

Optimization of Diazinon Removal from Aqueous Environments by Electrocoagulation Process Using Response Surface Methodology

Edris Bazrafshan¹,
Leili Mohammadi²,
Davoud Balarak³,
Saeideh Keikhaei⁴,
Amir Hossein Mahvi⁵

¹ Professor, Department of Environmental Health, Health Promotion Research Center, Faculty of Health, Zahedan University of Medical Sciences, Zahedan, Iran

² PhD by Research in Environmental Health, Health Promotion Research Center, Faculty of Health, Zahedan University of Medical Sciences, Zahedan, Iran

³ MSc in Environmental Health, Health Promotion Research Center, Faculty of Health, Zahedan University of Medical Sciences, Zahedan, Iran

⁴ MSc in Chemical Engineering, School of Chemical Engineering, Sistan and Baluchestan, Zahedan, Iran

⁵ Assistant Professor, Department of Environmental Health, Faculty of Health, Tehran University of Medical Sciences, Tehran, Iran

(Received January 30, 2016 ; Accepted April 10, 2016)

Abstract

Background and purpose: Diazinon is one of the most widely used organophosphate pesticides classified by the World Health Organization (WHO) as “moderately hazardous” Class II. This work aimed at optimizing the electrocoagulation process in removal of diazinon from aqueous environments using response surface methodology.

Materials and methods: In an experimental-laboratory study using the D-optimal method, the effects of independent variables including initial concentration of diazinon (10-100 mg/l), applied voltage (20-40 V), reaction time (10-60 min) and pH (3-10) were investigated on removal of diazinon in 30 runs. Process optimization was done by response surface methodology. Analysis of proposed model was also performed using analysis of variance.

Results: Diazinon removal in proposed model was statistically significant at 95% confidence level. The model had insignificant lack-of-fit at 95% confidence level ($P=0.614$). Diazinon removal efficiency was dependent on initial concentration of diazinon, applied voltage, and reaction time. The removal efficiency of diazinon was 84.6% at optimum condition (voltage= 20 V and diazinon concentration= 100 mg/L).

Conclusion: Electrocoagulation process applying current experimental conditions was found to be efficient in removal of diazinon from aqueous solutions. Designing experiments by D-optimal method can optimize the removal of the process and prepare the best conditions for pollutant removal by reducing the number of experiments.

Keywords: pesticide, diazinon, electrocoagulation, response surface methodology

بهینه سازی حذف آفت کش دیازینون از محیط های آبی توسط فرایند انعقاد الکتریکی با استفاده از روش سطح پاسخ

ادریس بذرافشان^۱لیلی محمدی^۲داوود بلارک^۳سعیده کیخایی^۴امیرحسین محوی^۵

چکیده

سابقه و هدف: آفت کش دیازینون یکی از پر مصرف ترین سموم ارگانوفسفره بوده که سازمان جهانی بهداشت این آفت کش را در زمره سموم با درجه خطر متوسط در کلاس II طبقه بندی کرده است. مطالعه حاضر با هدف بهینه سازی فرایند انعقاد الکتریکی در حذف آفت کش دیازینون از محیط های آبی به روش سطح پاسخ انجام پذیرفت.

مواد و روش ها: بر مبنای یک مطالعه تجربی آزمایشگاهی به روش بهینه D، بررسی تاثیر متغیرهای مستقل شامل غلظت آفت کش دیازینون (۱۰-۱۰۰ میلی گرم در لیتر)، ولتاژ اعمال شده (۲۰-۴۰ ولت)، زمان واکنش (۶۰-۱۰ دقیقه) و pH محلول (۳-۱۰) بر راندمان حذف دیازینون با تعداد ۳۰ مرحله آزمایش انجام شد. بهینه سازی شرایط با استفاده از روش سطح پاسخ و تحلیل مدل پیشنهادی به روش آنالیز واریانس صورت پذیرفت.

یافته ها: مدل پیشنهادی برای میزان راندمان حذف دیازینون از نظر آماری در سطح اطمینان ۹۵ درصد معنی دار و ضعف برازش برای مدل پیشنهادی در سطح اطمینان ۹۵ درصد بی معنی بود ($p=0/614$). راندمان حذف دیازینون تابع تغییرات غلظت اولیه، ولتاژ اعمال شده و زمان واکنش بود. هم چنین راندمان حذف دیازینون در شرایط بهینه (۱۰۰ mg/l و ولتاژ ۲۰ ولت) برابر با ۸۴/۶ درصد تعیین گردید.

استنتاج: فرایند انعقاد الکتریکی تحت شرایط آزمایشگاهی ذکر شده یک روش کارآمد برای حذف آفت کش دیازینون از محلول های آبی می باشد. طراحی آزمایش به روش بهینه D می تواند به نحو مطلوبی فرایند حذف را بهینه سازی نموده و با کاهش تعداد آزمایش ها بهترین شرایط حذف آلاینده را تامین نماید.

واژه های کلیدی: آفت کش، دیازینون، انعقاد الکتریکی، روش سطح پاسخ

مقدمه

تبدیل شده است (۱). با توجه به حجم بالای کاربرد سموم آفت کش، مواجهه انسان با این گونه سموم تقریباً غیر قابل اجتناب بوده و در نتیجه احتمال بروز عوارض و اثرات سوء آن بر سلامت انسان ها از جمله سرطان زایی و

طی سال های اخیر آلودگی منابع آب های سطحی و زیرزمینی توسط آفت کش ها با توجه به کاربرد گسترده این مواد شیمیایی در محصولات مزارع، باغ ها و اراضی جنگلی به یک مشکل زیست محیطی جدی

E-mail: ed_bazrafshan@yahoo.com

مؤلف مسئول: ادریس بذرافشان - زاهدان: دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، دانشکده بهداشت

۱. استاد، گروه بهداشت محیط، مرکز تحقیقات ارتقاء سلامت، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، ایران

۲. دانشجوی دکتری پژوهشی بهداشت محیط، مرکز تحقیقات ارتقاء سلامت، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، ایران

۳. کارشناس ارشد بهداشت محیط، مرکز تحقیقات ارتقاء سلامت، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، ایران

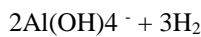
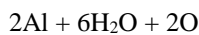
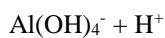
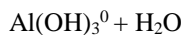
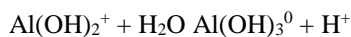
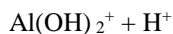
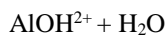
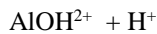
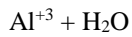
۴. کارشناس ارشد مهندسی شیمی، دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه سیستان و بلوچستان، زاهدان، ایران

۵. استادیار، گروه بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۳۹۴/۱۱/۱۰ تاریخ ارجاع جهت اصلاحات: ۱۳۹۴/۱۲/۹ تاریخ تصویب: ۱۳۹۵/۱/۲۲

