

Journal of Water and Wastewater, Vol. 31, No.7, pp: 50-62

Carbon and Nutrients Removal from Industrial Wastewater Using Aerobic Granular Sludge

A. Asadi¹, S. Naraki²

1. Assist. Prof., Dept. of Applied Chemistry, Faculty of Gas and Petroleum, Yasouj University, Gachsaran, Iran
(Corresponding Author) a.asadi@yu.ac.ir
2. Undergraduate Student, Dept. of Applied Chemistry, Faculty of Gas and Petroleum, Yasouj University, Gachsaran, Iran

(Received Feb. 5, 2020 Accepted June 2, 2020)

To cite this article:

Asadi, A., Naraki, S. 2021. "Carbon and nutrients removal from industrial wastewater using aerobic granular sludge" Journal of Water and Wastewater, 31(7), 50-62. Doi: 10.22093/wwj.2020.218742.2986. (In Persian)

Abstract

Considering the increasing rigor of environmental laws, the removal of carbon and nutrients from wastewater is a key aspect of research, and the simultaneous elimination of carbon and nutrients in a bioreactor has a significant impact on reducing reactor volume and energy consumption. The objective of this study was evaluating the performance of an aerobic sequencing batch reactor (SBR) with granulated sludge removing carbon and nutrient (N & P) from an industrial wastewater. Aerobic granules were obtained in a SBR and in the next step, the experiments were designed by a central composite design (CCD) with five levels of biomass concentration (2000-7000 mg/l) and aeration time (6-24 h). Eight dependent parameters as the process responses were measured and calculated. The results showed that the maximum value of total COD (TCOD) removal was obtained to be 69.07% at mixed liquor volatile suspended solid (MLVSS) concentration of 5600 mg/L and the highest value of the aeration time (24 h). In addition, the low TN removal (47.5%) directed the study to reduce the oxygen level from 7 to 3 mg/L. A reduction in dissolved oxygen (DO) in extended aeration mode led to an increase in TN removal and a decrease in TCOD, nbCOD, and BOD removal. Overall, granular sludge showed an acceptable performance in terms of carbon removal, however, intermittent aeration could improve nutrients removal from wastewaters.

Keywords: Simultaneous Carbon and Nutrients Removal, Aerobic Granular Sludge, SBR, Industrial Wastewater.



مجله آب و فاضلاب، دوره 31، شماره 7، صفحه: 50-62

حذف کربن و مواد مغذی از فاضلاب صنعتی با استفاده از لجن گرانونلی هوازی

آذر اسدی^۱، صادق نارکی^۲

۱- استادیار، گروه شیمی کاربردی، دانشکده نفت و گاز گچساران،

دانشگاه یاسوج، گچساران، ایران

(نویسنده مسئول) a.asadi@yu.ac.ir

۲- دانشجوی کارشناسی، گروه شیمی کاربردی، دانشکده نفت و گاز گچساران،

دانشگاه یاسوج، گچساران، ایران

پذیرش ۹۹/۳/۱۳

(دریافت ۹۸/۱۱/۱۶)

برای ارجاع به این مقاله به صورت زیر اقدام بفرمایید:

اسدی، آ.، نارکی، ص.، ۱۳۹۹. "حذف کربن و مواد مغذی از فاضلاب صنعتی با استفاده از لجن گرانونلی هوازی" مجله آب و فاضلاب،

Doi: 10.22093/wwj.2020.218742.2986 ۵-۶۲، (۷)۳۱

چکیده

با توجه به افزایش سخت گیرهای قوانین محیط زیست حذف کربن و مواد مغذی از فاضلاب یک جنبه کلیدی و اصلی در پژوهش‌ها است که حذف هم‌زمان آنها در یک بیوراکتور تأثیر به‌سزایی در کم کردن حجم راکتور و مصرف انرژی دارد. در این پژوهش، عملکرد یک راکتور منقطع هوازی با لجن گرانونلی برای دفع کربن و مواد مغذی از فاضلاب صنعتی بررسی شد. این پژوهش با استفاده از دو متغیر مستقل مهم شامل زمان هوادهی و غلظت زیست توده انجام شد. گرانونل‌های هوازی در راکتور SBR به‌دست آمدند و در مرحله بعد آزمایش‌ها بر اساس طرح مرکب مرکزی با پنج سطح از غلظت زیست توده ۲۰۰۰ تا ۵۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر و زمان هوادهی ۶ تا ۲۴ ساعت انجام شد. هشت پارامتر به‌عنوان پاسخ فرایند اندازه‌گیری و محاسبه شد. نتایج نشان داد که حداکثر مقدار حذف کل کربن آلی در غلظت جامد معلق ۵۶۰۰ میلی‌گرم در لیتر و حداکثر زمان هوادهی ۲۴ ساعت، ۶۹/۰۷ درصد به‌دست آمد. حداکثر کارایی حذف نیترژن کل به مقدار ۴۷/۵ درصد به‌دست آمد که حذف کم نیترژن کل شرایط راهبری را به‌سمت کاهش سطح اکسیژن از ۷ به ۳ میلی‌گرم در لیتر سوق داد. کاهش اکسیژن محلول با حالت هوادهی طولانی منجر به افزایش حذف نیترژن کل و کاهش کارایی حذف COD، nbCOD و BOD شد. به‌صورت کلی لجن گرانونلی عملکرد نسبتاً خوبی برای حذف کربن نشان داد، اگرچه با هوادهی متناوب حذف مواد مغذی از فاضلاب می‌تواند ارتقا پیدا کند.

واژه‌های کلیدی: حذف هم‌زمان کربن و مواد مغذی، لجن گرانونلی هوازی، SBR، فاضلاب صنعتی

۱- مقدمه

صنعتی ناشی از شاخه‌های مختلف تولید شامل صنعت نساجی، دباغی و صنایع چرم در تعدادی از پژوهش‌ها بررسی شده است (Wang et al., 2004). یکی دیگر از مشکلات مرتبط با فاضلاب‌های صنعتی مقدار مواد مغذی آنها است که در طراحی

ایده‌های تصفیه فاضلاب با پیشرفت‌های صنعتی و تشدید جمعیت شهری، خاص‌تر و متنوع‌تر شده است. در فاضلاب‌های صنعتی مواد شیمیایی و واسطه‌هایی وجود دارند که ممکن است غیرقابل تجزیه و یا حتی برای آب و محیط زیست سمی باشند. ترکیب پساب‌های



یکنواخت‌ساز، هوادهی، انوکسیک و ته‌نشین در یک تانک است. کاربرد SBR به تدریج در طی سال‌ها برای فاضلاب‌های گوناگون پیشرفت کرد. حذف COD از فاضلاب کارخانه زغال‌سازی با استفاده از SBR با بستر متحرک رشد لجن بررسی شده است (Jing et al., 2009). مقدار ۹۲/۹ درصد حذف در این سیستم با بارگذاری‌های پایین مواد آلی $0/449 \text{ kg COD/m}^3$ به دست آمد که هنگامی که OLR^۵ به $62/2 \text{ kg COD/m}^3 \cdot \text{d}$ افزایش یافت، کارایی به ۷۰ درصد کاهش یافت.

