر با استفاده از انواع الکتروکواگولاسیون استفاده شده به شرح رابطه (۱۰) محاسبه می شود.

$$K = F + I \quad (10)$$

که، K: هزینه های راهبردی برای تصفیه 1 m^3 آب برابر خواهد بود با:

$$K = 1494 + 1600 = 3094 \text{ Rls}$$

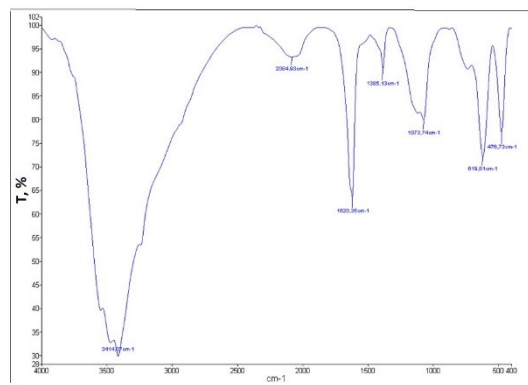
بنابراین، در سیستم تصفیه الکتروکواگولاسیون می توان نتیجه گیری کرد که الکتروکواگولاسیون از نظر اقتصادی با توجه به هزینه های اجرایی، کاملاً مقرون به صرفه می باشد.

۴- نتیجه گیری

در این پژوهش، طرح آزمایش BBD به منظور بررسی و بهینه سازی متغیرهای فرآیند مانند pH اولیه، چگالی جریان، زمان الکترولیز و نوع الکتروکواگولاسیون در حذف فلز کادمیوم از محلول با استفاده از روش الکتروکواگولاسیون در کارخانه فرآوری مواد معدنی، به کار برده شد. اهم یافته ها به شرح زیر می باشد.

۱- مقدار F-value مدل (۷۶/۰۶) نشان دهنده معنی دار بودن مدل می باشند. در مدل حذف کادمیوم، مقدار R_1^2 ، ۰/۹۸۹۹ در سازگاری مناسبی با R_1^2 تنظیم شده، ۰/۹۷۶۹ بود.

۲- راندمان حذف کادمیوم با افزایش pH آب به سطح قلیایی، افزایش یافت. هنگامی که pH از سطح اسیدی به قلیایی افزایش یافت، آلانده (کادمیوم) به طور مؤثر کاهش یافت؛ اما در ادامه در pH: ۹، حذف کادمیوم کاهش یافت و افزایش pH باعث کاهش مداوم کادمیوم نشد اما با افزایش چگالی جریان، حذف کادمیوم افزایش یافت.



شکل ۷- طیف FTIR لجن به دست آمده از فرآیند

الکتروکواگولاسیون

Fig. 7 FTIR spectrum of sludge obtained from Electrocoagulation process

۳-۴- هزینه های بهره برداری فرآیند الکتروکواگولاسیون

برآورد هزینه های از جنبه های مهم در تصفیه پساب است (Ghosh et al. 2011). هزینه های کلی توسط مجموع هزینه سرمایه، هزینه های عملیاتی و نگهداری، بیان می شود. هزینه های راهبردی در فرایند انعقاد الکتریکی شامل هزینه های مربوط به خریداری مواد (الکترودها)، هزینه های راهبردی (برق)، تعمیرات و نگهداری سیستم است. با توجه به بررسی به عمل آمده مقدار مصرف انرژی و الکترودها به ازای هر کیلوگرم از کادمیوم حذف شده در سیستم تصفیه الکتروکواگولاسیون به صورت رابطه (۷) محاسبه شده است (Moosavrad and Abaspour 2016):

$$A = B + C \quad (7)$$

که، A: میزان مصرف انرژی و الکتروکواگولاسیون به ازای هر کیلوگرم از کادمیوم حذف شده، B: هزینه های انرژی، و C: هزینه های عملیاتی می باشد. برآورد هزینه در صورت استفاده از الکترودهای آلومینیوم در نظر گرفتن انرژی الکتریکی با قیمت ۲۱۱۱ Rls/kwh انرژی مصرفی از رابطه (۸) به دست می آید.

$$F = Q \times D \times E \quad (8)$$

که، F: قیمت تمام شده برای الکتروکواگولاسیون (Rls)، Q: دبی (m³/day)، D: میزان مصرف الکتروکواگولاسیون به ازای (kg/m³) آب، و E: قیمت هر کیلوگرم شمش آلومینیوم (Rls). پس با جایگزین کردن مقادیر Q (1 m³/day)، D (kg/m³) و E (۰/۲) و (۴۹۸۰۰ Rls)، در رابطه (۸) مقدار F (۱۴۹۴ Rls)

کارخانه فرآوری مواد معدنی، می باشد. این پژوهش، زمینه پژوهش های بیش تری را در مورد دیگر دامنه های متغیرها و بررسی جامع ایجاد می کند که برای بررسی این نتایج به منظور کاربرد در صنایع معدنی در مقیاس های بزرگ تر به فرآیند الکتروکواگولاسیون ضروری است.