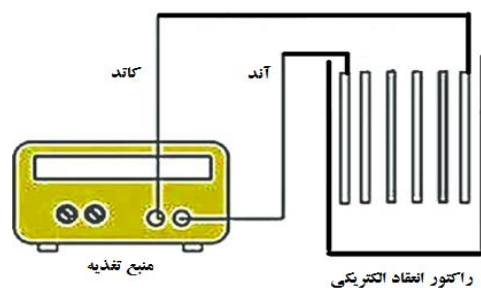
جهش زایی نیز افزایش می یابد. علی رغم این که سموم ارگانوفسفره (OPPs) در ایجاد سمیت حاد بیش تر از سموم ارگانوکلره اهمیت دارند، اما این سموم با سرعت بیش تری در محیط تجزیه می شوند (۳،۲). سموم ارگانوفسفره از قبیل دیازینون عوامل شیمیایی تاثیر گذار بر اعصاب هستند که فعالیت های آنزیم استیل کولین استراز را مهار می کنند. آفت کش دیازینون (C₁₂H₂₁N₂O₃PS) یکی از رایج ترین حشره کش های ارگانوفسفره مصرفی در جهان می باشد (۴). سازمان جهانی بهداشت (WHO) آفت کش دیازینون را جزو سموم با درجه خطر متوسط در کلاس II طبقه بندی کرده است (۵). میزان انحلال دیازینون در آب با دمای ۲۰ درجه سانتی گراد، به میزان ۲۵ میلی گرم در لیتر است، غیر قطبی و برای مدت طولانی در خاک باقی می ماند و به همین دلیل باعث آلودگی آب های سطحی و زیرزمینی می شود (۶). حداکثر غلظت مجاز دیازینون توسط اتحادیه اروپا ۰/۱ میکروگرم در لیتر و مجموع حشره کش ها معادل ۰/۵ میکروگرم در لیتر تعیین شده است (۷). فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته نظیر کاربرد توام ازون و پراکسید هیدروژن، فرآیند کربن فعال-تبادل یونی و اسمز معکوس از جمله راه کارهای ارائه شده به منظور حذف آفت کش ها از محیط های آبی می باشد (۹،۸). با وجود آن که استفاده از ترکیبات شیمیایی از دیرباز به منظور حذف انواع آلاینده های موجود در پساب مورد استفاده قرار گرفته، اما این روش ها بنا به دلایلی امروزه از مطلوبیت زیادی برخوردار نیست و علت امر را شاید بتوان به هزینه های بالاتر مربوط به تصفیه شیمیایی نسبت داد (به عنوان مثال حجم زیاد لجن تولیدی با محتوای آب بانندی بالا، هزینه ترکیبات شیمیایی مصرفی، افزایش غلظت TDS پساب). اما در عین حال تعدادی از تکنیک های نوید بخش و امیدوار کننده نیز بر مبنای تکنولوژی الکتروشیمیایی توسعه یافته اند که فاقد مشکلات ذکر شده هستند. یکی از این روش ها، فرآیند انعقاد الکتریکی می باشد (۱۰). در این فرآیند ماده منعقد کننده در محل و از طریق اکسیداسیون

الکترولیتی یک آند از جنس مناسب تولید می شود. سپس گونه های یونی باردار، آلاینده های مربوطه را از طریق فراهم نمودن امکان واکنش با یک یون با بار الکتریکی مخالف یا با هیدروکسیدهای فلزی تولیدی درون پساب حذف می نمایند. در واقع فرآیند انعقاد الکتریکی سبب تولید کاتیون های فلزی به طریقه الکتروشیمیایی، با استفاده از آندهای مصرف شدنی (معمولاً آهن یا آلومینیوم) می شود. هیدرولیز کاتیون در آب سبب تشکیل یک هیدروکسید همراه با گونه های غالب متناسب با pH محلول می شود (۱۵-۱۱). معادلات زیر نشان دهنده این امر در ارتباط با الکترو آلومینیوم می باشد:



هیدروکسیدهای فلزی تشکیل شده قادر هستند با فرآیند انعقاد جارویی، ترکیبات آلی محلول را جذب کرده و ذرات کلوییدی را به دام انداخته و ترسیب یا شناور نمایند که در نهایت به آسانی با فرآیند ته نشینی و شناورسازی توسط حباب های گاز هیدروژن از محیط آبی حذف خواهند شد (۱۹-۱۶). روش طراحی آزمایش و تحلیل نتایج آزمایش به کمک روش سطح پاسخ (Response Surface Methodology (RSM)) در بسیاری از مطالعات مورد استفاده قرار گرفته است (۲۰،۲۱). روش سطح پاسخ برای طراحی آزمایش در تجزیه و تحلیل داده ها به نحوی که بتواند به یک نتیجه گیری هدفمند و قابل اطمینان منتج شود، بسیار سودمند است. RSM در واقع مجموعه خاصی از روش های ریاضی و آماری است که برای طراحی آزمایش ها، ساخت مدل، ارزیابی شرایط بهینه اثر متغیرهای مستقل بر متغیر وابسته مورد استفاده

محيط آبی توسط اسيد سولفوریک و هيدروکسید سدیم ۱ و ۰/۱ نرمال با کنترل توسط pH متر (E520, Metrohm Herisau, Switzerland) با توجه به جدول طراحی آزمایشات توسط روش سطح پاسخ (جدول شماره ۱) به داخل ظرف بوکال (راکتور) مستقر بر روی همزن مغناطیسی با دور آرام و یکسان برای تمامی نمونه‌ها، تزریق شد. از طرفی به منظور افزایش هدایت الکتریکی محلول به ۱/۶ میلی‌زیمنس بر سانتی‌متر، کلرید پتاسیم یک نرمال به محلول های کروم اضافه شد. نمک کلرید اضافه شده به محلول می‌تواند هم چنین از تشکیل لایه اکسید بر روی آند ممانعت به عمل آورد و بنابراین مشکل بی اثر شدن الکترودها را کاهش دهد. پس از برقراری جریان الکتریکی با اختلاف پتانسیل های الکتریکی منتخب ۲۰، ۳۰ و ۴۰ ولت، نمونه های ۲۵ میلی‌لیتری از میانه ظرف در فواصل زمانی مشخص برداشت و غلظت باقی مانده دیازینون پس از عبور از فیلتر با ابعاد ۰/۴۵ میکرون جهت حذف لخته های تشکیل شده در خلال فرایند انعقاد الکتریکی فیلتر شد. جهت اندازه گیری غلظت باقیمانده آفت کش دیازینون از روش کروماتوگرافی لایه نازک (HPTLC) استفاده شد (۱۱). در این خصوص از دستگاه TLC Scanner 3 و نرم افزار CATS-4 استفاده گردید (حد تشخیص معادل ۰/۰۰۱ میلی گرم در لیتر). طول موج انتخابی جهت اسکن آفت کش دیازینون ۲۵۴ نانومتر بود. در ادامه راندمان حذف دیازینون با توجه به غلظت اولیه و باقی مانده محاسبه گردید.