یک SBR با بستر ثابت رشد لجن برای تصفیه فاضلاب سنتزی مشابه با فاضلاب خانگی در یک کار پژوهشی بررسی شد که دامنه حذف COD و TN^۶ به ترتیب بین مقدار ۹۰ تا ۹۶ درصد و ۶۰ تا ۸۰ درصد به دست آمد (Rahimi et al., 2011).

اسناچ و همکاران یک راکتور SBR ترکیب شده با فرایند غشایی را برای تصفیه یک فاضلاب صنعتی به کار بردند. در این سیستم، کارایی حذف COD بیش از ۹۰ درصد در مقدار OLR برابر با $2/5 \text{ kg/COD.m}^3 \cdot \text{d}$ به دست آمد (Sánchez et al., 2010).

یانگ و همکاران یک راکتور منقطع مرحله‌ای با بستر متحرک رشد لجن به همراه فرایند غشایی را در نسبت‌های مختلف COD/TN راهبری کردند. مقادیر متوسط حذف و نیتروژن آمونیاکی به ترتیب ۹۳/۵ درصد، ۸۲/۶ درصد و ۹۵/۶ درصد به دست آمد (Yang et al., 2010).

با این حال، حذف نیتروژن و فسفر یکپارچه در حوضچه‌های هوادهی منفرد می‌تواند با حضور مناطق هوازی در لجن فعال هوازی متراکم (گرانول) ایجاد شود. عملکرد لجن گرانولی در سیستم‌های SBR هوازی با لجن گرانولی برای تصفیه فاضلاب‌های سنتزی (Huang et al., 2015)، روغن نخل (Mahardika, 2014)، لبنی (De Kreuk and van Arrojo et al., 2004)، خانگی (Loosdrecht, 2006)، فراوری سویا (Su and Yu, 2005)، آجیو (Wang et al., 2007) و ساخت کاغذ (Hailei et al., 2006) و همچنین حذف مواد مغذی پژوهشی را انجام داده‌اند. (Lemaire et al., 2009, Mansouri et al., 2014, He et al., 2018)

فرایندهای تصفیه معمول مورد توجه قرار نمی‌گیرد. دفع نیتروژن و فسفر در منابع دریافت‌کننده طبیعی باعث رشد جلبک‌ها می‌شود و منجر به فرسایش دریاچه‌ها و نهرها می‌شود (Pishgar, 2019). بنابراین لازم است قبل از تخلیه، غلظت این مواد مغذی کاهش یابد تا از شکوفایی جلبک جلوگیری شود. نیتروژن، بیشتر در فاضلاب به‌عنوان آمونیوم موجود است و با فرایندهای فیزیکی‌شیمیایی و بیولوژیکی از بین می‌رود. تصفیه بیولوژیکی برای از بین بردن نیتروژن از فاضلاب نسبت به تصفیه فیزیکی‌شیمیایی، ارزان‌تر و مؤثر است و بنابراین بیشتر برای دستیابی به حذف نیتروژن از فاضلاب‌های صنعتی استفاده می‌شود (Pishgar, 2019). در فرایندهای حذف بیولوژیکی مواد مغذی بیولوژیکی^۱، حذف نیتروژن به ترتیب با استفاده از نیتروفیکاسیون هوازی و نیتروفیکاسیون آنوکسیک با استفاده از باکتری‌های شوره‌ساز و شوره‌زدا به دست می‌آید (Asadi et al., 2012).

همچنین، حذف فسفر در شرایط بی‌هوازی و هوازی با استفاده از میکروارگانیزم‌های تجمع پلی فسفات^۲ انجام می‌شود. در مرحله بی‌هوازی، میکروارگانیزم‌های مسئول، از بسترهای کربنی مانند اسید استیک و پروپیونیک اسید تغذیه کرده و متعاقباً پلی هیدروکسی بوتیرات^۳ را ذخیره می‌کنند. در شرایط هوازی، کربنی که قبلاً ذخیره شده می‌تواند برای رشد زیست توده و تشکیل پلی فسفات استفاده شود. در یک فرایند موفق، جذب فسفات هوازی، بیشتر از آزادسازی فسفات بی‌هوازی است که منجر به دستیابی به حذف خالص فسفات می‌شود (Asadi et al., 2016, Guo et al., 2013). شرایط متناوب هوادهی برای از بین بردن نیتروژن و فسفر به‌طور هم‌زمان با لجن فعال سنتی مورد نیاز است.

سیستم‌های SBR^۴ با تنظیم کردن مراحل در سیکل واکنش برای فراهم کردن فازهای هوازی و بی‌هوازی با تعداد و ترتیب مشخص به‌منظور حذف بیولوژیکی کربن، نیتروژن و فسفر، اصلاح شده‌اند (Yuan et al., 2016, Kim et al., 2008, Pan et al., 2013, Liu et al., 2017).

به‌طور کلی، SBR به تنهایی یک سیستم تصفیه شامل

¹ Biological Nitrogen Removal (BNR)

² Phosphorus Accumulating Organism (PAO)

³ Poly Hydroxy Butyrate (PHB)

⁴ Sequencing Batch Reactor (SBR)

⁵ Organic Loading Rate (OLR)

⁶ Total Nitrogen (TN)



۱۰ میلی‌گرم در لیتر. مرحله کشت به مدت ۴۰ روز به طول انجامید. شکل ۱ گرانول زیستی هوازی تشکیل شده در SBR را بعد از ۶۰ روز نشان می‌دهد. همچنین تصاویر SEM^۳ از گرانول‌های هوازی به دست آمده، در شکل ۲ نشان داده شده است.

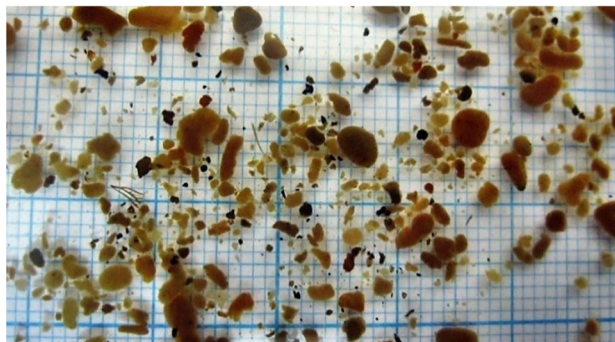


Fig. 1. Aerobic bio-granules after 60 days
شکل ۱- گرانول‌های هوازی بعد از ۶۰ روز

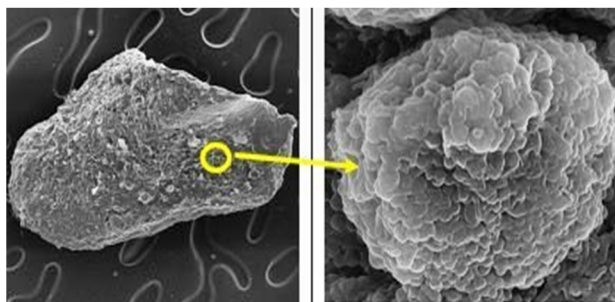


Fig. 2. SEM images of aerobic bio-granule after 60 days
شکل ۲- تصاویر SEM از گرانول‌های هوازی بعد از ۶۰ روز

۲-۲- فاضلاب شهرک صنعتی

فاضلاب، از تصفیه‌خانه فاضلاب شهرک صنعتی گرفته شد. نمونه‌ها در دمای سرد ۴ درجه سلسیوس نگهداری شدند. این روش ذخیره‌سازی هیچ تأثیر قابل توجهی در ترکیب آن نداشت. خصوصیات فاضلاب صنعتی در جدول ۱ نشان داده شده است. نسبت COD: N: P تقریباً ۲: ۱۵: ۱۰۰ بود.

