

## Original article

## Effect of Operating Parameters on the Active Chlorine Production in Bipolar Electrochlorination Cell with Titanium and Platinum/Titanium Anode Electrodes using Box-Behnken Method

Samaneh Dehghan<sup>1</sup>Yousef Dadban Shahamat<sup>2\*</sup>Fariba Ziarati<sup>3</sup>

- 1- Assistant Professor, Department of Environmental Health, Faculty of Health, Mazandaran University of Medical Sciences, Sari, Iran
- 2- Associate Professor, Environmental Health Research Center, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Golestan University of Medical Sciences, Gorgan, Iran
- 3- BSc student of Environmental Health Engineering, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Golestan University of Medical Sciences, Gorgan, Iran

**\*Corresponding author:** Yousef Dadban Shahamat, Environmental Health Research Center, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Golestan University of Medical Sciences, Gorgan, Iran

**Email:** dr.udadban@goums.ac.ir

**Received:** 30 November 2021

**Accepted:** 06 February 2022

### ABSTRACT

**Introduction and purpose:** Today, chlorine and its compounds are the most popular elements employed for disinfecting water and wastewater due to their flexibility, cost-efficiency, and ease of use. This research aimed to optimally produce active chlorine by the electrochlorination method using titanium and platinum/titanium electrodes.

**Methods:** This experimental study was conducted in a batch flow of an electro-chlorination cell. The experimental design was performed using the Box Behnken method with a sample size of 34 experiments. The production of active chlorine was evaluated and compared on various operating factors, including current density (10-60 A/dm<sup>2</sup>), sodium chloride concentration (50-250 g/L), reaction time (5-120 min), and two types of anode electrodes of titanium and platinum/titanium and 316 cathode steel.

**Results:** The results showed all four operating parameters had a significant effect on the active chlorine production and the highest effectiveness was related to electrolysis time, followed by current density, sodium chloride concentration, and anode electrode in descending order. The optimal operating conditions provided by the model for chlorine production included the electrolysis time of 120 min, current density of 60 A/dm<sup>2</sup>, concentration of sodium chloride of 187 g/L, and type of platinum/titanium anode electrode and 316 cathode steel electrode, which resulted in active chlorine of 65.95 g/L.

**Conclusion:** This method can be used as an effective method to produce chlorine to disinfect water and wastewater in treatment plants, and if replaced with gas chlorination systems, the safety problems of chlorine gas capsules will be solved.

**Keywords:** Anode electrode, Bipolar, Box Behnken design, Electro-chlorination, Water

► **Citation:** Dehghan S, Dadban Shahamat Y, Ziarati F. Effect of Operating Parameters on the Active Chlorine Production in Bipolar Electrochlorination Cell with Titanium and Platinum/Titanium Anode Electrodes Using Box-Behnken Method. Journal of Health Research in Community. Spring 2022;8(1): 1-15.

## مقاله پژوهشی

# بررسی تأثیر پارامترهای بهره‌برداری بر فرایند تولید کلر فعال در سلول الکتروکلریناسیون با چینش دوقطبی الکترودهای تیتانیوم و پلاتین/تیتانیوم به روش طراحی باکس بنکن

## چکیده

سمانه دهقان<sup>۱</sup>یوسف دادبان شهامت<sup>۲\*</sup>فریبا زیارتی<sup>۳</sup>

**مقدمه و هدف:** امروزه استفاده از کلر و ترکیبات آن از نظر سهولت کاربری، انعطاف‌پذیری و هزینه کم محبوبیت زیادی در فرایند گندزدایی آب و پساب دارد. هدف از این تحقیق تولید بهینه کلر به روش الکتروکلریناسیون با استفاده از الکترودهای تیتانیوم و پلاتین/تیتانیوم است.

**روش کار:** مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی است که در یک سلول الکتروکلریناسیون با جریان منقطع انجام شد. طراحی آزمایش به روش باکس بنکن با حجم نمونه ۳۴ آزمایش انجام شد. فاکتور بهره‌برداری شامل دانسیته جریان (۶۰-۱۰ آمپر بر دسی متر مربع)، غلظت کلرید سدیم (۲۵۰-۵۰ گرم بر لیتر)، زمان واکنش (۱۲۰-۵ دقیقه) و دو نوع جنس الکتروآند تیتانیوم و پلاتین/تیتانیوم و کاتد استیل ۳۱۶ بر راندامان تولید کلر فعال تولیدی بررسی و مقایسه شد.

**یافته‌ها:** نتایج نشان داد تأثیر هر چهار پارامتر بهره‌برداری بر فرایند تولید کلر فعال مؤثر و معنی‌دار بود و بیشترین تأثیر آن‌ها به ترتیب شامل زمان الکترولیز، دانسیته جریان، غلظت کلرید سدیم و نوع الکتروآند است. شرایط بهینه بهره‌برداری ارائه شده در مدل برای تولید کلر شامل زمان الکترولیز ۱۲۰ دقیقه، دانسیته جریان ۶۰ آمپر بر دسی متر مربع، غلظت کلرید سدیم ۱۸۷ گرم بر لیتر و نوع الکتروآند پلاتین/تیتانیوم و الکتروکاتد استیل ۳۱۶ است که مقدار کلر ۶۵/۹۵ گرم بر لیتر به دست آمد.

**نتیجه‌گیری:** این روش می‌تواند به عنوان روشی مؤثر برای تولید کلر به منظور گندزدایی آب و پساب در تصفیه‌خانه‌ها استفاده شود و در صورت جایگزینی با سیستم‌های کلرزنی گازی، مشکلات ایمنی کپسول‌های گاز کلر نیز مرتفع می‌شود.

**کلمات کلیدی:** آب، الکتروکلریناسیون، الکتروآند، باکس بنکن، دوقطبی

۱. استادیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی مازندران، ساری، ایران
۲. دانشیار، مرکز تحقیقات بهداشت محیط، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی گلستان، گرگان، ایران
۳. دانشجوی کارشناسی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی گلستان، گرگان، ایران

\* نویسنده مسئول: یوسف دادبان شهامت، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی گلستان، گرگان، ایران

Email: dr.udadban@goums.ac.ir

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۹/۰۹

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۱۱/۱۷

## مقدمه

با افزایش آگاهی جوامع از خطرات جبران‌ناپذیر آلودگی محیط‌زیست در تخلیه پساب‌ها و مواد آلاینده به طبیعت، قوانین

حفاظت از محیط زیست در دو دهه اخیر بسیار جدی و سخت تر شده است [۱]. بر اساس برآورد سازمان جهانی بهداشت سالیانه ۱/۸ میلیون نفر در جهان و بیشتر در کشورهای در حال توسعه بر اثر بیماری های اسهالی می میرند [۲]. از این رو، بزرگ ترین خطر برای سلامت انسان از طریق آب، آلودگی میکروبی منابع آب است [۳]. بسیاری از روش های گندزدایی فیزیکی مانند اسمز معکوس و روش های شیمیایی نظیر کلرزنی، پرتو فرابنفش و کاتالیزورهای مختلف برای از بین بردن میکروارگانیسم های بیماری زا از آب و پساب فاضلاب استفاده می شوند. روش های مذکور مشکلات بهداشتی نظیر تولید محصولات جانبی گندزدایی و همچنین مسائل فنی و اقتصادی به همراه دارند؛ برای مثال، روش ازن زنی مزایایی دارد، ولی مشکلاتی نیز در اثر واکنش ازن با برمید ایجاد می شود [۳، ۴]. همچنین ازن مصرفی به دلیل ناپایدار بودن باید در محل تولید شود. مصرف ازن با دُز کمتر ممکن است به طور مؤثر قادر به غیرفعال سازی بعضی از ویروس ها، هاگ ها و کیست ها نباشد و در نهایت گاز خروجی از تماس دهنده معمولاً حاوی ازن با غلظت بیش از ۱ گرم بر مترمکعب است که قبل از رها شدن به محیط باید از بین برود [۵]. همچنین روش گندزدایی با اشعه UV مزایای چون زمان تماس کوتاه دارد، ولی معایبی نیز دارد؛ مثلاً نیاز به تصفیه کامل آب قبل از استفاده از UV، ناتوانی در حذف طعم، بو و رنگ و عدم ایجاد باقی مانده ای و نیاز به تجهیزات گران قیمت و انرژی الکتریکی زیاد است. در حالی که در این روش اسپورها، کیست ها و ویروس ها حساسیت کمتری دارند [۵].