تصویر شماره ۱: راکتور الکتروشیمیایی مورد استفاده

قرار می‌گیرد (۲۲). در این روش خصوصیات بهره‌برداری سیستم بر حسب متغیرهای پیوسته تحت عنوان متغیرهای پاسخ سنجیده می‌شود. در این مطالعه از روش سطح پاسخ برای مدل کردن و بهینه‌سازی فرایند حذف آفت کش دیازینون با استفاده از فرایند انعقاد الکتریکی از محلول های آبی استفاده شد. این روش توزیع منطقی از نقاط طراحی در سراسر ناحیه طراحی فراهم نموده و کفایت مدل را با انجام آزمون ضعف برازش (Lack of fit) مورد سنجش قرار می‌دهد. هم چنین این روش امکان تخمین خطاهای داخلی و خارجی را فراهم می‌کند. از طرفی در روش سطح پاسخ، تعداد آزمایش‌ها به حداقل ممکن کاهش پیدا کرده و نیازی به تعداد سطوح زیاد برای هر متغیر مستقل نیست (۲۲). مطالعه با هدف بهینه‌سازی فرآیند انعقاد الکتریکی در حذف آفت کش دیازینون از محیط آبی با استفاده از الکترودهای آلومینیومی انجام پذیرفت.

مواد و روش ها

در مطالعه حاضر تمامی ترکیبات شیمیایی مورد استفاده (استن، هگزان، هیدروکسید سدیم، اسید سولفوریک غلیظ و کلرید سدیم) از نوع آزمایشگاهی ساخت شرکت مرک آلمان بودند. آفت کش دیازینون مورد استفاده در تحقیق حاضر، ۹۸/۵ درصد (شرکت سیگما-آلد ریچ) بود. تجهیزات مربوط به واحد انعقاد الکتریکی شامل یک منبع تغذیه با اختلاف پتانسیل حداکثر ۸۰ ولت مدل Micro و الکترودهای صفحه‌ای از جنس آلومینیوم با ابعاد ۱۱×۱۱ سانتی‌متر مستقر در درون یک ظرف بوکال با ابعاد ۱۰×۱۲×۱۳ سانتی‌متر (طول×عرض×ارتفاع) مطابق تصویر شماره ۱ بود. اتصال الکترودها به منبع تغذیه به صورت دو قطبی صورت پذیرفت. فاصله بین الکترودها از یکدیگر برابر ۲ سانتی‌متر و حجم خالص ظرف برابر یک لیتر بود. نمونه‌های سنتتیک با غلظت های انتخابی اولیه دیازینون معادل ۱۰، ۵۵ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر با توجه به غلظت معمول در پساب های کشاورزی، پس از تنظیم pH اولیه

جدول شماره ۱: ماتریکس طراحی آزمایشات در سطوح مختلف

مرحله آزمایش	X_1	X_2	X_3	X_4	حذف دیازینون (%)
۱	۶/۵	۳۵	۳۰	۵۵	۳۵/۸
۲	۶/۵	۳۵	۳۰	۵۵	۳۵/۶۳
۳	۴/۰۵	۳۵	۳۰	۵۵	۴۶/۷
۴	۶/۵	۳۵	۳۰	۵۵	۳۵/۸
۵	۶/۵	۳۵	۳۰	۵۵	۳۵/۸
۶	۱۰	۶۰	۲۰	۱۰	۴۶/۴
۷	۱۰	۱۰	۲۰	۱۰	۶/۲
۸	۳	۱۰	۲۰	۱۰۰	۵۴/۲
۹	۶/۵	۳۵	۳۰	۵۵	۳۵/۴
۱۰	۳	۶۰	۲۰	۱۰۰	۸۸/۱
۱۱	۶/۵	۵۲/۵	۳۰	۵۵	۵۹/۳
۱۲	۱۰	۶۰	۴۰	۱۰۰	۹۷/۲
۱۳	۳	۱۰	۲۰	۱۰	۷/۳
۱۴	۶/۵	۳۵	۳۰	۵۵	۵۳/۷
۱۵	۱۰	۶۰	۲۰	۱۰۰	۹۱/۳
۱۶	۶/۵	۳۵	۳۷	۵۵	۴۶/۳
۱۷	۱۰	۱۰	۴۰	۱۰۰	۶۰/۲
۱۸	۳	۱۰	۴۰	۱۰۰	۶۲/۹
۱۹	۶/۵	۳۵	۳۰	۸۶	۷۰/۵
۲۰	۶/۵	۳۵	۳۰	۲۳/۵	۴۰/۵
۲۱	۶/۵	۱۷	۳۰	۵۵	۲۹/۲
۲۲	۱۰	۶۰	۴۰	۱۰	۶۴/۲
۲۳	۳	۶۰	۴۰	۱۰	۸۸/۶
۲۴	۸/۹۵	۳۵	۳۰	۵۵	۵۳/۵
۲۵	۳	۱۰	۴۰	۱۰	۲۸/۷
۲۶	۳	۶۰	۴۰	۱۰۰	۹۸/۷
۲۷	۱۰	۱۰	۴۰	۱۰	۲۹/۴
۲۸	۳	۶۰	۲۰	۱۰	۶۹/۷
۲۹	۶/۵	۳۵	۲۳	۵۵	۳۹/۶
۳۰	۱۰	۱۰	۲۰	۱۰۰	۵۴/۱

در روابط فوق SSr و SSm به ترتیب نشان دهنده مجموع مربعات باقیمانده ها و مدل می باشند. DFr و DFm نیز به ترتیب بیانگر درجه آزادی باقیمانده ها و مدل هستند. آنالیز واریانس (ANOVA) برای ارزیابی اثرات معنی دار متغیرهای مستقل بر روی متغیر پاسخ یعنی راندمان حذف دیازینون انجام شد. هم چنین در مطالعه حاضر، مصرف انرژی الکتریکی که یک پارامتر مهم اقتصادی در فرایند انعقاد الکتریکی است. با استفاده از معادله ذیل محاسبه گردید:

$$E = U.I.t/V$$

که در این معادله E معرف میزان انرژی مصرفی (kWh/m^3)، U ولتاژ به کار رفته (ولت)، I شدت جریان (آمپر)، t زمان انجام فرایند (ساعت) و V حجم فاضلاب تصفیه شده (لیتر) است. مقدار الکتروود مصرفی با وزن کردن صفحات قبل و بعد از فرایند انعقاد الکتریکی در هر مرحله از فرایند محاسبه گردید.