۲-۳- پیکربندی و عملکرد راکتور زیستی

نمودار شماتیک سیستم SBR در شکل ۳ نشان داده شده است. این سیستم به صورت ستونی برای حجم کاری ۲ لیتر با قطر داخلی ۸/۵

در دهه گذشته، پژوهش‌های فشرده نشان داد که فناوری لجن گرانولی هوازی یک پیشرفت جدید و امیدوارکننده در زمینه تصفیه فاضلاب بیولوژیکی است (Gao et al., 2011).

در مقایسه با سیستم‌های لجن فعال معمولی، یک سیستم مبتنی بر لجن هوازی و گرانولی دارای چندین مزیت است. یک ویژگی برجسته توانایی تصفیه و سرعت هضم زیاد است. علاوه بر این، لجن گرانولی به دلیل محافظت توسط یک ماتریس از مواد پلیمری خارج سلولی^۱، زمان اقامت طولانی زیست توده، بی‌حرکتی زیست توده در داخل گرانول‌ها، تجمع زیستی، مقدار متابولیسم و پایداری زیاد و مقاومت در برابر شوک‌ها و سموم را فراهم می‌کند (Wilén et al., 2018, Hamza et al., 2018, Ab Halim et al., 2019).

این پژوهش با هدف ارزیابی عملکرد یک لجن گرانول هوازی در حذف کربن و مواد مغذی از پساب فاضلاب صنعتی انجام شد. در این پژوهش، علاوه بر تجزیه و تحلیل فرایند، از یک طراحی فاکتور کلی برای توصیف و مدل‌سازی روندهای تغییر در هشت پاسخ به عنوان تابعی از دو متغیر مستقل، زمان هوادهی و محتوای توده زیستی^۲ راکتور استفاده شد. در نهایت راه‌حل بهبود عملکرد سیستم نیز پیشنهاد و بررسی شد.

۲- مواد و روش‌ها

۲-۱- کشت گرانول

از یک راکتور ستونی با حجم کار ۲ لیتر برای کشت گرانول استفاده شد. راکتور با لجن فعال شده از یک تصفیه‌خانه فاضلاب صنعتی تلقیح شد. راکتور در ابتدا در سیکل ۴ ساعته با ۳۰ دقیقه زمان ته‌نشینی و ۲۱۰ دقیقه زمان هوادهی به کار گرفته شد. زمان ته‌نشینی در مرحله کشت گرانول به ۵ دقیقه کاهش یافت. در آغاز هر چرخه، مقدار مشخصی از فاضلاب مصنوعی حدود ۱/۵ لیتر، از بالای راکتور اضافه می‌شد و پساب در انتهای چرخه راکتور، تخلیه می‌شد که نسبت تبادل حجمی از ۵۵ درصد به ۷۷ درصد افزایش یافت. در طول کشت گرانول به منظور تقویت تشکیل گرانول، از فاضلاب مصنوعی استفاده شد. ترکیب فاضلاب مصنوعی استفاده شده در این مرحله، به این شرح بود: استات ۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر، شکر ۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر، $MgSO_4 \cdot 7H_2O$ ۲۰۰ میلی‌گرم در لیتر، $CaCl_2$

¹ Extracellular Polymeric Substances (EPS)

² Mixed Lique Volatile Suspended Solids (MLVSS)

³ Scanning Electron Microscope (SEM)



به شرایط آزمایش متغیر بود)، ته نشینی ۴۰ دقیقه و تخلیه ۱۰ دقیقه. در هر چرخه، حدود ۱/۵ لیتر از مایع رویی حذف می‌شد و همان حجم فاضلاب تازه تغذیه می‌شد. وضعیت بی‌هوازی با نظارت اکسیژن محلول به‌طور مداوم بررسی شد، به‌طوری که سطح اکسیژن محلول بعد از ۲۰ دقیقه در حدود صفر (حدود ۴۰ دقیقه در شرایط بی‌هوازی) باقی ماند. به‌منظور کنترل سطح اکسیژن در راکتور، از یک جریان هوا و یک شیر تنظیم جریان استفاده شد. هوادهی متناوب با نصب یک تایمر روی دمنده تأمین شد. این فرایند با ضریب ایمنی (زمان چرخه/زمان حفظ جامدات) بیشتر از ۴۰ انجام شد.

۴-۲- طراحی تجربی و مدل ریاضی

برای طراحی آماری آزمایش‌ها و تجزیه و تحلیل داده‌ها از نرم‌افزار Design Expert نسخه ۷ استفاده شد. زمان هوادهی و محتوای غلظت توده زیستی به‌عنوان دو عامل مؤثر مستقل در طراحی آزمایش انتخاب شدند. دامنه و سطح متغیرها در واحدهای کدگذاری شده و واقعی در جدول ۲ آمده است. دو عامل متغیر در پنج سطح، $-\alpha$ ، 0 ، $+\alpha$ در نظر گرفته شدند. برای این اساس، ۱۳ آزمایش با ۹ آزمایش سازمان‌دهی شده در یک طرح فاکتوریل شامل ۴ نقطه فاکتوریل، ۴ نقطه محوری و ۱ نقطه مرکز و ۴ مورد دیگر که شامل تکرار نقطه مرکزی انجام شد تا تخمین خوبی از ارقام آزمایشگاهی به‌دست آید. به‌منظور انجام یک تجزیه و تحلیل جامع از فرایند تصفیه، هشت پارامترها وابسته به‌عنوان پاسخ اندازه‌گیری یا محاسبه شدند. این پارامترها عبارت‌اند از: حذف T COD، حذف BOD، حذف nbCOD، حذف TN، حذف TP، کدورت نهایی، SVI و سرعت ته‌نشینی. شرایط آزمایش و نتایج به‌دست آمده در جدول ۳ نشان داده شده است. اصطلاحات مدل بر اساس مقدار P با سطح اطمینان ۹۵ درصد انتخاب یا رد شدند. نتایج با استفاده از تحلیل واریانس^۱ توسط نرم‌افزار Design Expert تجزیه و تحلیل شد.