به این ترتیب با افزایش شیوع بیماری های عفونی از طریق آب و مصارف مجدد پساب ها و گسترش میکروارگانیسم های بیماری زا، مقاومت در برابر عوامل گندزدا، به استفاده از روش های نوین مؤثر و مقرون به صرفه برای گندزدایی آب و پساب نیاز است [۶]. در بین این روش ها، محبوب ترین روش برای گندزدایی آب در تصفیه خانه های کشور از نظر سهولت کاربری، انعطاف پذیری و هزینه کم، استفاده از کلر و ترکیبات

آن است [۷، ۸]. از آنجاکه نشت این گاز از کپسول های حاوی گاز بسیار خطرناک است و خطر مسمومیت گسترده و انفجار به همراه دارد، لذا روش استفاده از تولید کلر در محل با استفاده از الکتروکلریناسیون مورد توجه قرار گرفته است.

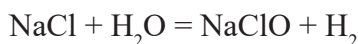
اخیراً مطالعات زیادی در خصوص استفاده از فرایندهای الکتروشیمیایی برای تصفیه آب و فاضلاب انجام شده است. در این راستا به طور خاص تحقیقاتی نیز در خصوص استفاده از انواع الکترودها برای کاربرد در سلول الکتروشیمیایی در گندزدایی و تجزیه ترکیبات آلی آب انجام شده است [۹-۱۲]. تحقیقات انجام شده در این زمینه نشان داده است میکروارگانیسم ها را می توان با الکتروشیمیایی یا از طریق گونه های شیمیایی بسیار فعال مانند رادیکال های آزاد و یون های دیگر (OH، O، HO<sub>۲</sub>، CL<sub>۲</sub>، OCl<sup>-</sup>) غیرفعال کرد. میدان های الکتریکی برای سلول ها مضر هستند، اما تحقیقات نشان داده اند مرگ با اختلال در دیواره سلولی رخ نمی دهد [۱۳، ۱۴].

همچنین بعضی از مطالعات نشان دادند غیرفعال سازی در درجه اول با توجه به خواص گندزدایی ترکیبات اکسیژن فعال تولید شده در الکترودهاست. این ترکیبات اکسیژن به کاهش تشکیل محصولات جانبی گندزدایی ناخواسته مانند THM کمک می کند که در طول گندزدایی با دُز کلر متداول تشکیل شده اند [۱۳]. غیرفعال سازی مستقیم شامل جذب الکتریکی باکتری ها در سطح الکتروود و تخریب آن است، به طوریکه غیرفعال کردن باکتری ها و سلول های مخمر هم به وسیله الکتروشیمیایی مستند شده است [۱۵]. از مزایای دیگر این روش می توان به مصرف نشدن انرژی زیاد برای تولید گندزدا، پرتابل بودن سیستم، کم حجم و مقرون به صرفه بودن برای کاربرد در اجتماعات کوچک و تک خانواری و در پکیج های تصفیه آب اشاره کرد. همچنین مشکلات کلرزنی متداول از قبیل انفجار و شارژ کپسول های گاز کلر، مسمومیت و نگهداری کلر به عنوان ماده خطرناک در محل نیز رفع می شود [۱۶، ۱۷].

معادله ۳:



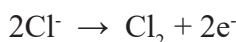
معادله ۴: تولید هیپوکلریت



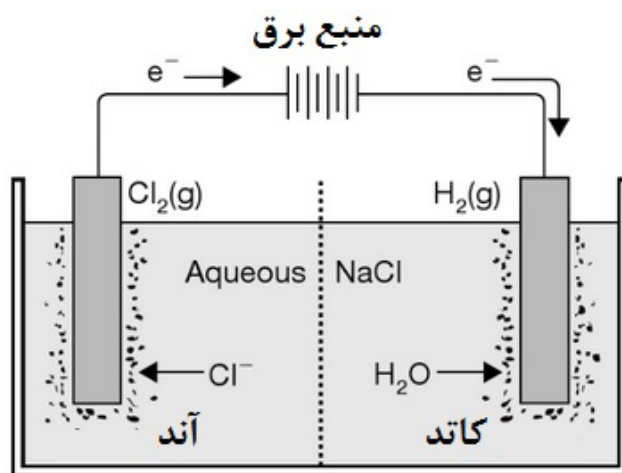
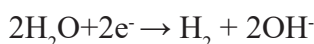
به طور اختصاصی تر، برای تولید محلول گندزدای حاوی کلر فعال انواع مختلفی از سلول های الکترولیز از جمله غشایی و بدون غشا نوع تک قطبی و نوع دوقطبی استفاده می شود. در سلول غشایی یک غشای تعویض یونی در بین الکترودهای آند و کاتد قرار گرفته است. این غشا قادر است آنیون ها را از خود عبور دهد و آن ها را به سمت آند هدایت کند. در این سلول ها یون های کلرید به وسیله غشا به سمت آند می رود و یون های سدیم در سمت کاتد باقی می ماند [۲۲، ۲۳]. ساختار سل بدون غشا همانند سل غشایی است، با این تفاوت که در آن غشا وجود ندارد؛ بنابراین، یک ورودی آب و نمک و یک خروجی محصولات دارد. در این حالت محصولات سمت آند و کاتد با یکدیگر مخلوط هستند و از خروجی سل خارج می شوند. این نوع سلول می تواند در انواع تک قطبی و دوقطبی استفاده شود. در حالتی که سلول ها به صورت موازی چیده شده و اختلاف پتانسیل یکسان در هر جفت آند-کاتد داشته باشند، چینش تک قطبی است. جریان

به طور کلی در دنیا تحقیقات مختلف مستمري در خصوص تعیین شرایط بهینه بهره برداری از قبیل سنتز و کاربرد انواع الکترودها، غلظت الکترولیت، زمان واکنش، pH، دانسیته جریان، دمای راکتور سلول، فاصله الکترودها، نوع چینش آن ها و نسبت سطح آند به کاتد بر رانندمان فرایندهای الکتروشیمیایی انجام شده است (۱۲، ۱۸-۲۰) که با سنتز الکترودهای جدید این اطلاعات کامل تر و به روز تر می شود. به طور کلی در ادبیات فنی به مجموع اسید هیپوکلرو و آنیون هیپوکلریت «کلر فعال» گفته می شود [۱۲، ۲۰-۱۸]. در این مطالعه نیز از این شاخص برای سنجش کلر تولیدی استفاده شده است. اساس عملکرد سلول الکتروکلریناسیون بر الکترولیز کلرید سدیم و آب استوار است. در این فرایند مطابق شکل ۱، آنیون ها به سمت آند و کاتیون ها به سمت کاتد می روند و واکنش های مربوطه در ذیل انجام می شود [۲۱]: واکنش هایی که در آند اتفاق می افتد:

معادله ۱: تولید کلر آزاد در الکترولایزر واکنش هایی که در کاتد اتفاق می افتد:



معادله ۲: تولید یون هیدروژن در الکترولایزر واکنش های شیمیایی فرایند:



شکل ۱. یک سلول الکتروکلرولایزر

این مطالعه بررسی ساخت سلول الکتروکلریناسیون با الکترودهای مختلف و تعیین تأثیر پارامترهای مختلف مؤثر بر بهره‌برداری در راکتور با چینش دوقطبی به روش طراحی آزمایش‌های باکس بنکن است.

## روش کار

مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی با رویکرد کاربردی است که در یک راکتور با جریان منقطع در آزمایشگاه آب‌وفاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی گلستان انجام شد. در این مطالعه در مرحله اول به‌منظور تعیین شرایط بهینه پارامترهای بهره‌برداری بر تولید کلر فعال، راکتور با چینش دوقطبی الکتروده به حجم ۵۰۰ سی‌سی طراحی و مطابق شکل ۲ ساخته شد.