۵- سپاسگزاری

این پژوهش در قالب طرح پژوهشی شماره ۹۷/۱۷۰۳/ص/۷ با استفاده از اعتبارات پژوهشی- پژوهشگاه علوم و تکنولوژی پیشرفته و علوم محیطی، دانشگاه تحصیلات تکمیلی صنعتی و فناوری پیشرفته، کرمان، ایران انجام شده است.

References

- Acharya S., Sharma S. K., Chauhan G. and Shree D. (2017). Statistical Optimization of Electrocoagulation Process for Removal of Nitrates Using Response Surface Methodology. *Indian Chem. Eng.*, 60(3), 269-284.
- Antoine A. (1968). *Principles of Nuclear Magnetic Resonance*, Cambridge University Press: Cambridge, UK.
- Asaithambi P., Abdul-Aziz A. and Wan Daud W. M. A. B. (2016). Integrated ozone—electrocoagulation process for the removal of pollutant from industrial effluent: Optimization through response surface methodology. *Chem. Eng. Process.*, 105, 92-102.
- Banaei A., Saadat A., Mohammad Goli M., McArdle P., Pourbasheer E. and Pargolghasemi P. (2016). Synthesis, characterization, and molecular structures of Ni (II) and Cd (II) complexes derived from dithiophosphonate. *Heteroat. Chem.*, 27(6), 353-360.
- Caroline D., Marina E., Ricardo K. and Héctor C. G. (2007). Crossed mixture design and multiple response analysis for developing complex culture medium used in recombinant protein production. *Chemom. Intell. Lab. Syst.*, 86, 1-9.
- ۳- راندمان حذف کادمیوم به سرعت در چگالی جریان های بالاتر، افزایش یافت. این موضوع نشان می دهد که هنگامی که چگالی جریان افزایش می کند، تولید انعقاد به وسیله آند و کاتد هم افزایش می یابد.
- ۴- شرایط بهینه EC به ترتیب pH: ۶/۸۳، زمان: ۱۱۶ min و چگالی جریان $69/62 \text{ A/m}^2$ ، تعیین شد. در این شرایط، بالاترین حذف کادمیوم (۹۶٪/۹۶) با درجه مطلوبیت ۱ به دست آمد.
- به طور کلی نتایج نشان داد که امکان کاربرد فنی سیستم الکتروکواگولاسیون به عنوان یک روش قابل اعتماد و قابل اطمینان برای حذف فلزات سنگین از جمله کادمیوم در
- Chen G. (2004). Electrochemical technologies in wastewater treatment. *Sep. Purif. Technol.*, 38(1), 11-41.
- Chen, X., Chen, G. and Yue, P. L. (2002). Novel electrode system for electroflotation of wastewater. *Environ. Sci. Technol.*, 36(4), 778-783.
- Chou W. L., Wang C. T. and Huang K. Y. (2009). Effect of operating parameters on indium (III) ion removal by iron electrocoagulation and evaluation of specific energy consumption, *J. Hazard. Mater.*, 167(1-3), 467-474.
- da-Silva L. F., Barbosa A. D., de Paula H. M., Romualdo L. L. and Andrade L. S. (2016). Treatment of paint manufacturing wastewater by coagulation/electrochemical methods: proposals for disposal and/or reuse of treated water. *Water Res.*, 101, 467-475
- Drouiche N., Aoudj S., Hecini M., Ghaffour N., Lounici H. and Mameri N. (2009). Study on the treatment of photovoltaic wastewater using electrocoagulation: fluoride removal with aluminium electrodes—characteristics of products. *J. Hazard. Mater.*, 169(1-3), 65-69.
- El-Salam M. M. A. and Abu-Zuid G. I. (2015). Impact of landfill leachate on the groundwater quality: a case study in Egypt. *J. Adv. Res.*, 6(4), 579-586.
- El-Samrani A. G. Lartiges B. S. and Villieras F. (2008). Chemical coagulation of combined.