۵-۲- روش‌های تحلیلی

غلظت COD، BOD، TKN، نترات، TN، فسفات، MLSS و SVI با استفاده از روش‌های استاندارد تعیین شد. کل نیتروژن کج‌دال با

¹ Analysis of Variance (ANOVA)

جدول ۱- ویژگی‌های فاضلاب صنعتی

Table 1. Characteristics of Faraman's industrial estate wastewater

Parameters	Amount	Unit
TCOD	945-1145	(mg/l)
SCOD	478-604	(mg/l)
PCOD	341-601	(mg/l)
BOD _U	388-460	(mg/l)
BOD ₅	170-180	(mg/l)
nbCOD	557-682	(mg/l)
TN	135-222	(mg/l)
TP	16-26	(mg/l)
TSS	120-360	(mg/l)
pH	5.5-7	-

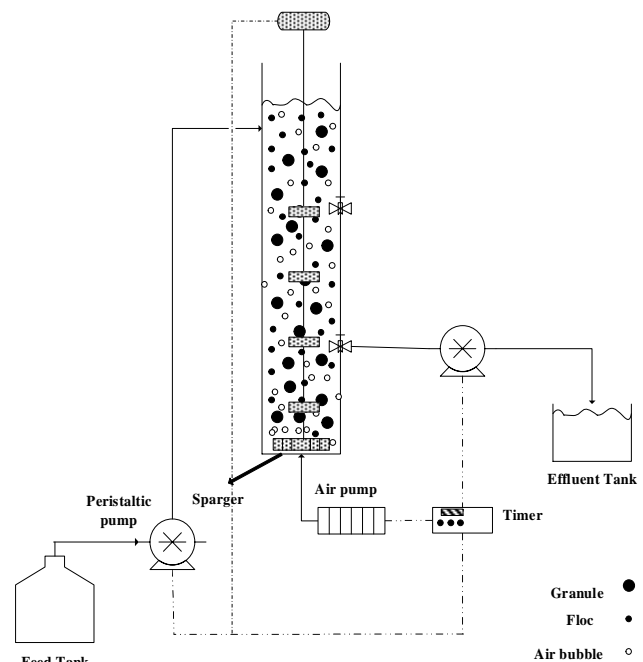


Fig. 3. Experimental setup

شکل ۳- ست‌آپ آزمایشگاهی

سانتی‌متر و ارتفاع کلی ۳۶ سانتی‌متر طراحی شد. هوا از طریق دمنده و یک پخش‌کننده حباب ریز، از پایین ستون به داخل راکتور وارد می‌شد. غلظت اکسیژن محلول در حدود ۷ میلی‌گرم در لیتر حفظ شد. استراتژی عملیاتی اعمال شده برای SBR به شرح زیر است: پر کردن ۱۰ دقیقه، مخلوط کردن بدون هوادهی، به‌منظور توسعه وضعیت بی‌هوازی ۴۰ دقیقه، مدت زمان هوادهی (بستگی



جدول ۲- دامنه آزمایشی و سطح متغیرهای مستقل

Table 2. Experimental range and levels of the independent variables

Variables	Range and levels				
	-1	-α	0	+α	+1
Aeration time, h	6	11	15	19	24
MLVSS, mg/l	2000	3400	4500	5600	7000

جدول ۳- شرایط و نتایج تجربی

Table 3. Experimental conditions and results

Run	Variables		Responses							
	Factor 1 A: MLVSS mg/l	Factor 2 B: Aeration time, h	TCOD removal, %	nbCOD removal, %	BOD removal, %	TP removal, %	TN removal, %	Effluent turb, NTU	SVI, ml/g	Settling velocity, m/h
1	2000	6	31.54	19.11	53.63	36.47	14.87	74.4	65	2.54
2	2000	24	52.66	36.83	80.55	44.16	20.99	50.6	65	2.34
3	3400	15	43.56	38.29	55.28	62.21	28.19	66	38	2.28
4	4500	11	53.53	37.57	71.52	61.82	26.04	51.4	41	1.7
5	4500	15	61.83	44.41	81.49	84.13	28.08	52.7	41	1.74
6	4500	19	75.19	79.14	68.46	91.94	34.04	55.4	43	1.32
7	5600	15	58.31	49.87	77.07	11.4	30.15	59.5	40	0.84
8	7000	6	52.66	28.08	91.11	2.38	45.44	17.5	48	0.43
9	7000	24	57.28	37.62	88.03	3.96	50.38	18.6	50	0.4
10	4500	15	64.14	62.97	65.31	80.1	35.38	53	43	1.68
11	4500	15	50.32	51.56	70.17	82.21	30.91	52.1	42	1.51
12	4500	15	62.98	60.35	84.65	81.47	33.69	50	40	1.95
13	4500	15	65.42	55.62	62.56	78.45	27.56	52.6	45	1.61

برای تعیین کمیت اثرات انحنای، معادلات چند جمله‌ای درجه بالاتر (i.e. تعامل دو عاملی (۲ FI)، درجه دوم) با داده‌های حاصل از نتایج تجربی متناسب شدند. در نرم افزار Design Expert، داده‌های پاسخ به صورت پیش فرض تجزیه و تحلیل شد، نتایج ANOVA برای کلیه پاسخ‌ها در جدول ۴ خلاصه شده است. الگوهای مدل انتخاب شده پس از حذف متغیرهای ناچیز و تعامل آنهاست. ضریب مربعات برای پاسخ به حافظه نهان به عنوان ضریب تعیین محاسبه شد. رگرسیون قابل توجهی در سطح اطمینان ۹۵ درصد نشان داد. کفایت مدل‌ها از طریق آزمون‌های F آزمایش شد که مناسب نبود (Montgomery, 2017). فقدان مناسب آماری F از نظر آماری معنی دار نبود زیرا مقدار P بیشتر از ۰/۰۵ بود (جدول ۴).

استفاده از مدل کل نیتروژن کج‌دال متر گرهارد^۱ تعیین شد. غلظت اکسیژن محلول در فاضلاب با استفاده از اکسیژن متر محلول مشخص شد. اکسیژن متر توسط WTW D0 Cell OX 330، electro DO کاوشگر، آلمان تهیه شد. اندازه‌گیری مقدار کدورت با استفاده از کدورت سنج مدل P۲۱۰۰^۲ انجام شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- تجزیه و تحلیل آماری

از آنجا که پاسخ‌های مختلفی در این پژوهش بررسی شد، از مدل‌های چند جمله‌ای مختلف برای متناسب‌سازی داده‌ها استفاده شد. معادلات رگرسیون به دست آمده در جدول ۴ ارائه شده است.

¹ Vapodest 10, Germany

² Hatch, USA



جدول ۴- نتایج ANOVA برای نرم افزار Design Expert 6.0.6 برای پاسخ های مطالعه شده

Table 4. ANOVA results for the equations of the Design Expert 6.0.6 for studied responses

Response	Modified equations with significant terms	Probability	R ²	Adjusted R ²	Adeq. precision	S.D	CV	Press	Probability for lack of fit
COD removal	$59.84 + 7.43 A + 8.13 B - 12.5 A^2$	<0.0326	0.6954	0.5431	7.759	7.41	13.32	7475.58	0.2558
TN removal	$30.52 + 14.31 A + 1.03 B + 1.65 A^2$	<0.0002	0.8704	0.8272	14.252	3.88	12.48	541.32	0.2099
TP removal	$68.30 - 22.21 A + 5.06 B - 49.20 A^2$	<0.0375	0.6878	0.5838	6.830	20.77	40.18	6222.41	0.5273
Effluent turbidity	$57.08 - 20.92 A - 16.84 B^2$	<0.0002	0.8196	0.7835	12.787	7.64	14.87	1448.95	0.2087

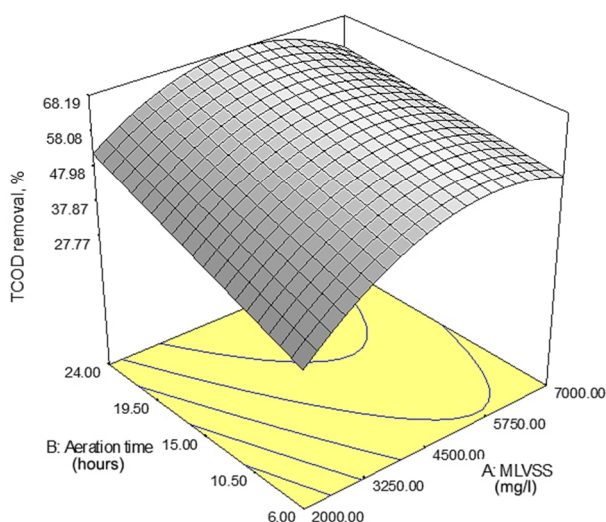


Fig. 4. Response surface plot for TCOD removal efficiency

شکل ۴- نمودار سه بعدی برای حذف کل کربن

کسر غیر تجزیه پذیر حدود ۵۰ درصد از محتوای COD پساب صنعتی استفاده شده بود.