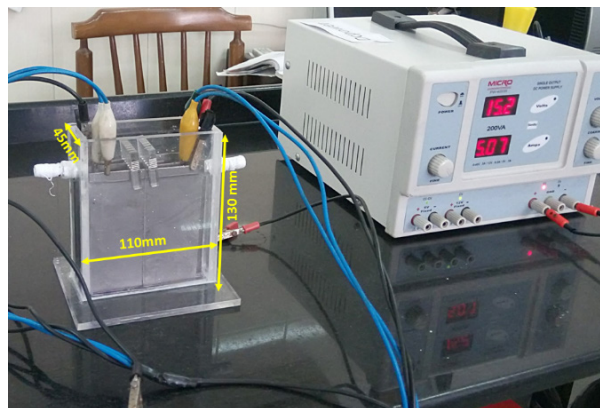
### مواد شیمیایی استفاده‌شده

تمام مواد و محلول‌های شیمیایی استفاده‌شده در این پژوهش شامل یدید پتاسیم، کلرید سدیم، اسید سولفوریک، هیدروکسید سدیم و تیوسولفات سدیم درجه خلوص آزمایشگاهی داشتند و از شرکت مرک تهیه شدند. الکترودهای استیل ۳۱۶ و تیتانیوم

کل سلول برابر جمع جریان هر جفت الکتروده و ولتاژ برابر ولتاژ یک جفت الکتروده است. در صورتی که در چینش دوقطبی، فقط الکتروده اول و آخر به جریان برق متصل می‌شوند. قطب الکترودهای دیگر متضاد قطبی است که در مقابل آن‌هاست و ولتاژ هر جفت الکتروده، بخشی از کل ولتاژ سلول است [۲۲، ۲۳]. الکتروده پلاتین در برابر انحلال مقاومت دارد؛ نه تنها به دلیل جایگاه خود در سری گالوانیکی به‌عنوان یک فلز نجیب، بلکه به دلیل آن که یک سطح نازک رسانا را تشکیل می‌دهد. سرعت انحلال آند پلاتین در آب شور بسیار کم است. قیمت زیاد پلاتین در ترکیب با نرخ بسیار کم آن در پوشش منجر به آن شده است که در درجه اول به‌عنوان یک فیلم نازک آبکاری روی فلزات ارزان‌تر استفاده شود. پلاتین معمولاً بیشتر به فلز بستر با آبکاری پوشش داده می‌شود. این لایه‌های نازک پلاتین سبب افزایش عمر عملیاتی می‌شوند [۲۴]. لذا در این تحقیق با پوشش روی الکتروده تیتانیوم به‌عنوان آند استفاده شد. در این مطالعه با توجه به انحصاری بودن ساخت انواع سلول‌ها و الکترودهای مخصوص تولید کلر و سایر گندزداها، انجام تحقیقات جامع در کشور مورد نیاز است. لذا نیاز است مطالعات جامعی در خصوص الکتروده، مدل‌سازی و تعیین شرایط بهینه تحقیق و ساخت آن انجام شود. هدف از انجام



ب



الف

شکل ۲. (الف) نمای پایلوت راکتور سلول الکتروکلریناتور؛ (ب) نحوه چینش دوقطبی الکترودها در سلول

استفاده شده نیز با درصد خلوص ۹۹ درصد ساخت کشور روسیه از شرکت آلیاژهای صنعتی تهیه شد که ساختار شیمیایی آن در جدول ۱ نشان داده شده است.

### مشخصات راکتور

به منظور ساخت بدنه اصلی راکتور از ورقه های پلکسی در ضخامت ۰/۵ سانتی متر استفاده شد. حجم مفید راکتور با ابعاد طول×عرض×ارتفاع به ترتیب ۱۱۰×۴۵×۱۳۰ میلی متر، ۵۰۰ میلی لیتر به دست آمد که در آن الکترودها با ابعاد ۱۰۰×۳۰ میلی متر در چهار ردیف و به فاصله ۰/۵ سانتی متر از یکدیگر مطابق شکل ۲ مستقر شدند. منبع تغذیه برق مستقیم (Direct Current: DC) بود که از ترانس مبدل مدل میکرو PW۴۰۵۱۹ ساخت ایران استفاده شد.

در این تحقیق از دو نوع الکترود تیتانیوم و پلاتین پوشش شده روی تیتانیوم ساخته شده به روش ترسیب آبرکاری با استفاده از اسید کلروپلاتینیک به عنوان آنود استفاده شد [۲۴، ۲۵]. در هر دو حالت از الکترود استیل ۳۱۶ به عنوان کاتد استفاده شد.

### انجام آزمایش ها به روش باکس بنکن

انجام آزمایش به روش باکس بنکن (Box- Behnken)

جدول ۱: مشخصات ترکیب عناصر الکترودهای استفاده شده در سلول الکترولیز

| نوع الکترود               | استیل ۳۱۶  | تیتانیوم   |
|---------------------------|------------|------------|
| نوع عناصر شیمیایی الکترود | درصد عناصر | درصد عناصر |
| Fe                        | ۶۹/۵       | -          |
| Ni                        | ۱۰/۴۶      | ۰/۰۳       |
| MO                        | ۲/۰۹       | -          |
| Mn                        | ۱/۰۱       | -          |
| Cr                        | ۱۶/۶۵      | -          |
| Ti                        | -          | ۹۹/۱۴      |
| Si                        | -          | ۰/۲۱       |
| درصد خلوص                 | ۹۹/۷۱      | ۹۹/۳۸      |

(design: BBD) یکی از روش های متداول در روش های سطح- پاسخ است که بر مدل توان دومی سه سطحی قابل چرخش مبتنی است. این کار با نرم افزار Design Expert نسخه ۱۱ و تجزیه و تحلیل آماری داده با استفاده از آزمون تحلیل واریانس (ANOVA) تعریف شده در مدل انجام شد. در این طراحی از چهار فاکتور بهره برداری شامل دانسیته جریان (۶۰-۱۰ آمپر بر دسی متر مربع)، غلظت کلرید سدیم (۲۵۰-۵۰ گرم بر لیتر)، زمان واکنش (۱۲۰-۵ دقیقه) و دو نوع جنس الکترود آنود (تیتانیوم و پلاتین/تیتانیوم) بر راندمان تولید کلر فعال تولیدی بررسی و مقایسه شد. ماتریکس پارامترها (Xi) روی پاسخ (Y) یا تولید کلر در جدول ۲ نشان داده شده است.

پس از اعمال شرایط مختلف بهره برداری متغیرهای مستقل در زمان های خواسته شده توسط مدل نسبت به نمونه برداری از راکتور اقدام شد و کلر فعال آن از روش رنگ سنجی با معرف DPD (N, N'-diethyl-p-phenylenediamine) با عنوان ۴۵۰۰-Cl موجود در کتاب استاندارد متد استفاده شد؛ سپس با اجرای مدل در نرم افزار شرایط بهینه بهره برداری و گراف های مربوط به آن بر پایه اهداف مدنظر استخراج شد [۲۶].

مطابق فرمول  $N = 2k(k-1) + C_0$ ، تعداد کل ۳۴ آزمایش

جدول ۲: دامنه و کدهای مربوط به متغیرهای مستقل (Xi) و پاسخ (Y) استفاده شده در طراحی آزمایش باکس بنکن

| پارامترهای بهره برداری | کد    | واحد                 | حد پایین (-۱)                              | حد متوسط (۰)    | حد بالا (+۱) |
|------------------------|-------|----------------------|--------------------------------------------|-----------------|--------------|
| دانسیته جریان          | $X_1$ | آمپر بر دسی متر مربع | ۱۰                                         | ۳۵              | ۶۰           |
| غلظت الکترولیت         | $X_2$ | گرم بر لیتر          | ۵۰                                         | ۱۵۰             | ۲۵۰          |
| زمان واکنش             | $X_3$ | دقیقه                | ۵                                          | ۶۲/۵            | ۱۲۰          |
| نوع الکترود آنود       | $X_4$ | -                    | تیتانیوم                                   | تیتانیوم/پلاتین |              |
| پاسخ                   | Y     | گرم بر لیتر          | مقدار کلر فعال تولید شده در نوبت هر آزمایش |                 |              |

خطی بین فاکتورهای  $x_i$  و  $x_j$  است [۲۸].

### یافته‌ها

#### آزمایش‌های الکتروکلریناسیون در راستای تولید کلر فعال

در این مطالعه ۳۴ آزمایش همراه با پاسخ‌ها با طراحی BBD در جدول ۳ نشان داده شده است. نتایج نشان داد تولید کلر فعال از ۲ تا ۶۸ گرم بر لیتر متغیر بود.

که دارای ۵ آزمایش تکراری برای نقطه مرکزی است، تعیین شد. در این فرمول  $k$  تعداد فاکتورها و  $C_0$  نقاط مرکزی است و مدل درجه دوم طراحی باکس بنکن با معادله ۵ تعریف می‌شود (۲۷).