جدول شماره ۲: شرایط طرح آزمایش به روش بهینه D

ام متغیر	واحد	مقدار حداقل	مقدار حداکثر	میانگین	انحراف معیار
(X_1) pH	-	۳	۱۰	۶/۵	۲/۷۵
(X_2) زمان	دقیقه	۱۰	۶۰	۳۵	۱۶/۶۹
(X_3) ولتاژ	ولت	۲۰	۴۰	۳۰	۷/۸۷
(X_4) غلظت اولیه	میلی گرم در لیتر	۱۰	۱۰۰	۵۵	۳۵/۴۵

یافته ها

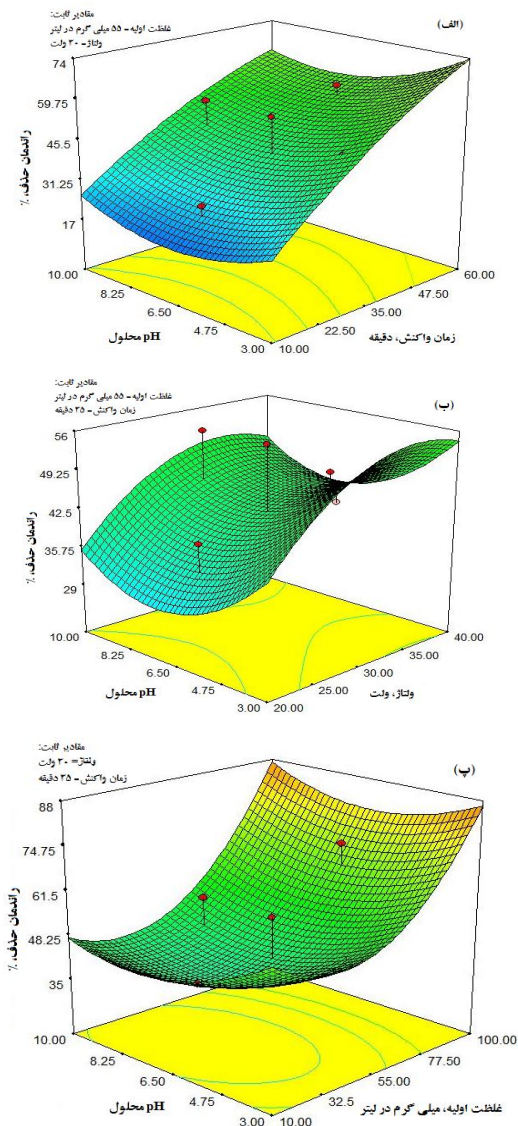
با انجام آنالیز رگرسیونی برای مقادیر پیش بینی شده، راندمان حذف حاصل گردید و برازش داده های به دست آمده برای میزان راندمان حذف صورت گرفت. مطابق جدول شماره ۳، از نظر آماری متغیرهای مستقل غلظت اولیه، ولتاژ و زمان واکنش به صورت خطی معنی دار بودند و از نظر آماری متغیر pH تاثیر معنی داری بر راندمان حذف دیازینون نداشت. اما در مواجهه با سایر متغیرها (interaction) تاثیر معنی داری بر مدل دارد و لذا در مدل باقی می ماند. به منظور بررسی کفایت مدل پیشنهادی در این مطالعه، مطابق نمودار شماره ۱، از نمودارهای آماری مختلف شامل نمودار توزیع نرمال،

اثر متغیرهای مستقل یعنی غلظت دیازینون، ولتاژ، زمان واکنش و pH بر میزان راندمان حذف دیازینون به روش انعقاد الکتریکی از طریق طرح آزمایش به روش بهینه D-Optimal با ۳۰ مرحله آزمایش (۳۰ نمونه) کاملاً تصادفی مطابق جدول شماره ۲ مورد بررسی قرار گرفت. در این مطالعه به منظور طراحی آزمایش ها از نرم افزار Design Expert نسخه ۹.۰/۶ استفاده شد. با کاربرد آنالیز رگرسیون، شاخص های اندازه گیری شده مدل سازی شدند. کیفیت مدل برازش شده بر راندمان حذف دیازینون با استفاده از شاخص های ضریب R^2 و ضریب R^2 اصلاح شده بر طبق روابط زیر تعیین گردید:

$$R^2 = 1 - \frac{SSr}{SSm + SSr}$$

$$R^2_{adj} = 1 - \frac{SSr/DFr}{(SSm + SSr)/(DFm + DFr)}$$

میلی گرم در لیتر و زمان بالاتر از ۱۰ دقیقه، افزایش هر کدام از این دو متغیرها به تنهایی سبب افزایش راندمان حذف می شود و شدت این افزایش مشهودتر می شود، به گونه ای که در زمان ۶۰ دقیقه و بیش ترین غلظت اولیه طراحی، راندمان حذف به بیش از ۷۹ درصد رسید. در نمودار شماره ۲-ج، در زمان ۳۵ دقیقه و در $pH=6/5$ ، اثر همزمان ولتاژ مصرفی و غلظت اولیه دیازینون بر راندمان حذف نشان داده شده است. با افزایش هر کدام از متغیرهای مقدار ولتاژ اعمال شده و غلظت اولیه دیازینون، کارایی حذف افزایش یافت، به طوری که در غلظت اولیه بیش از ۱۰۰ میلی گرم در لیتر با کاربرد ولتاژ ۴۰، راندمان به بیش از ۷۰ درصد رسیده است.



۵۵ میلی گرم در لیتر، با افزایش pH، مقادیر حذف کاهش می یابد و در مقدار pH کم تر و در زمان بیش تر از ۴۷ دقیقه، مقدار راندمان ۶۴/۲ درصد در مقابل مقدار ۲۶/۸ درصد در $pH=6/5$ و زمان ۱۰ دقیقه به دست آمد. در این نمودار مشاهده می شود که به طور کلی، افزایش زمان نسبت به pH، تاثیر بیش تری بر راندمان حذف داشته است و این تاثیر در pH کم تر از ۴ با افزایش زمان شیب، افزایشی بیش تری داشته است. در نمودار شماره ۲-ب، درصد حذف دیازینون در مقادیر مختلف pH و ولتاژهای متفاوت اعمال شده نشان داده شده است. طبق نتایج، افزایش pH اثر منفی تری در کارایی حذف دارد، به طوری که در مقادیر pH بیش تر از ۵ علی رغم افزایش ولتاژ، کارایی فرایند کاهش یافته است. در $pH=3$ با اعمال ولتاژ ۴۰-۳۰ ولت، کارایی فرایند بیش از ۵۱ درصد است، در حالی که با همین ولتاژ در pH بیش از ۹، میزان راندمان به ۴۶/۷ درصد کاهش یافته است. مطابق نمودار شماره ۲-پ، با افزایش غلظت اولیه آفت کش دیازینون، راندمان حذف افزایش می یابد و این افزایش کارایی در شرایط اسیدی مشهودتر است. کارایی فرایند در مقادیر pH برابر ۳ و در مقادیر غلظت ۱۰۰ میلی گرم در لیتر دیازینون معادل ۷۹ درصد و در ۵۵ میلی گرم در لیتر و pH برابر ۵ به ۴۶/۶ درصد کاهش یافت. بر اساس نمودار شماره ۲-ت، با افزایش همزمان ولتاژ یا اختلاف پتانسیل اعمال شده در سیستم و زمان واکنش، کارایی فرایند افزایش یافته به طوری که در غلظت اولیه ۵۵ میلی گرم در لیتر و pH برابر ۶/۵، در زمان بیش تر از ۵۰ دقیقه و مقدار ولتاژ بیش تر از ۴۰ ولت، راندمان حذف به بیش از ۵۲ درصد افزایش یافت. در ولتاژهای کم تر از ۳۰ ولت، تاثیر ولتاژ کم تر از زمان می باشد، به طوری که با میزان بیش از ۳۰ ولت در زمان ۲۵ دقیقه، راندمان حذف معادل ۲۲/۹ درصد حاصل گردید. مطابق نمودار شماره ۲-ث، با افزایش همزمان زمان واکنش و غلظت اولیه، کارایی حذف افزایش می یابد. در غلظت اولیه بیش از ۵۰