- sewer overflow: heavy metal removal and treatment optimization. *Water Res.*, 42(4-5), 951-960.
- Fetter C.W., Boving T. and Kreamer D. (2017). *Contaminant Hydrogeology*. Waveland Press, Long Grove, USA.
- Ghosh D., Medhi C. R. and Purkait M. K. (2011). Techno-economic analysis for the electrocoagulation of fluoride-contaminated drinking water. *Toxic. Environ. Chem.*, 93 (3), 424-437.
- Hasanzadeh-sablouei A. and Moosavirad S. M. (2019). Copper recovery from thickener overflow by electrocoagulation/flotation: optimization of response surface, modeling, and sludge study. *Iran. J. Mine. Environ.*, 10(4), 1013-1029.
- Huda N., Raman A. A. A., Bello M. M. and Ramesh S. (2017). Electrocoagulation treatment of raw landfill leachate using iron-based electrodes: Effects of process parameters and optimization. *J. Environ. Eng. Manage.*, 204, 75-81.
- Ilhan F., Apaydin O., Kurt U., Arslankaya E. and Gonullu M. T. (2007). Treatment of leachate by electrocoagulation and electrooxidation processes. In: *Third International Conference on Environmental Science and Technology (ICEST)*, Hoston-Texas, USA, August. 6-9.
- Karichappan T., Venkatachalam S. and Jeganathan P. M. (2014a). Optimization of electrocoagulation process to treat grey wastewater in batch mode using response surface methodology. *J. Environ. Health Sci. Eng.*, 12(29), 1-8.
- Karichappan T., Venkatachalam S. and Jeganathan P. M. (2014b). Treatment of egg processing industry effluent using chitosan as an adsorbent. *J. Serb. Chem. Soc.*, 79(6), 743-57.
- Ke-di Y., Xian-jin Y. E., Jing S. U., Hai-feng S. U., Yun-fei L., Xiao-yan L. Ü. and Yan-Xuan W. (2013). Response surface optimization of process parameters for reduction roasting of low-grade pyrolusite by bagasse. *Trans. Nonferrous Met. Soc. China.*, 23(2), 548-555.
- Kenneth J. A., William J. B., Jagdish B., Michael J. B. and Robert C. (2008). *Clean Water Act Brief*. Stanford University., USA.
- Koby M., Erdem, N. and Demirbas, E. (2014). Treatment of Cr, Ni and Zn from galvanic rinsing wastewater by electrocoagulation process using iron electrodes. *Desal. Water Treat.*, 56(5): 1191-1201.
- Kurniawan T. A., Chan, G. Y. S. Lo, W. H. and Babel, S. (2006). Physicochemical treatment techniques for wastewater laden with heavy metals, *Chem. Eng. J.*, 118, 83-98.
- Malakootian M., Mansoorian H. J. and Moosazadeh M. (2010). Performance evaluation of electrocoagulation process using iron-rod electrodes for removing hardness from drinking water. *Desal.*, 255(1-3), 67-71.
- Moosavirad S. M. and Abaspour-Sirjani M. (2016). Assessment of electrocoagulation method to reduce total suspended solids, turbidity and hardness of thickener overflow of hematite in Gole-Gohar Sirjan. *Iran J. Mine. Environ.*, 11(32), 47-57.
- Muhammad N., Banoori N., Akbar A., Azizullah A., Khan M., Qasim M. and Rahman H. (2017). Microbial and toxic metal contamination in well drinking water: potential health risk in selected areas of Kohat, Pakistan. *Urban Water J.*, 14(4), 394-400.
- Myers R. H., Montgomery D. C. and Adweson-Cook C. M. (2008). *Response surface methodology: Process and product optimization using designed experiments*. John Wiley and Sons, New York.
- Nanseu-Njiki C. P., Tchamango S. R., Ngom P. C., Darchen A. and Ngameni E. (2009). Mercury (II) removal from water by electrocoagulation using aluminium and iron electrodes. *J. Hazard. Mater.*, 168(2-3), 1430-1436.
- Ozaki H., Sharma K. and Saktaywin W. (2002). Performance of an ultra-low-pressure reverse osmosis membrane (ULPROM) for separating heavy metal: effects of interference parameters. *Desal.*, 144 (1-3), 287-294.
- Razak N. H. A., Praveena S. M., Aris A. Z. and Hashim Z. (2015). *Drinking water studies: a review on heavy metal, application of*