معادله ۵:

$$Y = \beta_0 + \sum \beta_i x_i + \sum \beta_{ii} x_{ii}^2 + \sum \beta_{ij} x_i x_j + \varepsilon$$

در این معادله  $\beta_0$ : مقدار ثابت؛  $\beta_i$ : شیب یا اثر خطی فاکتور  $x_i$ ؛  $\beta_{ii}$ : اثر درجه دوم فاکتور  $x_i$  و  $\beta_{ij}$ : اثر برهم‌کنش خطی به

جدول ۳: طراحی آزمایش فرایند با استفاده از طرح BBD به همراه پاسخ تولید کلر فعال

| ردیف آزمایش | (A) دانسیته جریان    |             |       | آزمایش | (B) غلظت NaCl |       |             | (C) زمان الکترولیز | (D) نوع آند | (Y) کلر فعال تولیدی |       | (Y) کلر فعال تولیدی |             |
|-------------|----------------------|-------------|-------|--------|---------------|-------|-------------|--------------------|-------------|---------------------|-------|---------------------|-------------|
|             | آمپر بر دسی‌متر مربع | گرم بر لیتر | دقیقه |        | گرم بر لیتر   | دقیقه | گرم بر لیتر | پیش‌بینی           | واقعی       | پیش‌بینی            | واقعی | گرم بر لیتر         | گرم بر لیتر |
| ۱           | ۱۰                   | ۵۰          | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۱۰            | ۵۰    | ۱۸          | ۶/۷                | ۵           | ۹/۴                 | ۱۰    | ۹/۴                 | ۱۰          |
| ۲           | ۶۰                   | ۵۰          | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۶۰            | ۵۰    | ۱۹          | ۱۶/۲               | ۱۵          | ۲۳/۱                | ۲۲    | ۲۳/۱                | ۲۲          |
| ۳           | ۱۰                   | ۲۵۰         | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۱۰            | ۲۵۰   | ۲۰          | ۱۰/۱               | ۱۱          | ۱۴/۶                | ۱۶    | ۱۴/۶                | ۱۶          |
| ۴           | ۶۰                   | ۲۵۰         | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۶۰            | ۲۵۰   | ۲۱          | ۳۰/۶               | ۳۱          | ۳۴/۹                | ۴۰    | ۳۴/۹                | ۴۰          |
| ۵           | ۱۰                   | ۱۵۰         | ۵     | Ti/Pt  | ۱۰            | ۱۵۰   | ۲۲          | ۱۹/۲               | ۱۶          | ۱۹/۳                | ۱۵    | ۱۹/۳                | ۱۵          |
| ۶           | ۶۰                   | ۱۵۰         | ۵     | Ti/Pt  | ۶۰            | ۱۵۰   | ۲۳          | ۱۹/۰               | ۱۶          | ۲۳/۳                | ۲۰    | ۲۳/۳                | ۲۰          |
| ۷           | ۱۰                   | ۱۵۰         | ۱۲۰   | Ti/Pt  | ۱۰            | ۱۵۰   | ۲۴          | ۲۳/۳               | ۲۶          | ۲۹/۴                | ۳۲    | ۲۹/۴                | ۳۲          |
| ۸           | ۶۰                   | ۱۵۰         | ۱۲۰   | Ti/Pt  | ۶۰            | ۱۵۰   | ۲۵          | ۵۲/۵               | ۵۶          | ۶۳/۹                | ۶۸    | ۶۳/۹                | ۶۸          |
| ۹           | ۳۵                   | ۵۰          | ۵     | Ti/Pt  | ۳۵            | ۵۰    | ۲۶          | -۲/۶               | ۲/۵         | -۱/۳                | ۲/۲   | -۱/۳                | ۲/۲         |
| ۱۰          | ۳۵                   | ۲۵۰         | ۵     | Ti/Pt  | ۳۵            | ۲۵۰   | ۲۷          | ۱/۰                | ۳/۲         | ۴/۱                 | ۷/۲   | ۴/۱                 | ۷/۲         |
| ۱۱          | ۳۵                   | ۵۰          | ۱۲۰   | Ti/Pt  | ۳۵            | ۵۰    | ۲۸          | ۱۰/۴               | ۸           | ۱۸/۸                | ۱۶    | ۱۸/۸                | ۱۶          |
| ۱۲          | ۳۵                   | ۲۵۰         | ۱۲۰   | Ti/Pt  | ۳۵            | ۲۵۰   | ۲۹          | ۲۴/۷               | ۲۱          | ۳۴/۹                | ۳۰    | ۳۴/۹                | ۳۰          |
| ۱۳          | ۳۵                   | ۱۵۰         | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۳۵            | ۱۵۰   | ۳۰          | ۲۵/۱               | ۲۵          | ۳۰/۹                | ۳۱    | ۳۰/۹                | ۳۱          |
| ۱۴          | ۳۵                   | ۱۵۰         | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۳۵            | ۱۵۰   | ۳۱          | ۲۵/۱               | ۲۵          | ۳۰/۹                | ۳۱    | ۳۰/۹                | ۳۱          |
| ۱۵          | ۳۵                   | ۱۵۰         | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۳۵            | ۱۵۰   | ۳۲          | ۲۵/۱               | ۲۵          | ۳۰/۹                | ۳۱    | ۳۰/۹                | ۳۱          |
| ۱۶          | ۳۵                   | ۱۵۰         | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۳۵            | ۱۵۰   | ۳۳          | ۲۵/۱               | ۲۵          | ۳۰/۹                | ۳۱    | ۳۰/۹                | ۳۱          |
| ۱۷          | ۳۵                   | ۱۵۰         | ۶۲/۵  | Ti/Pt  | ۳۵            | ۱۵۰   | ۳۴          | ۲۵/۱               | ۲۵          | ۳۰/۹                | ۳۱    | ۳۰/۹                | ۳۱          |

## نتایج تحلیل واریانس یک طرفه و اعتبارسنجی مدل آماری

تحلیل واریانس روند تولید کلر فعال سطح معنی داری تأثیر پارامترهای اصلی و برهم کنشهای آنها و همچنین ضرایب آماری برازش مدل درجه دوم باکس بنکن در جدول ۴ نشان داده شده است. نتایج آنووا نشان می دهد تأثیر هر چهار پارامتر زمان الکترولیز، دانسیته جریان، غلظت کلرید سدیم و نوع الکترود بر فرایند تولید کلر فعال مؤثر و معنی دار است ( $P < 0.001$ ). این

در حالی است که برهم کنش بین این پارامترها (از جمله AB، AC، BC، CD) و توان دوم این پارامترها (از جمله  $A^2$ ،  $B^2$ ) نیز معنی دار است ( $P < 0.05$ ). مطابق نتایج ارائه شده در جدول ۴، در مدل انتخابی تولید کلر فعال مقدار  $R^2$  معادل ۰/۹۶۸؛  $R^2$  تنظیم شده با مقدار ۰/۹۴۸ و همچنین  $R^2$  پیش بینی شده ۰/۸۵ است. مقدار Adeq Precision، نسبت سیگنال به نویز را اندازه گیری می کند که در این تحلیل ۳۲/۰۵ است. با کاربرد این مدل برای ترسیم فضای طرح

جدول ۴: تحلیل واریانس روند تولید کلر فعال و ضرایب آماری برازش مدل درجه دوم باکس بنکن

| پارامترها        | مجموع مربعات | درجه آزادی | میانگین مربعات | آماره فیشر | P        |
|------------------|--------------|------------|----------------|------------|----------|
| مدل              | ۵/۶۴۲۶       | ۱۳         | ۴۹۴/۳۴         | ۴۷/۲۶      | < ۰/۰۰۰۱ |
| دانسیته جریان A- | ۱۱۷۳/۱       | ۱          | ۱۱۷۳/۰۶        | ۱۱۲/۱۴     | < ۰/۰۰۰۱ |
| B-NaCl غلظت      | ۳۸۷/۱۱       | ۱          | ۳۸۷/۱۱         | ۳۷/۰۰      | < ۰/۰۰۰۱ |
| زمان C-          | ۱۹۱۱/۹       | ۱          | ۱۹۱۱/۸۸        | ۱۸۲/۷۶     | < ۰/۰۰۰۱ |
| نوع آند D-       | ۲۸۰/۷۴       | ۱          | ۲۸۰/۷۴         | ۲۶/۸۴      | < ۰/۰۰۰۱ |
| AB               | ۶۰/۵۰        | ۱          | ۶۰/۵۰          | ۵/۷۸       | ۰/۰۲۶    |
| AC               | ۴۶۵/۱۳       | ۱          | ۴۶۵/۱۳         | ۴۴/۴۶      | < ۰/۰۰۰۱ |
| AD               | ۱۸/۰۶        | ۱          | ۱۸/۰۶          | ۱/۷۳       | ۰/۲۰۳۷   |
| BC               | ۵۶/۷۱        | ۱          | ۵۶/۷۱          | ۵/۴۲       | ۰/۰۳۰۵   |
| BD               | ۳/۳۳         | ۱          | ۳/۳۳           | ۰/۳۲       | ۰/۵۷۸۹   |
| CD               | ۵۰/۰۶        | ۱          | ۵۰/۰۶          | ۴/۷۸       | ۰/۰۴۰۸   |
| $A^2$            | ۲۳۷/۱        | ۱          | ۲۳۷/۱۱         | ۲۲/۶۷      | < ۰/۰۰۰۱ |
| $B^2$            | ۱۷۸۴/۳       | ۱          | ۱۷۸۴/۲۹        | ۱۷۰/۵۶     | < ۰/۰۰۰۱ |
| $C^2$            | ۴۰/۰۷        | ۱          | ۴۰/۰۷          | ۳/۸۳       | ۰/۰۶۴۴   |
| Residual         | ۲۰۹/۲۲       | ۲۰         | ۱۰/۴۶          |            |          |
| Lack of Fit      | ۲۰۹/۲۲       | ۱۲         | ۱۷/۴۴          |            |          |
| Pure Error       | .            | ۸          | .              |            |          |
| Cor Total        | ۶۶۳۵/۷       | ۳۳         |                |            |          |
| $R^2$            | ۰/۹۶۸        |            | Std. Dev.      | ۳/۲۳       |          |
| Adj. $R^2$       | ۰/۹۴۸        |            | Mean           | ۲۲/۶۲      |          |
| Predic. $R^2$    | ۰/۸۵۸        |            | C.V. %         | ۱۴/۳۰      |          |
| Adeq Preci.      | ۳۲/۰۵        |            |                |            |          |

سطح معنی داری  $P < 0.05$  است.