هم چنین از داده های موجود در جدول شماره ۵، چنین استنباط می شود که با افزایش ولتاژ برق اعمال شده، کمیت الکتروود مصرفی نیز افزایش می یابد به نحوی که بیش ترین کاهش وزنی الکتروودها در ولتاژ ۴۰ ولت و کم ترین کاهش وزنی در ولتاژ ۲۰ ولت مشاهده شد.

جدول شماره ۴: مقادیر انرژی الکتریکی مصرفی در طی فرآیند انعقاد الکتریکی در ولتاژ اعمال شده معادل ۴۰ ولت (Kwh/g)

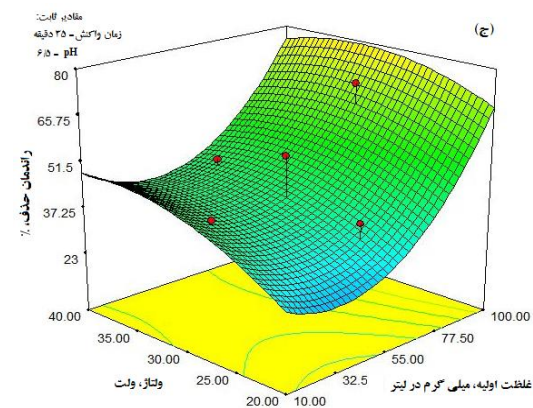
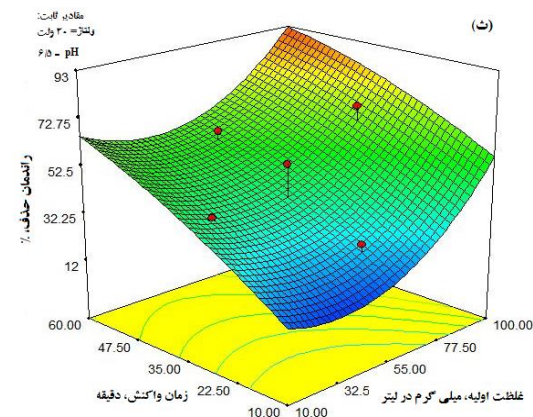
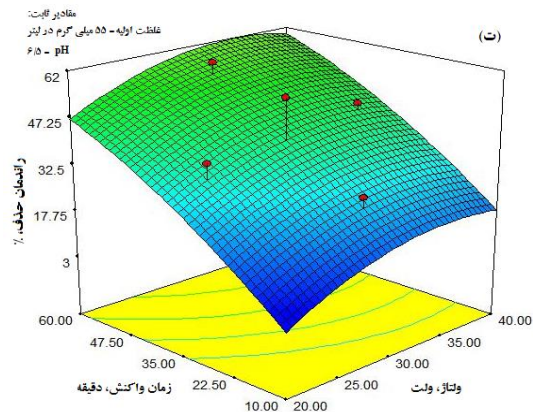
غلظت اولیه دیازینون (mg/L)			pH
۱۰۰	۵۰	۱۰	
۱/۲۴	۲/۸۲	۱۴/۱۷	۳
۱/۴۳	۲/۸۹	۱۴/۳۵	۷
۱/۳۷	۲/۹۳	۱۴/۱۹	۱۰

جدول شماره ۵: مقادیر الکتروود مصرفی در طی فرآیند انعقاد الکتریکی در ولتاژ های مختلف (g/L)

غلظت اولیه دیازینون (mg/L)			ولتاژ (ولت)
۱۰۰	۵۰	۱۰	
۲/۲۷	۲/۲۶	۲/۸۶	۲۰
۳/۴۶	۴/۳۳	۴/۵۶	۳۰
۵/۷۴	۶/۵۱	۷/۳۹	۴۰

بحث

بر اساس نتایج آنالیز واریانس در جدول شماره ۳، مدل رگرسیونی پیشنهادی برای میزان راندمان حذف دیازینون از نظر آماری در سطح اطمینان ۹۵ درصد معنی دار می باشد ($p < 0.05$). هم چنین ضعف برازش برای مدل پیشنهادی در سطح اطمینان ۹۵ درصد معنی دار نبود. بر اساس آزمون، ضعف برازش اختلاف بین مقادیر پیش بینی شده و مقادیر مشاهداتی با مقادیر خطای خالص بین تکرارهای مختلف مقدار پاسخ مقایسه می شوند. از لحاظ آماری نباید اختلاف معنی داری بین خطای مدل و خطای خالص در تکرارهای مختلف مقدار متغیر پاسخ وجود داشته باشد و به عبارتی این آزمون بایستی از نظر آماری معنادار نباشد، در غیر این صورت مدل پیشنهادی قابل قبول نخواهد بود. مطالعات زیادی در خصوص اثر تغییرات pH اولیه محلول بر میزان حذف آلاینده ها توسط فرآیند انعقاد الکتریکی انجام گرفته است و در هر یک از آنها به نقش پر



نمودار شماره ۲: ترسیم توزیعی داده های آزمایش در مقابل مقادیر پیش بینی شده به صورت سه بعدی

در جداول شماره ۴ و ۵ به ترتیب مقادیر انرژی الکتریکی مصرفی و نیز مقدار الکتروود آلومینیوم مصرفی طی فرآیند انعقاد الکتریکی آورده شده است. نتایج حاصل از بررسی میزان انرژی برق مصرفی برای حذف دیازینون در پتانسیل الکتریکی ۴۰ ولت و در pH های مختلف (جدول شماره ۴) بیانگر آن است که با افزایش غلظت اولیه، میزان مصرف انرژی برق کاهش می یابد.