۲-۲-۳- حذف BOD و nbCOD

مشکل اصلی مرتبط با تصفیه بیولوژیکی فاضلاب صنعتی، کسری غیر قابل تجزیه از COD، nbCOD است که مانع از عملکرد تصفیه بیوراکتورها می شود. به منظور بررسی عملکرد بیوراکتورها برای از

۲-۳- عملکرد فرایند

۱-۲-۳- حذف TCOD

به منظور بررسی تأثیر متغیرهای مورد بررسی بر کارایی حذف TCOD، وابستگی این پاسخ به متغیرها مورد تجزیه و تحلیل و مدل سازی شد. یک مدل درجه دوم کاهش برای توصیف تغییرات حذف TCOD به عنوان یک نتیجه از تغییرات در زمان هوادهی و محتوای غلظت توده زیستی تعیین شد. مقادیر ANOVA برای کارایی حذف TCOD در جدول ۴ نشان داده شده است. همان طور که در جدول نشان داده شده است A، B و A² ترم های مؤثر هستند. شکل ۴ تأثیر هم زمان محتوای غلظت توده زیستی و زمان هوادهی بر پاسخ را نشان می دهد. همان طور که در شکل مشاهده می شود، اثر قابل توجه افزایش غلظت توده زیستی از ۲۰۰۰ به ۵۶۰۰ میلی گرم در لیتر و تأثیر افزایش اندک از زمان هوادهی در پاسخ مشاهده شد که نشان دهنده مقدار کمتر غذا به میکروارگانیسمها (F/M) در مقدار بالاتر متغیرها است. در حالی که افزایش بیشتر غلظت توده زیستی >5600 میلی گرم در لیتر، مربوط به 0.11-0.17 F/M باعث کاهش حذف TCOD به دلیل تنفس درون زاشد (Jamshidi et al., 2019). حداکثر کارایی حذف TCOD ۶۹/۰۷ درصد است که در غلظت توده زیستی ۵۶۰۰ میلی گرم در لیتر و بیشترین مقدار زمان هوادهی ۲۴ ساعت به دست آمد. کارایی کم، به دلیل حضور ذرات نامحلول حدود ۲۵ درصد و



همان طور که در شکل ۶ مشاهده می‌شود، افزایش زمان هوادهی باعث افزایش کارایی حذف nbCOD شد. همچنین، کاهش اندکی در حذف BOD در حذف‌های nbCOD زیاد مشاهده شد که به مقدار مصرف کمتر BOD نسبت به نرخ تبدیل nbCOD به BCOD نسبت داده شده است.

۳-۲-۳- حذف نیتروژن

نیتروژن موجود در فاضلاب را می‌توان به صورت آمونیم از طریق نیتریفیکاسیون در شرایط هوازی و به دنبال آن با دنیتریفیکاسیون در شرایط آنوکسیک حذف کرد. از آنجا که هدف اصلی این پژوهش، بررسی مقدار حذف نیتروژن از فاضلاب بود، کارایی حذف کل نیتروژن به عنوان یک پاسخ در طول آزمایش‌ها تعیین شد. با توجه به جدول ۴، A، B و A² شرایط مدل قابل توجهی است.

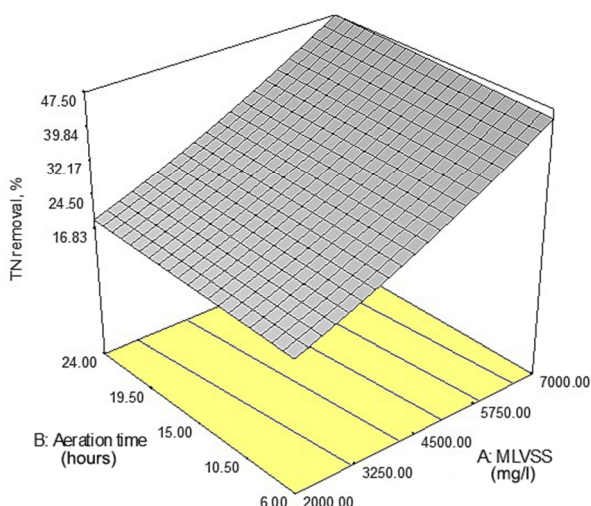


Fig. 6. Response surface plot for TN removal efficiency

شکل ۶- نمودار سه بعدی برای حذف نیتروژن

شکل ۶ اثر متقابل متغیرها بر پاسخ را نشان می‌دهد. همان طور که در شکل مشاهده می‌شود، حداکثر مقدار کارایی حذف کل نیتروژن برابر با ۴۷/۵ درصد است. فرض اولیه حذف کل نیتروژن بیشتر از مقدار به دست آمده در این پژوهش است. این کاهش عملکرد می‌تواند به دو دلیل باشد: ۱- اکسیژن محلول زیاد (تقریباً ۷ میلی‌گرم در لیتر) و ۲- اندازه کوچک گرانول‌های تشکیل شده (>۰/۵ میلی‌متر). پژوهش‌های قبلی ثابت کرد که کارایی حذف کل نیتروژن به شدت به قطر گرانول بستگی دارد (De Kreuk et al.,

بین بردن nbCOD، غلظت BOD و nbCOD در در طول آزمایش‌ها بررسی شد. نسبت BOD/COD پارامتر مناسبی از تجزیه‌پذیری فاضلاب است و آلاینده‌ها با نسبت $BOD_5/COD > 0.4$ به طور کلی به عنوان تجزیه‌پذیر پذیرفته می‌شوند. نسبت BOD₅/COD برای فاضلاب‌های صنعتی و شهری از ۰/۱۷ تا ۰/۷۴ متغیر است، این نسبت برای فاضلاب شهرک صنعتی در محدوده ۰/۳۱-۰/۵ بود.

شکل ۵ نشان‌دهنده BOD و کارایی حذف nbCOD در شرایط مختلف است. شکل مطابق با شماره آزمایش‌ها مطابق جدول ۳ رسم شده است. به طور کلی، لجن گرانولی با از بین بردن ۲۰ تا ۸۰ درصد از nbCOD کارایی زیادی را نشان داد که می‌تواند به دلیل ارتباط بین گونه‌های مختلف در تجمع میکروبی در فرم گرانولی باشد که منجر به تجزیه بیشتر nbCOD می‌شود (Sharma et al., 2019). حداکثر کارایی حذف nbCOD معادل ۸۰ درصد در شرایطی با MLVSS و زمان هوادهی به ترتیب ۴۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر و ۱۹ ساعت (شکل ۶) به دست آمد. کارایی کمتر به دست آمده در غلظت‌های MLVSS بیشتر از ۵۶۰۰ و ۷۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر ممکن است به دلیل مصرف مواد پلیمری خارج سلولی در سیستم لجن گرانولی باشد که بیشتر با لجن لخته شده مقایسه شده است (Sheng et al., 2010). این امر منجر به تخریب کمتر nbCOD در گرانول‌ها شد. در حالی که، در غلظت‌های MLVSS کم و معادل ۲۰۰۰ و ۳۴۰۰ میلی‌گرم در لیتر، نسبت زیاد F/M در حدود ۰/۴ COD/gVSS نیز باعث کاهش در پاسخ شد.