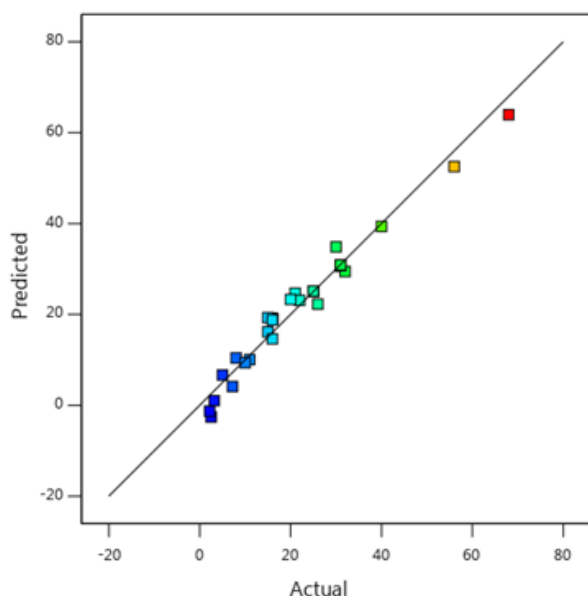
کلرید سدیم و نوع الکتروود آند است.

### تأثیر پارامترهای بهره‌برداری بر فرایند تولید کلر فعال اثر دانسیته جریان

با توجه به نتایج نشان داده شده در جدول ۳، در شرایط میانگین سایر پارامترها با افزایش چگالی جریان در الکتروود آندی تیتانیوم از ۱۰ به ۶۰ آمپر بر دسی متر مربع، مقدار تولید کلر نیز ۲/۲ برابر افزایش یافت. این در حالی بود که در الکتروود آندی پلاتین/ تیتانیوم این افزایش ۲/۱ برابر است. به طوری که تأثیر این پارامتر در جدول تحلیل واریانس یک طرفه (جدول ۴) نیز معنی دار گزارش شده است. نتایج شکل ۵ نشان دهنده تأثیر مقدار دانسیته جریان و غلظت الکتروولیت نمک طعام بر مقدار تولید کلر فعال است.

### اثر غلظت اولیه الکتروولیت نمک طعام

تأثیر این پارامتر در جدول تحلیل واریانس یک طرفه (جدول ۴) معنی دار گزارش شده است. این رابطه مستقیم بین این پارامتر و

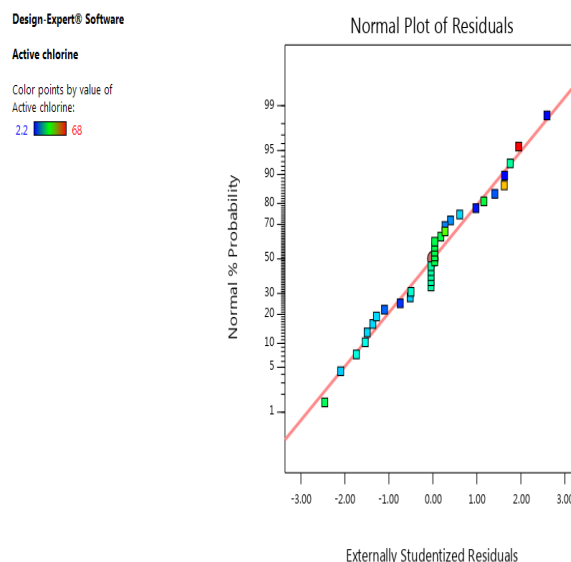


شکل ۴: همبستگی خطی بین مقدار واقعی و پیش‌بینی مدل در تولید کلر فعال

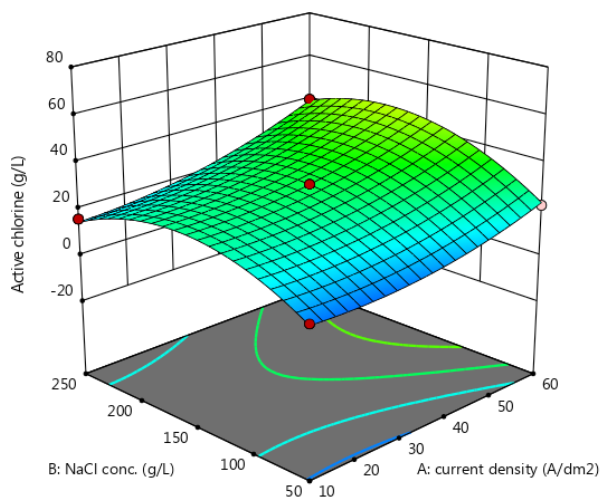
معادله رگرسیونی درجه دوم فرایند برای تولید کلر فعال به ازای هر دو نوع الکتروود آند تیتانیوم و پلاتین/ تیتانیوم مطابق با جدول ۵ به دست آمد.

شکل ۳ توزیع نرمال باقی مانده‌های استاندارد را برای استخراج اولیه تحلیل‌ها نشان می‌دهد. باقی مانده‌ها یک توزیع نرمال را دنبال می‌کنند و نقاط به دنبال یک خط مستقیم هستند که نشان دهنده این است که مدل‌ها و داده‌های تجربی معتبر و قابل اعتماد هستند و از توزیع نرمال تبعیت می‌کنند.

همان‌طور که در شکل ۴ نشان داده شده است، مقادیر واقعی پاسخ داده‌های تجربی برای یک اجرای خاص و مقادیر پاسخ پیش‌بینی شده با توابع تقریبی تقریباً یکسان هستند و مقادیر پیش‌بینی شده با مقادیر تجربی مشابه است که نشان دهنده اعتبار بالای مدل و تناسب آن با داده‌های آزمایشی است. مقدار F موجود در آزمون آنوای موجود در جدول ۴ و همچنین ضریب فرمول تولید کار فعال ارائه شده در جدول ۵ نشان می‌دهد بیشترین تأثیر پارامترهای بهره‌برداری بر میزان تولید کلر به ترتیب شامل زمان الکتروولیز، دانسیته جریان، غلظت



شکل ۳: توزیع نرمال باقی مانده‌های استاندارد در تولید کلر فعال



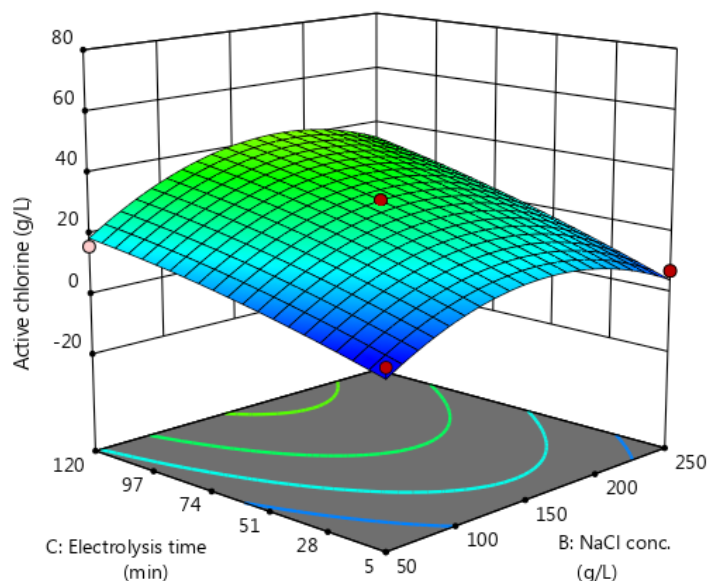
شکل ۵: تأثیر دانسیته جریان و غلظت الکترولیت نمک طعام بر مقدار تولید کلر فعال؛ الکتروآند پلاتین/تیتانیوم، زمان ۶۲/۵ دقیقه و کاتد استیل ۳۱۶

نیز ۲/۶ برابر افزایش یافت. این در حالی بود که در الکتروآندی پلاتین/تیتانیوم این افزایش ۱/۸ برابر است. شکل ۶ نشان‌دهنده تأثیر مقدار زمان فرایند الکترولیز و غلظت الکترولیت نمک طعام بر مقدار تولید کلر فعال است.