اهمیت و اثر محسوس این پارامتر بر میزان حذف آلاینده‌ها اشاره شده است (۲۷-۲۳). در نتایج بسیاری از مطالعات انجام گرفته گزارش شده است که در فرآیند انعقاد الکتریکی با کاربرد الکتروود آلومینیومی در مقادیر pH کم‌تر از ۲ و pH بیش‌تر از ۱۰ با توجه به خاصیت آمفوتریک، ذرات هیدروکسید آلومینیوم در pH های زیر ۲ واحد رسوب نداشته و هم‌چنین در pH های ۱۰ به بالا، حلالیت $Al(OH)_3$ به فرم AlO_2^- محلول غیر قابل استفاده افزایش یافته و این امر کاهش کارایی فرآیند در حذف آلاینده‌ها را موجب می‌شود. نتایج حاصل از مطالعه حاضر با پژوهش‌های منتشر شده قبلی منطبق بوده و این نکته را متذکر می‌شود که فرآیند انعقاد الکتریکی می‌تواند به عنوان یک تنظیم کننده pH عمل نماید. اما در ارتباط با تاثیر pH بر روی راندمان حذف دیازینون (جدول شماره ۲ و ۳)، اگرچه توسط برخی از محققین این پارامتر به عنوان یک پارامتر تاثیر گذار بر راندمان حذف آلاینده‌ها ذکر شده، در مطالعه حاضر تاثیر چندانی بر راندمان حذف دیازینون نداشت ($p > 0.05$)، هرچند که بهترین نتایج حذف در غلظت‌ها و اختلاف پتانسیل‌های مختلف در pH برابر ۳ و ۱۲ (حدود ۹۸ درصد) حاصل شد، اما این اختلاف راندمان بین مقادیر مختلف pH معنی دار نبود. این امر را می‌توان به عنوان یکی از مزایای فرآیند انعقاد الکتریکی در عدم نیاز به تنظیم قطعی pH اولیه محلول با توجه به مقادیر pH متفاوت انواع پساب‌های کشاورزی و صنعتی محسوب نمود. نتایج مشابهی توسط سایر محققین در حذف آلاینده‌های مختلف توسط فرآیند انعقاد الکتریکی گزارش شده است (۱۱، ۱۳). تقریباً در تمامی مطالعات زمان واکنش جزء اصلی، اولیه و پر اهمیت در بررسی هر فرآیند بوده چرا که علاوه بر کاهش هزینه‌های اقتصادی، بر قدرت و قابلیت استفاده از فرآیند مربوطه نیز تاثیر دارد. در مطالعات بسیاری گزارش شده است که با افزایش زمان واکنش، راندمان حذف آلاینده‌ها نیز افزایش می‌یابد، اما هر چه به سمت زمان‌های واکنش بالاتر پیش برویم،

راندمان حذف رشد کم‌تری را از خود نشان می‌دهد. در واقع برای هر فرآیند در حذف هر آلاینده، یک زمان واکنش بهینه و ایده‌آل وجود دارد که مرز اقتصادی بودن فرآیند را تعیین می‌کند. همان‌طور که در نمودار شماره ۲- ت نمایش داده شده است، با افزایش هم‌زمان زمان واکنش و غلظت اولیه، کارایی حذف افزایش می‌یابد. هم‌چنین مطابق جدول شماره ۱ و مراحل آزمایش ۶ و ۷، در شرایط یکسان pH معادل ۷، اختلاف پتانسیل الکتریکی برابر ۲۰ ولت و غلظت آفت کش معادل ۱۰ میلی‌گرم در لیتر، راندمان حذف در زمان واکنش ۱۰ دقیقه معادل ۶/۲ درصد بوده و با افزایش زمان واکنش به ۶۰ دقیقه، راندمان به ۴۶/۴ درصد افزایش یافته است. این مهم در نمودارهای ۳- الف، ت و ث نیز نمایش داده شده است که بیانگر اهمیت زمان واکنش در کارایی حذف آفت کش دیازینون از محیط‌های آبی است. هم‌چنین نتایج مشابهی در مراحل آزمایش ۱۸ و ۲۶ مشاهده می‌گردد، به این ترتیب که تحت شرایط یکسان pH (برابر ۳)، ولتاژ (۴۰ ولت) و غلظت اولیه دیازینون (۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر)، راندمان حذف از ۶۲/۹ درصد در زمان واکنش ۱۰ دقیقه به ۹۸/۷ درصد در زمان واکنش ۶۰ دقیقه افزایش یافت. نتایج مشابهی در خصوص اثر افزایش زمان واکنش در افزایش راندمان حذف آلاینده‌ها از محیط‌های آبی گزارش شده است (۱۱، ۱۰). از طرفی نکته مهم دیگر این که برای کسب راندمان حداکثر در غلظت‌های دیازینون بالاتر، به زمان‌های واکنش بیش‌تری نیز نیاز است. اثر ولتاژ (شدت جریان الکتریسیته) در فرآیند انعقاد الکتریکی به خوبی مشخص شده است، به نحوی که نه تنها تعیین کننده میزان منعقد کننده تزریقی به محلول است، بلکه هم‌چنین بر روی نرخ تولید حباب‌ها و اندازه و رشد فلوک‌های تولیدی نیز موثر است که می‌تواند راندمان تصفیه فرآیند انعقاد الکتریکی را تحت تاثیر قرار دهد. بنابراین اثر ولتاژ یا اختلاف پتانسیل الکتریکی بر روی حذف آفت کش دیازینون مورد بررسی قرار گرفت. همان‌طور

که در نمودار شماره ۲- ب و ت نمایش داده شده است و نیز نتایج ارائه شده در جدول شماره ۱، مطابق انتظار، با افزایش ولتاژ یا اختلاف پتانسیل اعمال شده در فرآیند، راندمان حذف نیز به طور قابل ملاحظه‌ای افزایش می‌یابد. مطابق شماره آزمایش ۱۲ و ۲۶ ارائه شده در جدول شماره ۱، در مطالعه حاضر، بالاترین اختلاف پتانسیل الکتریکی معادل ۴۰ ولت توانست بالاترین راندمان حذف معادل حدود ۹۸ درصد را تامین نماید، در حالی که حداقل راندمان حذف آفت کش دیازینون معادل حدود ۷-۶ درصد، در شرایطی حاصل شد که اختلاف پتانسیل الکتریکی در کم‌ترین مقدار خود یعنی ۲۰ ولت قرار داشت (آزمایشات شماره ۷ و ۱۳). این امر بیانگر این حقیقت است که در شرایط اختلاف پتانسیل (ولتاژ) بالا، مقدار فلز آلومینیوم اکسید شده (تزریقی به محلول) افزایش می‌یابد که نتیجه آن تولید مقادیر بیش تر رسوبات و لخته‌های هیدروکسید $(Al(OH)_3)$ جهت حذف آلاینده‌ها است. علاوه بر این، این نکته به اثبات رسیده است که با افزایش در دانسیته جریان، دانسیته جابجایی افزایش و اندازه آن‌ها کاهش می‌یابد و این امر حذف سریع تر و بیش تر آلاینده‌ها را به دنبال خواهد داشت (۱۳، ۱۷). از طرفی با کاهش میزان جریان الکتریسیته (اختلاف پتانسیل)، زمان مورد نیاز برای دستیابی به راندمان‌های حذف مشابه بایستی افزایش یابد که این امر در مطالعه حاضر نیز مشاهده شد. این رفتار که راندمان تصفیه تا حدود زیادی تحت تاثیر بارگذاری جریان الکتریسیته است، توسط برخی محققین به اثبات رسیده است (۱۰، ۱۵، ۱۶).