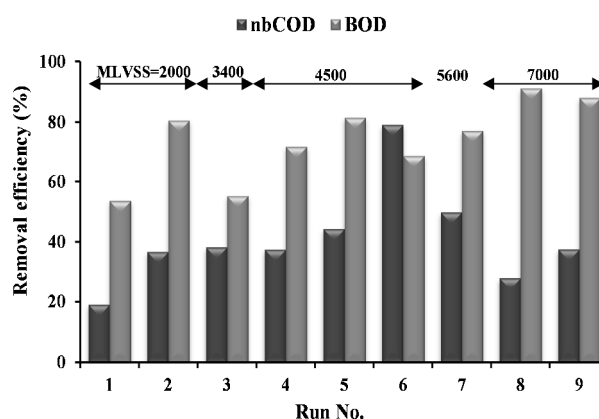


Fig. 5. Removal efficiency of BOD and nbCOD at different operational conditions studied

شکل ۵- کارایی حذف BOD و nbCOD در شرایط راهبری متفاوت



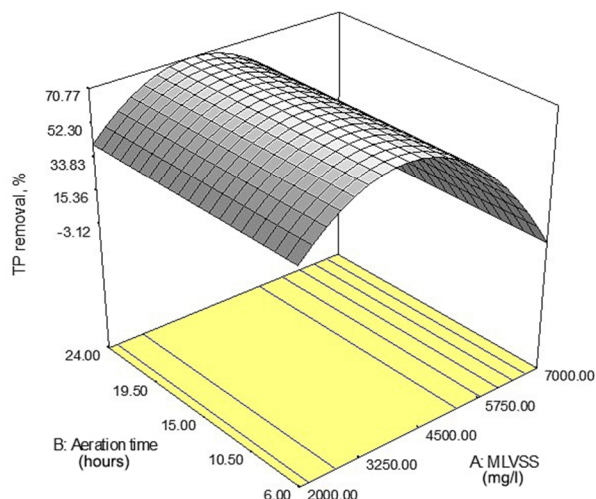


Fig. 7. Response surface plot for TP removal efficiency
شکل ۷- نمودار سه بعدی برای حذف فسفر

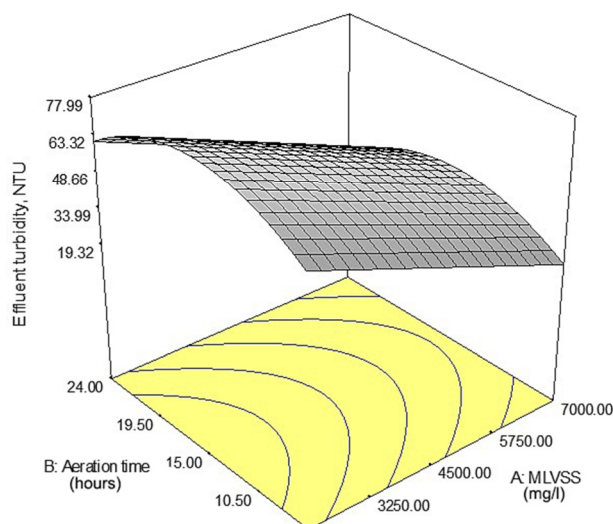


Fig. 8. Response surface plot for effluent turbidity
شکل ۸- نمودار سه بعدی برای کدورت خروجی

معنی داری در پاسخ نشان نداد. اثر جزئی افزایش زمان هوادهی در محدوده ۶ تا ۱۵ ساعت بر پاسخ می تواند به کاهش نسبت F/M مربوط شود که رشد میکروارگانیسم های رشته ای را تحریک می کند. یافته های مشابه در پژوهش های دیگر گزارش شده است (Fang et al., 2009).

با توجه به شکل، با افزایش MLVSS، کدورت کاهش یافته است. در نتیجه، عملکرد لجن گرانونی در حذف مواد جامد معلق در MLVSS زیاد چندان کارآمد نبوده است.

(2005) مشاهده شد که لجن گرانونی تحت تأثیر فاضلاب صنعتی قرار دارد، به طوری که گرانون ها به تدریج از هم گسیخته می شوند در حالی که در سیستمی که توسط فاضلاب مصنوعی استات و فروکتوز تغذیه می شود، رشد گرانون ها قابل توجه بود. شکل ۶، افزایش حذف نیتروژن در نتیجه افزایش غلظت MLVSS را نشان می دهد که به دلیل ایجاد منطقه آنوکسیک در داخل گرانون ها ناشی از محدودیت در انتقال اکسیژن است (Bathe et al., 2005).

۳-۲-۴- حذف فسفر

یک مدل درجه دوم اصلاح شده تغییرات حذف فسفر را به عنوان تابعی از متغیرها توصیف می کند. از نتایج واریانس ارائه شده در جدول ۴، A، B و A² ترم های مؤثر مدل هستند.

شکل ۷، پاسخ را در مقابل متغیرهای مورد بررسی نشان می دهد. در شکل، با افزایش MLVSS از ۲۰۰۰ به ۴۵۰۰ میلی گرم در لیتر، کارایی حذف کل فسفر به ۷۷/۷ درصد افزایش یافته است. افزایش بیشتر در MLVSS منجر به کاهش حذف کل فسفر شد، به نظر می رسد بارگذاری پایین BOD باعث کاهش حذف کل فسفر شده است (Matinfar et al., 2019). همان طور که در شکل ۷ مشاهده می شود، زمان هوادهی تقریباً هیچ تأثیری بر پاسخ نداشت که بیان کننده این موضوع است که ۶ ساعت زمان ساکن شدن برای رسیدن به کارایی احتمالی حذف کل فسفر کافی بوده است. لجن گرانونی به دلیل توانایی آن در تجمع PHB در شرایط بی هوازی می تواند به حذف کل فسفر بیشتر در یک مدت زمان طولانی تر برسد (با در نظر گرفتن یک دوره ۵۰ دقیقه هوازی نشده در آغاز فرایند). لازم به ذکر است که کارایی زیاد نسبی به دست آمده برای حذف کل فسفر، معادل ۷۷/۷ درصد می تواند به غلظت اولیه کم فسفر که حدود ۲۰ میلی گرم در لیتر بود نسبت داده شود.

۳-۲-۵- کدورت خروجی

کدورت به عنوان یک پارامتر کنترل فرایند، عملکرد سیستم و همچنین خصوصیات لجن در نظر گرفته می شود. با توجه به مدل درجه دوم اصلاح شده که در جدول ۴ ارائه شده، غلظت MLVSS مهم ترین متغیر است. تأثیر متغیرها بر پاسخ در شکل ۸ نشان داده شده است. همان طور که در شکل بیان شد، زمان هوادهی تأثیر



محلول است (Wan et al., 2009). در مرحله دوم، هوادهی متناوب اعمال شده ۴۰ دقیقه در ساعت، منجر به کاهش nbCOD، TCOD، حذف کل فسفر، کدورت پساب و SVI و افزایش BOD و حذف کل نیتروژن شد (شکل ۹). در نتیجه، با بهینه‌سازی شرایط بهره‌برداری مانند زمان چرخه و زمان هوادهی تحت هوادهی متناوب، می‌توان عملکرد فرایند حذف کربن و مواد مغذی از فاضلاب را بهبود بخشید.

