

An Investigation of Electrocoagulation-Flotation Process and Alternating Pulse Current in Diazinon Removal from Aqueous Solutions

Hamide Mirzamohammadi¹,
Hiua Daraei²,
Behzad Shahmoradi³,
Fardin Gharibi⁴,
Afshin Maleki⁵

¹ MSc Student in Environmental Health, Student Research Committee, Kurdistan University of Medical Sciences, Sanandaj, Iran
² MSc in Analytical Chemistry, Environmental Health Research Center, Kurdistan University of Medical Sciences, Sanandaj, Iran
³ Assistant Professor, Environmental Health Research Center, Kurdistan University of Medical Sciences, Sanandaj, Iran
⁴ MSc in Management, Environmental Health Research Center, Kurdistan University of Medical Sciences, Sanandaj, Iran
⁵ Professor, Environmental Health Research Center, Kurdistan University of Medical Sciences, Sanandaj, Iran

(Received September 13, 2016; Accepted November 13, 2016)

Abstract

Background and purpose: Diazinon is an organophosphorus insecticide, which is classified as a relatively dangerous product by the World Health Organization. Entrance of this pollutant into water resources can have detrimental effects on human health and environment. The aim of the present study was to evaluate the performance of pulsed alternative current and the electrocoagulation-flotation (ECF) processes in removal of diazinon from aqueous solutions.

Materials and methods: An applied laboratory-scale experiment was designed. Diazinon removal was performed using ECF and pulsed alternative current in a 750 ml borosilicate glass intermittent flow reactor, equipped with a magnetic stirrer, an electrical source, a pulsar, and four aluminum electrodes. The optimized operating conditions were also assessed using 10-500 mg/L of diazinon.

Results: According to the results, the removal efficiency of diazinon was found to range between 5% to 85%. Investigation of the operational parameters demonstrated significance of the initial concentration of diazinon, current density, the number of pulses, and electrical conductivity in efficiency of ECF process. The maximum removal efficiency of diazinon was found to be 85% (213 mg of diazinon), which was achieved in an operating condition with pH=7, current density of 46.7 A/m², electrical conductivity of 600 μS/cm, and process time of 45 min.

Conclusion: According to this study, ECF method could be used along with pulsed alternative current for removal of high concentrations of diazinon from wastewater. Additional processes are needed to meet the standards of drinking water.

Keywords: diazinon, electrocoagulation, flotation, pulsed alternative current

بررسی فرآیند الکتروکواگولاسیون / فلوتاسیون با جریان متناوب پالسی در حذف دیازینون از محیط آبی

حمیده میرزامحمدی^۱

هیوا دارایی^۲

بهزاد شاهمرادی^۳

فردین غریبی^۴

افشین ملکی^۵

چکیده

سابقه و هدف: دیازینون حشره کشی ارگانوفسفره است که سازمان جهانی بهداشت (WHO) آن را در دسته مواد نسبتاً خطرناک طبقه بندی کرده است. ورود این آلاینده به منابع تأمین آب شرب، می تواند تأثیرات زیان باری برای سلامتی انسان و محیط زیست داشته باشد؛ بنابراین، هدف از مطالعه حاضر بررسی عملکرد فرآیندهای الکتروکواگولاسیون/فلوتاسیون با جریان پالسی متناوب در حذف دیازینون از محلول های آبی است.

مواد و روش ها: این تحقیق یک مطالعه کاربردی در مقیاس آزمایشگاهی می باشد. حذف دیازینون با استفاده از فرآیند الکتروکواگولاسیون/فلوتاسیون با جریان پالسی متناوب در یک راکتور جریان ناپیوسته شیشه ای بور و سیلیکاتی به حجم ۷۵۰ ml، مجهز به همزن مغناطیسی، دستگاه مولد جریان الکتریسیته، پالس و چهار الکترود از جنس آلومینیوم انجام شد. غلظت های ۱۰ تا ۵۰۰ mg/L دیازینون، برای بهینه سازی شرایط عملیاتی فرآیند بررسی گردید.

یافته ها: نتایج بازه راندمان حذف از ۵ تا ۸۵ درصد را نشان داد. بررسی پارامترهای عملیاتی اهمیت غلظت اولیه دیازینون، شدت جریان الکتریکی، تعداد پالس و هدایت الکتریکی را بر کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون/فلوتاسیون نشان داد. بیشترین بازده حذف سم دیازینون برابر ۸۵ درصد (۲۱۳ mg دیازینون) در شرایط عملیاتی غلظت اولیه دیازینون ۵۰۰ mg/L، pH=۷، دانسیته جریان ۴۶/۷ A/m²، هدایت الکتریکی ۶۰۰ μSiemens/cm و زمان انجام فرآیند ۴۵ دقیقه به دست آمد.