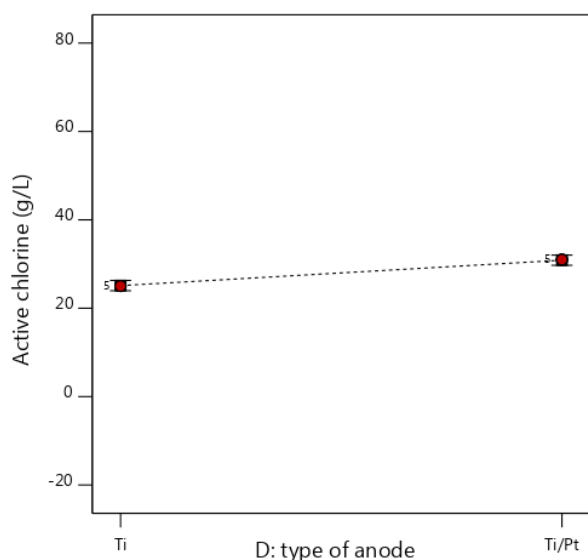
جدول ۵: معادله مدل تولید کلر فعال به ازای هر دو نوع الکتروآند

| مقدار کلر فعال (گرم بر لیتر) |        |                            |
|------------------------------|--------|----------------------------|
| الکتروآند پلاتین / تیتانیوم  |        |                            |
| -۷/۶۷۷                       | -۵/۲۴  |                            |
| دانسیته جریان                | -۰/۷۰۶ | دانسیته جریان              |
| غلظت NaCl                    | ۰/۴۲۳  | غلظت NaCl                  |
| زمان                         | ۰/۰۴۸  | زمان                       |
| دانسیته جریان*               | ۰/۰۰۱  | دانسیته جریان* NaCl        |
| غلظت NaCl                    |        | غلظت                       |
| دانسیته جریان* زمان          | ۰/۰۰۵  | دانسیته جریان* زمان        |
| غلظت NaCl* زمان              | ۰/۰۰۰۵ | غلظت NaCl* زمان            |
| دانسیته جریان <sup>۲</sup>   | ۰/۰۰۸  | دانسیته جریان <sup>۲</sup> |
| غلظت NaCl <sup>۲</sup>       | -۰/۰۰۱ | غلظت NaCl <sup>۲</sup>     |

راندمان فرایند الکتروشیمیایی در سایر مطالعات نیز به دست آمده است [۱۲]. با توجه به نتایج نشان داده شده در جدول ۳، در شرایط میانگین سایر پارامترها با افزایش غلظت الکترولیت نمک طعام در الکتروآندی تیتانیوم از ۵۰ به ۲۵۰ گرم بر لیتر، مقدار تولید کلر



شکل ۶: تأثیر زمان فرایند الکترولیز و غلظت الکترولیت نمک طعام بر مقدار تولید کلر فعال؛ الکتروآند پلاتین/تیتانیوم، دانسیته جریان ۳۵ آمپر بر دسی متر مربع و کاتد استیل ۳۱۶



شکل ۸: مقایسه مقدار کلر فعال تولیدی دو الکترود آندی تیتانیوم و پلاتین / تیتانیوم در شرایط نقطه مرکزی؛ دانسیته جریان ۳۵ آمپر بر دسی متر مربع، غلظت کلرید سدیم ۱۵۰ گرم بر لیتر و زمان فرایند ۶۲ دقیقه

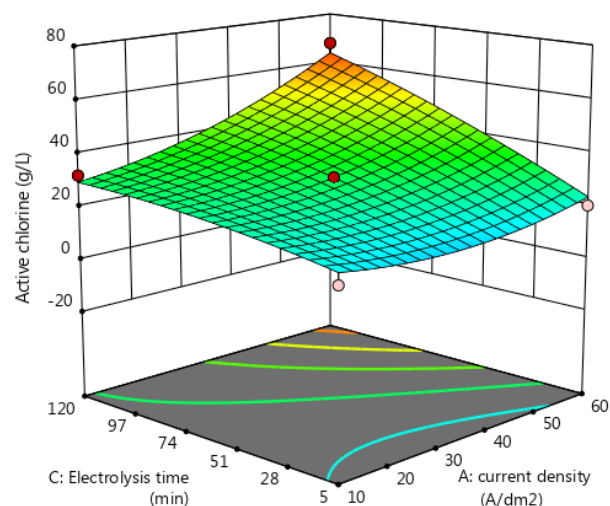
الکترودهای آندی پلاتین/تیتانیوم با ۳۱ گرم بر لیتر راندمان بیشتری (حدود ۶ درصد) نسبت به الکترودهای آندی تیتانیومی با مقدار کلر فعال ۲۵ گرم بر لیتر نشان دادند.

#### تعیین شرایط بهینه در تولید الکتروشیمیایی کلر فعال

با توجه به نتایج، شرایط بهینه بهره‌برداری ارائه شده با مدل برای تولید کلر شامل زمان الکترولیز ۱۲۰ دقیقه، دانسیته جریان ۶۰ آمپر بر دسی متر مربع، غلظت کلرید سدیم ۱۸۷ گرم بر لیتر و نوع الکترود آند پلاتین/تیتانیوم و الکترود کاتد استیل ۳۱۶ است که مقدار کلر ۶۵/۹۵ گرم بر لیتر با درجه مطلوبیت ۰/۹۷ به دست آمد.

#### بحث و نتیجه گیری

نتایج تحلیل واریانس نشان می‌دهد تأثیر هر چهار پارامتر زمان الکترولیز، دانسیته جریان، غلظت کلرید سدیم و نوع الکترود بر فرایند تولید کلر فعال مؤثر و معنی‌دار است. با توجه به مطالعات



شکل ۷: تأثیر زمان فرایند الکترولیز و دانسیته جریان بر مقدار تولید کلر فعال؛ الکترود آند پلاتین/تیتانیوم، غلظت الکترولیت نمک طعام ۱۵۰ گرم بر لیتر و کاتد استیل ۳۱۶

#### اثر زمان الکترولیز

تأثیر این پارامتر در جدول تحلیل واریانس یک‌طرفه (جدول ۴) معنی‌دار گزارش شده است. این رابطه مستقیم بین زمان الکترولیز و راندمان فرایند الکتروشیمیایی در سایر مطالعات نیز به دست آمده است [۱۲]. با توجه به نتایج نشان داده شده در جدول ۳، در شرایط میانگین سایر پارامترها با افزایش زمان فرایند الکترولیز در الکترود آندی تیتانیوم از ۵ به ۱۲۰ دقیقه، مقدار تولید کلر نیز ۳/۵ برابر افزایش یافت. این در حالی بود که در الکترود آندی پلاتین/تیتانیوم این افزایش ۳/۴ برابر است. شکل ۷ نشان‌دهنده تأثیر زمان فرایند الکترولیز و مقدار دانسیته جریان بر مقدار تولید کلر فعال است.

#### اثر نوع الکترود آند

در این تحقیق میزان تولید کلر در دو نوع الکترود آندی تیتانیومی و پلاتین/تیتانیوم با الکترود کاتدی استیل ۳۱۶ مقایسه و بررسی شد. نتایج جدول تحلیل واریانس یک‌طرفه (جدول ۴) تأثیر این پارامتر را معنی‌دار نشان داد، به‌طوری‌که در شکل ۸،

انجام شده، برای سازگاری مناسب یک مدل، ضریب همبستگی باید حداقل ۰/۸ باشد [۲۹]. مطابق نتایج ارائه شده در جدول ۴، ضریب فقدان برازش مدل (lack of fit) در جدول ۴ معنی دار شده که ممکن است به علت وجود برخی تغییرات سیستماتیک پیش‌بینی نشده در مدل فرضی باشد. در بسیاری از تحقیقات مشابه علت معنادار بودن ضریب فقدان برازش همین مورد بوده است. البته برخی مطالعات تعداد زیاد متغیرها و یا تعداد خیلی کم متغیرها را ذکر کرده‌اند [۳۰، ۳۱]. در مدل انتخابی تولید کلر فعال مقدار  $R^2$  معادل ۰/۹۶۸ در سازگاری مناسبی با  $R^2$  تنظیم شده با مقدار ۰/۹۴۸ است. همچنین  $R^2$  پیش‌بینی شده با مقدار ۰/۸۵ در تطابق کامل با  $R^2$  تعدیل شده با مقدار ۰/۹۴ است؛ تفاوت این دو کمتر از حد مجاز ۰/۲ است. نسبت سیگنال به نویز بزرگ‌تر از ۴ نشانه مطلوبیت مدل انتخابی است. نسبت به‌دست آمده در این تحلیل ۳۲/۰۵ نشان‌دهنده سیگنال کافی است و این بدین معنی است که از این مدل می‌توان برای حرکت در فضای طراحی استفاده کرد.