Kumar و همکارانش در مطالعه‌ای که به بررسی کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی با استفاده از الکترودهای آلومینیومی در حذف آلاینده آرسنیک پرداختند، مشاهده نمودند که با افزایش دانسیته جریان (اختلاف پتانسیل الکتریکی)، لخته‌های هیدروکسید بیش تری تولید شده که نتیجه امر حذف موثرتر آرسنیک بود (۲۸). در مطالعه حاضر مطابق جدول شماره ۱، آزمایشاتی بر روی

محلول‌های سنتتیک دیازینون با غلظت‌های اولیه مختلف انجام پذیرفت تا اثر این پارامتر در حذف آفت کش تحت شرایط متفاوت فرآیند انعقاد الکتریکی بررسی شود. نتایج حاصله از آزمایشات انجام شده در شرایط مختلف نشان داد که غلظت اولیه آفت کش دیازینون می‌تواند راندمان حذف را تحت تاثیر قرار دهد، به نحوی که برای غلظت‌های اولیه بالاتر، اختلاف پتانسیل‌های بالاتر یا زمان واکنش طولانی تر نیاز است. به عبارت دیگر اگر غلظت اولیه آلاینده افزایش یابد، زمان مورد نیاز فرآیند نیز باید افزایش یابد. اهمیت اثر غلظت اولیه دیازینون در راندمان حذف آن توسط فرآیند انعقاد الکتریکی مطابق نتایج جدول شماره ۳ نیز نشان داده شده است، به طوری که در حالت مستقل، اثر این پارامتر کاملاً معنی‌دار بوده است ($p < 0.0001$). هم‌چنین مطابق جدول شماره ۱ و مراحل آزمایش ۸ و ۱۳، در شرایط یکسان pH معادل ۳، زمان واکنش ۱۰ دقیقه و اختلاف پتانسیل الکتریکی برابر ۲۰ ولت، راندمان حذف در غلظت آفت کش اولیه معادل ۱۰ میلی گرم در لیتر معادل ۷/۳ درصد بوده و با افزایش غلظت آفت کش به ۱۰۰ میلی گرم در لیتر، راندمان حذف به ۵۴/۲ درصد افزایش یافته است. این امر با نتایج برخی پژوهش‌های قبلی مطابقت نداشت، به نحوی که دانشور و همکارانش در مطالعه‌ای که به بررسی کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی در حذف رنگ پرداختند، مشاهده نمودند که راندمان حذف رنگ با افزایش غلظت آن به طور قابل ملاحظه‌ای کاهش می‌یابد (۲۹).

از طرفی نتایج ارائه شده توسط Chaudhary و همکارانش نیز این مسئله را تایید می‌نماید که راندمان حذف، با افزایش غلظت اولیه آلاینده کاهش می‌یابد (۳۰). در عین حال نتایج مطالعه بذرافشان و همکاران در خصوص حذف کروم از محلول‌های آبی با استفاده از فرآیند انعقاد الکتریکی توسط الکترودهای آهنی و آلومینیومی با نتایج مطالعه حاضر مطابقت دارد (۱۳). در عین حال مطابق نتایج موجود در جدول شماره ۱ و

پیرامون حذف بورن از طریق فرآیند انعقاد الکتریکی (۳۱) و نیز مطالعه بذرافشان و همکاران در خصوص حذف کروم با استفاده از الکترودهای آهنی و آلومینیومی نشان داد که مصرف انرژی در غلظت های پائین بورن در محلول بیش از شرایط غلظت بالای آن می باشد (۱۳). اما در عین حال نتایج مطالعات دانشور و همکارانش پیرامون حذف رنگ از محیط های آبی بیانگر آن است که انرژی مورد نیاز برای دستیابی به یک درصد مطلوب حذف رنگ با افزایش غلظت رنگ افزایش می یابد (۲۹). از طرفی از داده های موجود در جدول شماره ۵ چنین استنباط می شود که با افزایش ولتاژ برق اعمال شده، کمیت الکتروود مصرفی نیز افزایش می یابد، به نحوی که بیشترین کاهش وزنی الکتروودها در ولتاژ ۴۰ ولت و کمترین کاهش وزنی در ولتاژ ۲۰ ولت مشاهده شد. در عین حال مطابق نتایج این جدول، با افزایش غلظت آلاینده میزان الکتروود مصرفی برای ولتاژ ثابت کاهش می یابد.

سپاسگزاری

این پژوهش با حمایت مالی قطب علمی انستیتو تحقیقات بهداشتی دانشگاه علوم پزشکی تهران انجام گرفته است (شماره قرارداد ۱۳۲/۱۱۵۸۲ و شماره طرح ۲۷۱۱). لذا لازم می دانیم در این جا از این واحد دانشگاهی جهت همکاری صمیمانه شان تشکر و قدردانی نمایم.

References

1. Venkateswara Rao J. Sublethal effects of an organophosphorus insecticide (RPR-II) on biochemical parameters of tilapia, *Oreochromis mossambicus*. *Comp Biochem Physiol C Toxicol Pharmacol* 2006; 143(4): 492-498.
2. Shokrzadeh M, Karami M, Jafari Valoujajei M, Zamani Renani A. Measuring Diazinon residue in Thompson orange. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2013; 23(105): 91-99.
3. Legrouria A, Lakraimib M, Barroug A, De Royc A, Bessec JP. Removal of the herbicide 2,4-dichlorophenoxyacetate from water to zinc-aluminium-chloride layered double hydroxides. *Water Res* 2005; 39(15): 3441-3448.
4. Pourgholam R, Ghiyasi M, Rezai M, Nasrollahzadeh H, Saiedi AA, Safari R, et al. Histopathological studies of some organs of

نمودار ۳- ث، در غلظت های اولیه بالاتر، کاهش غلظت آفت کش دیازینون در مدت زمان کمتری نسبت به غلظت های اولیه پائین تر به وقوع پیوست. لذا زمان مورد نیاز برای کاهش غلظت باقی مانده دیازینون نسبت به افزایش در غلظت آلاینده به کندی افزایش می یابد. این امر توسط تئوری محلول های رقیق قابل تفسیر است، بدین صورت که در محلول های رقیق، تشکیل لایه پراکنده در نزدیکی الکتروود سبب یک نرخ واکنش کندتر می شود، اما در محلول های غلیظ، لایه پراکنده اثری بر روی نرخ انتشار یا مهاجرت یون های فلزی به سطح الکتروود ندارد (۳۰).