- biomarker and health risk assessment (a special focus in Malaysia). *J. Epidem. Global Health*, 5(4), 297–310.
- Roop, Ch. B. (2005) Goyal M. Activated Carbon Adsorption. CRC Press, 497.
- Salehi M., Li X. and Whelton A. J. (2017). Metal accumulation in representative plastic drinking water plumbing systems. *J. Am. Water Works Assoc.*, 109, E479–E493.
- Taylor M., Caldwell J. and Sneath G. (2017). In: Current state and trend of cadmium levels in soil, freshwater and sediments across the Waikato region. Science and Policy: Nutrient Management Challenges for the Next Generation. Occasional Report No. 30. Fertilizer and Lime Research Centre, Massey University, Palmerston North, p. 11.
- Tir M. and Moulai-Mostefa N. (2008). Optimization of oil removal from oily wastewater by electrocoagulation using response surface method. *J. Hazard. Mater.*, 158(1), 107–115.
- Umran T. U. and Sadettin E. O. (2015). Removal of heavy metals (Cd, Cu, Ni) by Electrocoagulation. *Int. J. Environ. Sci. Dev.*, 6 (6), 425–429.
- US-EPA (United States-Environmental Protection Agency). (2001). EPA to Implement 10 ppb Standard for Arsenic in Drinking Water, Office of Water. Fact Sheet. EPA 815-F-01-010.
- Vasudevan S., Epron F., Lakshmi J., Ravichandran S., Mohan S. and Sozhan G. (2010) Removal of NO_3^- from drinking water by electrocoagulation – an alternate approach. *Clean. Soil. Air. Water*, 38, 225–229.
- Víctor-Ortega M. D., Ochando-Pulido J. M. and Martínez-Ferez A. (2016). Thermodynamic and kinetic studies on iron removal by means of a novel strong-acid cation exchange resin for olive mill effluent reclamation. *Ecol. Eng.*, 86, 53–59.
- Wu J. and Sun Z. (2016). Evaluation of shallow groundwater contamination and associated human health risk in an alluvial plain impacted by agricultural and industrial activities. *Expos. Health*, 8, 311–329.
- Yaghmaeian K., Martinez S. S., Hoseini M. and Amiri H. (2016). Optimization of As (III) removal in hard water by electrocoagulation using central composite design with response surface methodology. *Desalin. Water Treat.*, 57(57), 27827–27833.
- Yin H., Chen Z., Gu Z. and Han Y. (2009). Optimization of natural fermentative medium for selenium-enriched yeast by D-optimal mixture design. *LWT--Food Sci. Technol.*, 42(1), 327–331.
- Yoo H. and Kwak S. Y. (2013). Surface functionalization of PTFE membranes with hyperbranched poly (amidoamine) for the removal of Cu^{2+} ions from aqueous solution. *J. Membr. Sci.*, 448, 125–134.
- Zhao S. H., Huang G., Cheng G., Wang Y. and Fua H. (2014). Hardness, COD and turbidity removals from produced water by electrocoagulation pretreatment prior to Reverse Osmosis membranes. *Desal.*, 344: 454–462.
- Zhu Q. and Li Z. (2015). Hydrogel-supported nanosized hydrous manganese dioxide: synthesis, characterization, and adsorption behavior study for Pb^{2+} , Cu^{2+} , Cd^{2+} and Ni^{2+} removal from water. *Chem. Eng. J.*, 281, 69–80.

Removal of Cadmium from the Leaching Solution Using Electrocoagulation

Seyed Morteza Moosavirad^{1*} and Ali Hasanzadeh-Sablouei²

¹Assist. Professor, Department of Environment, Institute of Science and High Technology and Environmental Sciences, Graduate University of Advanced Technology, Kerman, Iran

²Expert, Deputy Minister of Mines and Mining Industries, Kerman Province Industry, Mining and Trade Organization, Kerman, Iran

*Corresponding author: s.m.moosavirad@kgut.ac.ir

Original Paper

Received: July 15, 2020

Revised: September 12, 2020

Accepted: September 14, 2020

Abstract

In the present study, the electrochemical coagulation process (electrocoagulation) in the mining industry was investigated in order to remove one of the heavy metals, cadmium, from the leaching solution of the copper processing plant. The response surface methodology (RSM) was used to optimize the factors affecting the removal of this metal in the electrocoagulation process. For this purpose, Behnken Box Design (BBD) was used to optimize the experiments. The effects of three independent parameters such as pH (X_1), electrolysis time (X_2), current density (X_3) were investigated in order to investigate the removal of cadmium from the leaching solution. The quadratic model was used to respond to the cadmium removal efficiency. The most important independent variables and the interaction between them were evaluated using ANOVA test. This study showed that the optimal operating conditions for cadmium removal are 96.96% at initial pH: 6.83, electrolysis time: 116 min and current density: 69.262 A/m². The results showed that the ability of electrocoagulation process can be considered as a reliable method to remove cadmium from industrial effluents, especially in mineral processing plants.

Keywords: Cadmium; Electrocoagulation; Heavy Metals; Removal.