#### اثر دانسیته جریان

در بیشتر مطالعات الکتروشیمی به اثر دانسیته جریان بر فرایند انتقال جرم در الکترودها اشاره شده است [۳۲]. با توجه به قوانین الکترولیز فارادی، مواد تولید شده در آند متناسب با کل بار الکتریکی است که از طریق آن عبور می‌کند و این مفهوم چگالی جریان را دربرمی‌گیرد [۳۳]. نتایج این تحقیق نشان داده است تأثیر این پارامتر معنی دار است و با افزایش چگالی جریان در الکتروآندی تیتانیوم از ۱۰ به ۶۰ آمپر بر دسی متر مربع، مقدار تولید کلر نیز ۲/۲ برابر افزایش یافت. این در حالی بود که در الکتروآندی پلاتین/تیتانیوم این افزایش ۲/۱ برابر است. این نتایج مطبق بر یافته‌های سایر تحقیقات است، به‌طوری که در بیشتر مطالعات با افزایش دانسیته جریان، مکانیسم فرایند با سرعت و شدت بیشتری انجام می‌شود [۳۴-۳۶]. این رابطه مستقیم بین این پارامتر و راندمان

فرایند الکتروشیمیایی در سایر مطالعات نیز به‌دست آمده است [۳۲].

#### اثر غلظت اولیه الکترولیت نمک طعام

در بیشتر مطالعات الکتروشیمیایی با افزایش مقدار غلظت الکترولیت، میزان فرایند الکتروشیمیایی با شدت بیشتری انجام می‌شود [۱۲، ۳۴]. نتایج نشان داد در شرایط میانگین سایر پارامترها با افزایش غلظت الکترولیت نمک طعام در الکتروآندی تیتانیوم از ۵۰ به ۲۵۰ گرم بر لیتر، مقدار تولید کلر نیز ۲/۶ برابر افزایش یافت. این در حالی بود که در الکتروآندی پلاتین/تیتانیوم این افزایش ۱/۸ برابر است. این نتایج منطبق بر نتایج سایر تحقیقات است. به‌طوری که رابطه مستقیم بین این پارامتر و راندمان فرایند الکتروشیمیایی در سایر مطالعات نیز به‌دست آمده است [۱۲، ۳۶].

#### اثر زمان الکترولیز

در بیشتر مطالعات با زمان الکترولیز، میزان فرایند با سرعت و شدت بیشتری انجام می‌شود [۱۲، ۳۷]. تأثیر این پارامتر در جدول تحلیل واریانس یک‌طرفه (جدول ۴) معنی دار گزارش شده است. با توجه به نتایج به‌دست آمده در شرایط میانگین سایر پارامترها با افزایش زمان فرایند الکترولیز در الکتروآندی تیتانیوم از ۵ به ۱۲۰ دقیقه، مقدار تولید کلر نیز ۳/۵ برابر افزایش یافت. این در حالی بود که در الکتروآندی پلاتین/تیتانیوم این افزایش ۳/۴ برابر است. نتایج نشان‌دهنده تأثیر مستقیم زمان فرایند الکترولیز و مقدار دانسیته جریان بر مقدار تولید کلر فعال است. این رابطه مستقیم بین زمان الکترولیز و راندمان فرایند الکتروشیمیایی در سایر مطالعات نیز به‌دست آمده است [۱۲، ۳۶].

#### اثر نوع الکتروآند

به‌منظور افزایش راندمان فرایند الکتروشیمیایی به‌طور کلی تاکنون انواع مختلفی از الکترودها در تحقیقات استفاده شده است. در این تحقیق میزان تولید کلر در دو نوع الکتروآندی تیتانیومی و پلاتین/تیتانیوم با الکتروآند کاتدی استیل ۳۱۶ مقایسه و بررسی شد.

نتایج نشان داده است تأثیر این پارامتر معنی دار است؛ به طوری که الکترودهای آندی پلاتین/تیتانیوم با ۳۱ گرم بر لیتر، راندمان بیشتری (حدود ۶ درصد) نسبت به الکترودهای آندی تیتانیومی با مقدار کلر فعال ۲۵ گرم بر لیتر نشان دادند. پلاتین فلز متداول استفاده شده در آندهاست. در آند پلاتین یک فیلم نازک رسنا به صورت چند لایه اتمی ضخیم روی سطح فلز است که به خودی خود هم رسنا و هم بدون واکنش است. الکترو پلاتین در برابر انحلال مقاومت دارد که این نه تنها به دلیل جایگاه آن در سری گالوانیکی به عنوان یک فلز نجیب است، بلکه به این دلیل است که یک فیلم سطح نازک رسنای کنش پذیر را تشکیل می دهد؛ به طوری که سرعت انحلال آند پلاتین در آب دریا حدود  $2 \times 10^{-6}$  (کیلوگرم/کیلوآمپر ساعت) است.

قیمت زیاد پلاتین در ترکیب با نرخ بسیار کم آن در پوشش منجر شده است در درجه اول به عنوان یک فیلم نازک آبکاری روی فلزات ارزان تر استفاده شود. مقرون به صرفه ترین ترکیب مؤثر اعمال شده با پلاتین، تیتانیوم بوده است [۳۸]. مطالعات بیشتری در خصوص سنتز نانوذرات پلاتین روی تیتانیوم انجام شده است که سبب افزایش فعالیت الکتروشیمیایی و پایداری بیشتر الکترودها در محیط خورنده شد [۹]. از طرفی رابطه بین نوع الکترو د و راندمان فرایند الکتروشیمیایی در سایر مطالعات نیز به دست آمده است [۳۹، ۳۴]. به طوری که در مقایسه بعضی از فرایندهای الکترواکسیداسیون الکترودهای ترکیب با الماس راندمان های بیشتری نسبت به سایر الکترودها داشتند [۳۹].

#### تعیین شرایط بهینه در تولید الکتروشیمیایی کلر فعال

با توجه به نتایج، شرایط بهینه بهره برداری ارائه شده در مدل برای تولید کلر شامل زمان الکترولیز ۱۲۰ دقیقه، دانسیته جریان ۶۰ آمپر بر دسی متر مربع، غلظت کلرید سدیم ۱۸۷ گرم بر لیتر و نوع الکترو د

آند پلاتین/تیتانیوم و الکترو د کاند استیل ۳۱۶ است که مقدار کلر ۶۵/۹۵ گرم بر لیتر با درجه مطلوبیت ۰/۹۷ به دست آمد. شرایط بهینه بهره برداری ارائه شده برای حصول بهترین راندمان تولید کلر فعال نشان داد مدل BBD همراه با توابع مطلوبیت به طور قابل ملاحظه ای برای بهینه سازی طراحی آزمایش ها در تولید کلر فعال در فرایند الکتروشیمیایی با این الکترودها استفاده می شود. این در حالی است که در مقالات مشابه با الکترو د روتنیوم پوشانده شده بر تیتانیوم در شرایط سطح ۲۴ سانتی متر مربع، فاصله الکترو د ۰/۵ سانتی متر، دانسیته جریان ۳۵ آمپر بر دسی متر مربع، غلظت نمک طعام ۳ مولار و زمان ۲ ساعت مقدار کلر فعال ۶۵/۶۷ گرم بر لیتر به دست آمد [۱۲]. البته در بعضی تحقیقات با الکترو د الماس پوشانده شده بر بور (BBD) شرایط بهینه برای تولید کلر فعال اسیدی گزارش شد و در شرایط قلیایی شرایط به سمت تولید رادیکال های هیدروکسیل پیش می رود [۴۰].

با توجه به نتایج به دست آمده این روش می تواند به عنوان روشی مؤثر برای تولید کلر به منظور گندزدایی آب و پساب در تصفیه خانه ها استفاده شود و در صورت جایگزینی با سیستم های کلر زنی گازی، مشکلات خطرناک نشت گاز یا خطر انفجار کپسول های گاز کلر نیز مرتفع می شود.

#### قدردانی

این تحقیق در قالب طرح پژوهشی با عنوان «بررسی عوامل مؤثر بر کارایی الکتروکلریناسیون با الکترودهای مختلف در تولید کلر جهت گندزدایی آب» با کد ۹۴۰۶۰۳۱۳۱ مصوب معاونت تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی گلستان و کد اخلاق IR.GOUMS.۱۳۹۴.۱۵۷ انجام شده است. نویسندگان از همکاری و حمایت آن معاونت کمال تشکر و قدردانی را دارند.