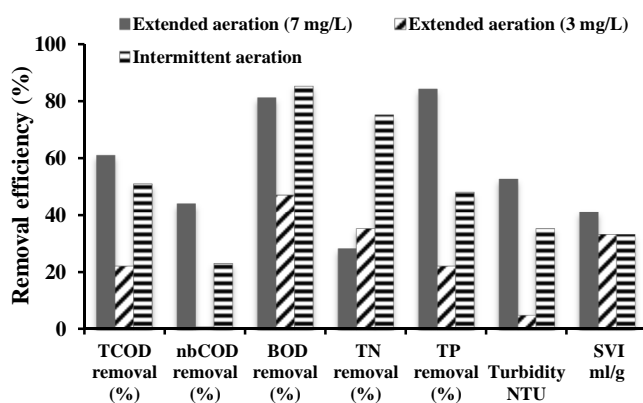


Fig. 9. The performance of the system at different aeration strategies

شکل ۹- عملکرد سیستم در شرایط هوادهی مختلف

۴- نتیجه‌گیری

این پژوهش عملکرد SBR با لجن گرانول را در تصفیه بیولوژیکی فاضلاب صنعتی با دو عامل مختلف غلظت MLVSS و زمان هوادهی ارزیابی کرد. نتایج نشان داد که در غلظت MLVSS ۵۶۰۰ میلی‌گرم در لیتر و بیشترین مقدار زمان ۲۴ ساعت، حداکثر کارایی حذف T COD به ۶۹/۰۷ درصد بدست آمد. حداکثر مقدار کارایی حذف کل نیتروژن ۴۷/۵ درصد بود. غلظت MLVSS مهم‌ترین متغیر در کاهش کدورت پساب در سیستم بهره‌وری حذف کل نیتروژن را نشان داد. کاهش سطح اکسیژن باعث بهبود عملکرد سیستم برای حذف نیتروژن شد. به صورت کلی با هوادهی متناوب حذف هم‌زمان کربن و مواد مغذی از فاضلاب می‌تواند بهبود یابد.

۵- قدردانی

نویسندگان این پژوهش از حمایت‌های دانشگاه یاسوج و دانشگاه رازی کرمانشاه تشکر می‌کنند. همچنین از سرکار خانم سهیلا رضایی بابت همکاری دلسوزانه ایشان قدردانی می‌شود.

۳-۲-۶- ویژگی‌های لجن

مدیریت لجن از جمله دغدغه‌های تصفیه‌خانه‌های فاضلاب است. در بیوراکتور SBR نیازی به تانک ته‌نشینی نیست از این رو خواص ته‌نشینی لجن در این بیوراکتور مهم است و سرعت ته‌نشینی به‌عنوان شاخص‌های ته‌نشینی لجن بررسی شدند. با توجه به جدول ۳ دامنه تغییرات SVI بین ۳۸ تا ۶۵ میلی‌لیتر بر گرم بود که بیانگر به‌دست آوردن جمعیت گرانولی مناسب است. همچنین سرعت ته‌نشینی بین مقدار ۰/۴ تا ۲/۵۴ متر بر ساعت متغیر است. با توجه به مقدار ته‌نشینی با افزایش غلظت توده زیستی سرعت ته‌نشینی کاهش یافته است به طوری که بیشترین سرعت ته‌نشینی در غلظت توده زیستی ۲۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر گزارش شد.

۳-۳- بهبود استراتژی برای عملکرد فرایند

به‌منظور بهبود عملکرد فرایند از نظر حذف مواد مغذی و همچنین به حداقل رساندن مصرف انرژی، دو راه‌حل شامل کاهش سرعت هوادهی و استفاده از هوادهی متناوب پیشنهاد شده است. بنابراین، آزمایش‌های اضافی انجام شد. در این بخش، لجن گرانول در MLVSS و زمان هوادهی به ترتیب ۴۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر و ۱۵ ساعت با استراتژی‌های هوادهی مختلف مانند هوادهی طولانی با اکسیژن محلول تقریباً ۳ میلی‌گرم در لیتر و هوادهی متناوب با زمان ساکن ۴۰ دقیقه در ساعت، بررسی شد. به‌منظور تجزیه و تحلیل عملکرد فرایند سیستم، هفت پارامتر فرایند و کیفیت اندازه‌گیری و محاسبه شدند که در شکل ۹ نشان داده شده است. کاهش در سطح اکسیژن از ۷ به ۳ میلی‌گرم در لیتر با حالت هوادهی طولانی منجر به کاهش حذف TCOD، nbCOD و BOD شد که به دلیل پتانسیل اکسیداسیون کمتر در مقایسه با بیماری با ۷ میلی‌گرم در لیتر بود. شرایط راهبری با ۳ میلی‌گرم در لیتر اکسیژن باعث افزایش حذف کل نیتروژن به دلیل توسعه ناحیه آنوکسیک در گرانول‌ها شد.

از آنجا که مقدار جذب فسفات به غلظت اکسیژن محلول در لجن گرانول بستگی دارد (تهیه یک منطقه آنوکسیک به جای منطقه هوازی در غلظت کم اکسیژن محلول)، حذف کل فسفر از ۸۴ درصد به‌دست آمده در اکسیژن محلول ۷ میلی‌گرم در لیتر به ۲۳ درصد کاهش یافت. کدورت پساب و SVI در غلظت کم اکسیژن به‌طور قابل توجهی بهبود یافته است که به دلیل شرایط مطلوب‌تر از نظر تنش هوادهی نسبت به غلظت زیاد اکسیژن