یکی از مهم ترین معیارها در انتخاب یک فرآیند مناسب جهت حذف آلاینده ها از محیط های آبی، گزینه اقتصادی بودن فرآیند می باشد، بنابراین در این ارتباط در فرآیند انعقاد الکتریکی، پارامترهای میزان انرژی الکتریکی مصرفی و نیز الکتروود مصرف شده تعیین مقدار گردیدند. نتایج حاصل از بررسی میزان انرژی برق مصرفی برای حذف دیازینون در پتانسیل الکتریکی ۴۰ ولت و در pH های مختلف (جدول شماره ۴) نشان دهنده آن است که با افزایش غلظت اولیه آفت کش دیازینون، میزان مصرف انرژی برق کاهش می یابد که این امر توجیه اقتصادی این روش را برای تصفیه محلول های حتی با غلظت های بالای دیازینون نشان می دهد. نتایج ارائه شده توسط Yilmaz و همکارانش

- grass carp (*Ctenopharyngodon idella*) exposed to sublethal concentrations of Diazinon. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2013; 23(98): 282-287.
5. Shemer H, Linden KG. Degradation and by-product formation of diazinon in water during UV and UV/H₂O₂ treatment. *J Hazard Mater* 2006; 136(3): 553-559.
 6. Kidd H, James DR. *The Agrochemicals Handbook*, 3rd ed. Cambridge, UK: Royal Society of Chemistry Information Services; 1991. p. 5-14.
 7. Drinking Water Guideline, 98/83/EEC, European Union, Brussels, 1998.
 8. Aslan S, Türkman A. Combined biological removal of nitrate and pesticides using wheat straw as substrates. *Process Biochemistry* 2005; 40(2): 935-943.
 9. Badawy MI. Advanced oxidation processes for the removal of organophosphorus pesticides from wastewater. *Desalination* 2006; 194(1-3): 166-175.
 10. | Bazrafshan E, Kord Mostafapoor F, Zazouli MA, Eskandari Z, Jahed GR. Study on Removal of cadmium from plating baths wastewater by electrochemical precipitation method. *Pakistan Journal of Biological Sciences* 2006; 9(11): 2107-2111.
 11. Bazrafshan E, Mahvi AH, Nasser S, Shaieghi M. Performance evaluation of electrocoagulation process for diazinon removal from aqueous environments by using iron electrodes. *Journal of Environmental Health Science and Engineering* 2007; 4(2): 127-132.
 12. Bazrafshan E, Mohammadi L, Ansari Moghaddam A, Mahvi AH. Heavy metals removal from aqueous environments by electrocoagulation process-a systematic review. *Journal of Environmental Health Science and Engineering* 2015; 13(74): 1-16.
 13. Bazrafshan E, Mahvi AH, Naseri S, Mesdaghinia AR. Performance evaluation of electrocoagulation process for removal of chromium⁶⁺ from synthetic chromium solutions using iron and aluminum electrodes. *Turkish J Eng Env Sci* 2008; 32(2): 59-66.
 14. Bazrafshan E, Moein H, Kord Mostafapour F, Nakhaie S. Application of electrocoagulation process for dairy wastewater treatment. *Journal of Chemistry* 2013; 1-8.
 15. Bazrafshan E, Farzadkia M, Kord Mostafapoor F, Ownagh KA, Mahvi AH. Slaughterhouse wastewater treatment by combined chemical coagulation and electrocoagulation process. *PLOS ONE* 2012; 7(6): e40108.
 16. Nouri J, Mahvi AH, Bazrafshan E. Application of electrocoagulation process in removal of zinc and copper from aqueous solutions by aluminum electrodes. *Int J Environ Res* 2010; 4(2): 201-208.
 17. Bazrafshan E, Biglari H, Mahvi AH. Phenol removal by electrocoagulation process from aqueous solutions. *Fresenius Environmental Bulletin* 2012; 21(2): 364-371.
 18. Bazrafshan E, Kord Mostafapoor F, Soori MM, Mahvi AH. Application of combined chemical coagulation and electrocoagulation process to carwash wastewater treatment. *Fresenius Environmental Bulletin* 2012; 21(9): 2694-2701.
 19. Bazrafshan E, Mahvi AH, Zazouli MA. Textile wastewater treatment by electrocoagulation process using aluminum electrodes. *Iranian Journal of Health Sciences* 2014; 2(1): 16-29.
 20. Zazouli MA, Veisi F, Veisi A. Modeling Bisphenol A removal from aqueous solution by activated carbon and eggshell. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2013; 22(2): 129-138.

21. Zazouli M, Ebrahimzadeh MA, Yazdani Charati J, Shiralizadeh Dezfoli A, Rostamali E, Veisi F. Effect of Sunlight and Ultraviolet Radiation in the Titanium Dioxide (TiO₂) Nanoparticles for Removal of Furfural from Water. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2013; 23(107): 126-138.
22. Behnajady MA, Modirshahla N, Hamzavi R. Kinetic study on photocatalytic degradation of C.I. Acid Yellow 23 by ZnO photocatalyst. *J Hazard Mater* 2006; 133(1-3): 226-232.
23. Mansoorian HJ, Rajabizadeh A, Bazrafshan E, Mahvi AH. Practical assessment of electrocoagulation process in removing nickel metal from aqueous solutions using iron-rod electrodes. *Desalination and Water Treatment* 2012; 44(1-3): 29-35.
24. Bazrafshan E, Mahvi AH, Zazouli MA. Removal of zinc and copper from aqueous solutions by electrocoagulation technology using iron electrodes. *Asian Journal of Chemistry* 2011; 23(12): 5506-5510.
25. Bazrafshan E, Biglari H, Mahvi AH. Humic acid removal from aqueous environments by electrocoagulation process using iron electrodes. *E-Journal of Chemistry* 2012; 9(4): 2453-2461.
26. Bazrafshan E, Ownagh K, Mahvi AH. Application of electrocoagulation process using iron and aluminum electrodes for fluoride removal from aqueous environment. *E-Journal of Chemistry* 2012; 9(4): 2297-2308.
27. Bazrafshan E, Alipour MR, Mahvi AH. Textile wastewater treatment by application of combined chemical coagulation, electrocoagulation, and adsorption processes. *Desalination and Water Treatment* 2016; 57(20): 9203-9215.
28. Ratna Kumar P, Chaudhari S, Khilar KC, Mahajan SP. Removal of arsenic from water by electrocoagulation. *Chemosphere* 2004; 55(9): 1245-1252.
29. Daneshvar N, Ashassi H, Kasiri MB. Decolorization of dye solution containing Acid Red 14 by electrocoagulation with a comparative investigation of different electrode connections. *J Hazard Mater* 2004; 112(1-2): 55-62.
30. Chaudhary A, Goswami N, Grimes S. Electrolytic removal of hexavalent chromium from aqueous solutions. *J Chem Technol Biot* 2003; 78(8): 877-883.
31. Yilmaz AE, Boncukcuoglu R, Kocakerim MM, Keskinler B. The investigation of parameters affecting boron removal by electrocoagulation method. *J Hazard Mater* 2005; 125(1-3): 160-165.