## References

1. Delnavaz M, Ayati B, Ganjidoust H. Reaction Kinetics of aniline synthetic wastewater treatment by moving bed biofilm reactor. *IJHE* 2009; 2(1): 76-87 (Persian).
2. WHO. Water, Sanitation and hygiene links to health, facts and figures—updated November 2004. Geneva: WHO; 2004.
3. Mthombeni NH, Mpenyana-Monyatsi L, Onyango MS, Momba MN. Breakthrough analysis for water disinfection using silver nanoparticles coated resin beads in fixed-bed column. *J Hazard Mater* 2012; 217: 133-40.
4. Hou Y, Chu W, Ma M. Carbonaceous and nitrogenous disinfection by-product formation in the surface and ground water treatment plants using Yellow River as water source. *J Environ Sci* 2012; 24(7): 1204-9.
5. Tchobanoglous G, Burton F, Stensel HD. Wastewater engineering: treatment and reuse. *J Am Water Work Assoc* 2003; 95(5): 201.
6. Xia H, Cui B, Zhou J, Zhang L, Zhang J, Guo X, et al. Synthesis and characterization of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/C Ag nanocomposites and their antibacterial performance. *Appl Surf Sci* 2011; 257(22): 9397-402.
7. Aymonier C, Schlotterbeck U, Antonietti L, Zacharias P, Thomann R, Tiller JC, et al. Hybrids of silver nanoparticles with amphiphilic hyperbranched macromolecules exhibiting antimicrobial properties. *Chem Comm* 2002; 24: 3018-9.
8. Shahamat YD, Kalantary RR, Zazouli MA, Bakhshi A, Zeynalzadeh D. Disinfection of effluent using catalytic ozonation process and economical comparison with chlorination. *J Maz Univ Med* 2016; 26(140): 103-14 (Persian).
9. Rasmi K, Vanithakumari S, George R, Mallika C, Mudali UK. Development and performance evaluation of nano platinum coated titanium electrode for application in nitric acid medium. *Mater Chem Phys* 2015; 151: 133-9.
10. Pulido ME. Evaluation of an electro-disinfection technology as an alternative to chlorination of municipal wastewater effluents. University of New Orleans; 2005.
11. Ghernaout D, Naceur MW, Aouabed A. On the dependence of chlorine by-products generated species formation of the electrode material and applied charge during electrochemical water treatment. *Desalination* 2011; 270(1-3): 9-22.
12. Khelifa A, Moulay S, Hannane F, Benslimene S, Hecini M. Application of an experimental design method to study the performance of electrochlorination cells. *Desalination* 2004; 160(1): 91-8.
13. Drees KP, Abbaszadegan M, Maier RM. Comparative electrochemical inactivation of bacteria and bacteriophage. *Water Res* 2003; 37(10): 2291-300.
14. Allen M, Soike K. Sterilization by electrohydraulic treatment. *Science* 1966; 154(3745): 155-7.
15. Matsunaga T, Nakasono S, Kitajima Y, Horiguchi K. Electrochemical disinfection of bacteria in drinking water using activated carbon fibers. *Biotechnol Bioeng* 1994; 43(5): 429-33.
16. Bradford WL. The differences between on-site generated mixed-oxidant solution and sodium hypochlorite Albuquerque. USA: MIOX Corporation; 2011.
17. Li X, Diao H, Fan F, Gu J, Ding F, Tong A. Electrochemical wastewater disinfection: Identification of its principal germicidal actions. *Environ Eng* 2004; 130(10): 1217-21.
18. Li M, Feng C, Hu W, Zhang Z, Sugiura N. Electrochemical degradation of phenol using electrodes of Ti/RuO<sub>2</sub>-Pt and Ti/IrO<sub>2</sub>-Pt. *J Hazard Mater* 2009; 162(1): 455-62.
19. Lin H, Ji X, Chen Q, Zhou Y, Banks CE, Wu K. Mesoporous-TiO<sub>2</sub> nanoparticles based carbon paste electrodes exhibit enhanced electrochemical sensitivity for phenols. *Electrochem Commun* 2009; 11(10): 1990-5.
20. Lipp L, Pletcher D. The preparation and characterization of tin dioxide coated titanium electrodes. *Electrochim Acta* 1997; 42(7): 1091-9.
21. Corporation BV. White's handbook of chlorination and alternative disinfectants. Wiley; 2010.
22. Choi Y, Byun SH, Jang HJ, Kim SE, Choi YJ. Comparison of disinfectants for drinking water: chlorine gas vs. on-site generated chlorine. *Environ Eng Res* 2022; 27(1): 1-10.
23. Badruzzaman M, Oppenheimer J, Adham S, Kumar M. Innovative beneficial reuse of reverse osmosis concentrate using bipolar membrane electrodialysis and electrochlorination processes. *J Membr Sci* 2009; 326(2): 392-9.
24. Rasmi KR, Vanithakumari SC, George RP, Kamachi Mudali U. Synthesis and characterization of nano-structured platinum coated titanium as electrode material. *J Mater Eng Perform* 2014; 23(5): 1673-9.

25. Zambrano J, Park H, Min B. Enhancing electrochemical degradation of phenol at optimum pH condition with a Pt/Ti anode electrode. *Environ Technol* 2020; 41(24): 3248-59.
26. Eaton AD, Franson MAH, Association AWW, Federation WE. Standard methods for the examination of water & wastewater. DC: American Public Health Association; 2005.
27. Tripathi P, Srivastava VC, Kumar A. Optimization of an azo dye batch adsorption parameters using Box-Behnken design. *Desalination* 2009; 249(3): 1273-9.
28. Ferreira SC, Bruns RE, Ferreira HS, Matos GD, David JM, Brandão GC, et al. Box-Behnken design: An alternative for the optimization of analytical methods. *Analytica Chimica Acta* 2007; 597(2): 179-86.
29. Myers R, Montgomery D, Anderson-Cook C. Response surface methodology: process and product optimization using designed experiments. New Jersey: John Wiley & Sons; 2009.
30. Sadeghi-Kiakhani M, Arami M, Gharanjig K. Application of chitosan-dendrimer PPI Hybrid in direct dyes removal: optimization by RSM, Kinetic and Isotherm studies. *JCST* 2013; 6(4): 355-68.
31. Abou Oualid H, Abdellaoui Y, Laabd M, El Ouardi M, Brahmi Y, Iazza M, et al. Eco-efficient green seaweed codium decorticatum biosorbent for textile dyes: characterization, mechanism, recyclability, and RSM optimization. *ACS Omega* 2020; 5(35): 22192-207.
32. Nanseu-Njiki CP, Tchamango SR, Ngom PC, Darchen A, Ngameni E. Mercury (II) removal from water by electrocoagulation using aluminium and iron electrodes. *J Hazard Mater* 2009; 168(2): 1430-6.
33. Moosavirad SM, Hasanzadeh-Sablouei A. Removal of cadmium from the leaching solution using electrocoagulation. *EWE* 2020; 6(4): 415-29.
34. Choi J, Shim S, Yoon J. Design and operating parameters affecting an electrochlorination system. *J Ind Eng Chem* 2013; 19(1): 215-9.
35. López-Maldonado JT, Rivera FF, Castañeda-Zaldívar F. Numerical and experimental evaluation of the general performance in a modular electrochemical reactor and its feasibility for electro-chlorination purposes: Effect of the different electrode assembly configurations. *Chem Eng Res Des* 2022; 177: 45-55.
36. Un UT, Altay U, Koparal AS, Ogutveren UB. Complete treatment of olive mill wastewaters by electro-oxidation. *J Chem Eng* 2008; 139(3): 445-52.
37. Moosavirad SM, Hasanzadeh-Sablouei A. Removal of arsenic from pregnant leaching solution using electrochemical coagulation method. *JoMME* 2021; 32(2): 95-114.
38. Rajeshwar K, Ibanez JG. Environmental electrochemistry: Fundamentals and applications in pollution sensors and abatement. Elsevier; 1997.
39. Ukundimana Z, Omwene PI, Gengec ER, Can OT, Kobya M. Electrooxidation as post treatment of ultrafiltration effluent in a landfill leachate MBR treatment plant: Effects of BDD, Pt and DSA anode types. *Electrochim Acta* 2018; 286: 252-63.
40. Mostafa E, Reinsberg P, Garcia-Segura S, Baltruschat H. Chlorine species evolution during electrochlorination on boron-doped diamond anodes: In-situ electrogeneration of Cl<sub>2</sub>, Cl<sub>2</sub>O and ClO<sub>2</sub>. *Electrochimica Acta* 2018; 281: 831-40.