References

- Ab Halim, M. H., Anuar, A. N., Chelliapan, S., Wahab, N. A., Basri, H. F., Ujang, Z., et al. 2019. Development of aerobic granules in sequencing batch reactor system for treating high temperature domestic wastewater. *Jurnal Teknologi*, 81. (Science and Engineering), 81(3), 57-66.
- Arrojo, B., Mosquera-Corral, A., Garrido, J. M. & Méndez, R. 2004. Aerobic granulation with industrial wastewater in sequencing batch reactors. *Water Research*, 38, 3389-3399.
- Asadi, A., Zinatizadeh, A. & Sumathi, S. 2012. Simultaneous removal of carbon and nutrients from an industrial estate wastewater in a single up-flow aerobic/anoxic sludge bed (UAASB) bioreactor. *Water Research*, 46, 4587-4598.
- Asadi, A., Zinatizadeh, A. A. & Van Loosdrecht, M. 2016. A novel continuous feed and intermittent discharge airlift bioreactor (CFIDAB) for enhanced simultaneous removal of carbon and nutrients from soft drink industrial wastewater. *Chemical Engineering Journal*, 292, 13-27.
- Bathe, S., De Kreuk, M. K., Mcswain, B. & Schwarzenbeck, N. 2005. *Aerobic granular sludge*, IWA Publishing.
- De Kreuk, M. K., Heijnen, J. & Van Loosdrecht, M. 2005. Simultaneous COD, nitrogen, and phosphate removal by aerobic granular sludge. *Biotechnology and Bioengineering*, 90, 761-769.
- De Kreuk, M. K. & Van Loosdrecht, M. C. 2006. Formation of aerobic granules with domestic sewage. *Journal of Environmental Engineering*, 132, 694-697.
- Fang, F., Liu, X. W., Xu, J., Yu, H. Q. & Li, Y. M. 2009. Formation of aerobic granules and their PHB production at various substrate and ammonium concentrations. *Bioresource Technology*, 100, 59-63.
- Gao, D., Liu, L., Liang, H. & Wu, W. M. 2011. Aerobic granular sludge: characterization, mechanism of granulation and application to wastewater treatment. *Critical Reviews in Biotechnology*, 31, 137-152.
- Guo, H., Chen, J., Li, Y., Feng, T. & Zhang, S. 2013. Nitrogen and phosphorus removal in an airlift intermittent circulation membrane bioreactor. *Journal of Environmental Sciences*, 25, S146-S150.
- Hailei, W., Guangli, Y., Guosheng, L. & Feng, P. 2006. A new way to cultivate aerobic granules in the process of papermaking wastewater treatment. *Biochemical Engineering Journal*, 28, 99-103.
- Hamza, R. A., Iorhemen, O. T., Zaghoul, M. S. & Tay, J. H. 2018. Rapid formation and characterization of aerobic granules in pilot-scale sequential batch reactor for high-strength organic wastewater treatment. *Journal of Water Process Engineering*, 22, 27-33.
- He, Q., Song, Q., Zhang, S., Zhang, W. & Wang, H. 2018. Simultaneous nitrification, denitrification and phosphorus removal in an aerobic granular sequencing batch reactor with mixed carbon sources: reactor performance, extracellular polymeric substances and microbial successions. *Chemical Engineering Journal*, 331, 841-849.
- Huang, W., Li, B., Zhang, C., Zhang, Z., Lei, Z., Lu, B., et al. 2015. Effect of algae growth on aerobic granulation and nutrients removal from synthetic wastewater by using sequencing batch reactors. *Bioresource Technology*, 179, 187-192.



- Jamshidi, M., Zinatizadeh, A., Rezaee, S. & Asadi, A. 2019. Process performance of a granular single bioreactor with continuous feeding and intermittent discharge regime treating dairy wastewater. *International Journal of Engineering*, 32, 10-17.
- Jing, J., Feng, J., Li, W. & Xu, Y. 2009. Removal of COD from coking-plant wastewater in the moving-bed biofilm sequencing batch reactor. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 26, 564-568.
- Kim, D. S., Jung, N. S. & Park, Y. S. 2008. Characteristics of nitrogen and phosphorus removal in SBR and SBBR with different ammonium loading rates. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 25, 793-800.
- Lemaire, R., Yuan, Z., Bernet, N., Marcos, M., Yilmaz, G. & Keller, J. 2009. A sequencing batch reactor system for high-level biological nitrogen and phosphorus removal from abattoir wastewater. *Biodegradation*, 20, 339-350.
- Liu, J., Yuan, Y., Li, B., Zhang, Q., Wu, L., Li, X., et al. 2017. Enhanced nitrogen and phosphorus removal from municipal wastewater in an anaerobic-aerobic-anoxic sequencing batch reactor with sludge fermentation products as carbon source. *Bioresource Technology*, 244, 1158-1165.
- Mahardika, D. P. 2014. Aerobic Granulation with Industrial Wastewater in Sequencing Batch Reactors. PhD Thesis, Universiti Teknologi Malaysia.
- Mansouri, A. M., Zinatizadeh, A. A., Irandoust, M. & Akhbari, A. 2014. Statistical analysis and optimization of simultaneous biological nutrients removal process in an intermittently aerated SBR. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 31, 88-97.
- Matinfar, A., Mohammadi, M., Najafpour, G. D. & Younesi, H. 2019. Ammonia and phosphorus removal from mixture of treated and raw cattle manure wastewater in a low-O₂ granular sequencing batch reactor. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 94, 2238-2247.
- Montgomery, D. C. 2017. *Design and Analysis of Experiments*, John Wiley & Sons. Inc., New York.
- Pan, M., Chen, T., Hu, Z. & Zhan, X. 2013. Assessment of nitrogen and phosphorus removal in an intermittently aerated sequencing batch reactor (IASBR) and a sequencing batch reactor (SBR). *Water Science and Technology*, 68, 400-405.
- Pishgar, R. 2019. Nutrient (Ammonium and Phosphate) Removal Using Aerobic Granulation at Pilot scale. PhD Thesis, University of Calgary, Canada.
- Rahimi, Y., Torabian, A., Mehrdadi, N. & Shahmoradi, B. 2011. Simultaneous nitrification-denitrification and phosphorus removal in a fixed bed sequencing batch reactor (FBSBR). *Journal of Hazardous Materials*, 185, 852-857.
- Sánchez, A. S., Garrido, J. & Méndez, R. 2010. A comparative study of tertiary membrane filtration of industrial wastewater treated in a granular and a flocculent sludge SBR. *Desalination*, 250, 810-814.
- Sharma, S., Sarma, S. J. & Tay, J. H. 2019. Aerobic granulation in wastewater treatment: a general overview. *Microbial Wastewater Treatment*. 2019, 57- 81. Elsevier.
- Sheng, G. P., Yu, H. Q. & Li, X. Y. 2010. Extracellular polymeric substances (EPS) of microbial aggregates in biological wastewater treatment systems: a review. *Biotechnology Advances*, 28, 882-894.
- Su, K. Z. & Yu, H. Q. 2005. Formation and characterization of aerobic granules in a sequencing batch reactor treating soybean-processing wastewater. *Environmental Science and Technology*, 39, 2818-2827.



- Wan, J., Bessière, Y. & Spérandio, M. 2009. Alternating anoxic feast/aerobic famine condition for improving granular sludge formation in sequencing batch airlift reactor at reduced aeration rate. *Water Research*, 43(20), 5097-5108.
- Wang, L. K., Hung, Y. T., Lo, H. H. & Yapijakis, C. 2004. *Handbook of Industrial and Hazardous Wastes Treatment*, CRC Press, New York, USA.
- Wang, S. G., Liu, X. W., Gong, W. X., Gao, B. Y., Zhang, D. H. & Yu, H. Q. 2007. Aerobic granulation with brewery wastewater in a sequencing batch reactor. *Bioresource Technology*, 98, 2142-2147.
- Wilén, B. M., Liébana, R., Persson, F., Modin, O. & Hermansson, M. 2018. The mechanisms of granulation of activated sludge in wastewater treatment, its optimization, and impact on effluent quality. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 102, 5005-5020.
- Yang, S., Yang, F., Fu, Z., Wang, T. & Lei, R. 2010. Simultaneous nitrogen and phosphorus removal by a novel sequencing batch moving bed membrane bioreactor for wastewater treatment. *Journal of Hazardous Materials*, 175, 551-557.
- Yuan, Y., Liu, J., Ma, B., Liu, Y., Wang, B. & Peng, Y. 2016. Improving municipal wastewater nitrogen and phosphorous removal by feeding sludge fermentation products to sequencing batch reactor (SBR). *Bioresource Technology*, 222, 326-334.