استنتاج: با توجه به نتایج به دست آمده، استفاده از روش الکتروکواگولاسیون/فلوتاسیون با جریان متناوب پالسی در حذف سم دیازینون از فاضلاب های با غلظت بالا را تأیید می کند. البته، این مطالعه لزوم استفاده از فرآیندهای تکمیلی برای رسیدن به استانداردهای آب آشامیدنی را نیز واضح می سازد.

واژه های کلیدی: الکتروکواگولاسیون، دیازینون، جریان پالسی متناوب، فلوتاسیون

Email: maleki43@yahoo.com

مؤلف مسئول: افشین ملکی - سنج: دانشگاه علوم پزشکی کردستان، مرکز تحقیقات بهداشت محیط

۱. دانشجوی کارشناسی ارشد بهداشت محیط، کمیته تحقیقات دانشجویی، دانشگاه علوم پزشکی کردستان، سنندج، ایران

۲. کارشناسی ارشد شیمی تجزیه، مربی مرکز تحقیقات بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی کردستان، سنندج، ایران

۳. دکتری بهداشت محیط، استادیار مرکز تحقیقات بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی کردستان، سنندج، ایران

۴. کارشناسی ارشد، مرکز تحقیقات بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی کردستان، سنندج، ایران

۵. دکتری بهداشت محیط، استاد مرکز تحقیقات بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی کردستان، سنندج، ایران

© تاریخ دریافت: ۱۳۹۵/۶/۲۳ تاریخ ارجاع جهت اصلاحات: ۱۳۹۵/۷/۱۸ تاریخ تصویب: ۱۳۹۵/۸/۲۳

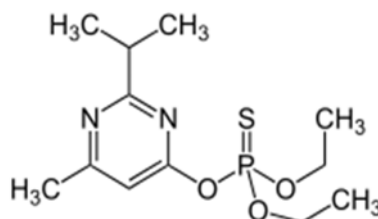
مقدمه

قرار دهند. اتحادیه اروپا حداکثر غلظت مجاز برای هر آفت کش را در آب شرب $0.1 \mu\text{g/L}$ و برای مجموع آن‌ها $0.5 \mu\text{g/L}$ اعلام نموده است (۶). مؤسسه استاندارد و تحقیقات صنعتی ایران تاکنون استاندارد برای این سم ارائه نکرده است.

حذف آلاینده‌های سمی و آلی خطرناک همچون آفت‌کش‌های ارگانوفسفره از آب و فاضلاب، اغلب با استفاده از اکسیدکننده‌هایی مانند ازن، اشعه UV، پراکسید هیدروژن و غیره انجام شده است. باوجود این، تخریب این مواد گاهی اوقات در غلظت‌های بالا یا زمانی که مقاومت خاصی نسبت به اکسیدان‌های استفاده‌شده داشته باشند، با مشکل مواجه می‌شود (۱). به‌تازگی مطالعه بر روی کاربرد جریان الکتریکی در تصفیه آب و فاضلاب به‌دلیل سازگاری با محیط زیست و کاربرد در محیط‌های آبی، افزایش یافته است. از جمله روش‌هایی مانند انعقاد الکتریکی، شناورسازی الکتریکی و سختی‌گیری الکتریکی به‌صورت موفق ارائه شده‌اند (۱۲-۷).

انعقاد عبارت است از: افزودن دستی ماده منعقدکننده و اختلاط سریع به جهت ناپایدارسازی ذرات کلوئیدی با چهار مکانیسم غالب این فرآیند. درنهایت، ذرات ناپایدارشده به‌صورت لخته‌های بزرگ‌تر در فرآیند لخته‌سازی حذف می‌شوند (۱۳). انعقاد الکتریکی در مقایسه با انعقاد با موادی چون سولفات آلومینیوم یا کلروفریک، مزایای متعددی دارد. در این حالت، آهن و آلومینیوم بدون اضافه‌شدن سولفات و دیگر آنیون‌های همراه در آب به‌کار گرفته می‌شوند. در این روش به تأمین قلیابیت برای انجام واکنش نیازی نیست؛ همچنین، حجم لجن تولیدی نیز کاهش می‌یابد. در این روش، تنظیم دوز منعقدکننده به‌سادگی با کنترل مقدار جریان الکتریسته اعمال‌شده امکان‌پذیر است. به‌دلیل مزیت‌های دو فلز آهن و آلومینیوم، از جمله ارزان‌قیمت و نامحلول بودن

دیازینون حشره‌کشی ارگانوفسفره می‌باشد که سازمان جهانی بهداشت (World Health Organization: WHO) آن را در دسته مواد نسبتاً خطرناک طبقه‌بندی کرده است. یک‌سوم از مصرف جهانی حشره‌کش‌ها به دیازینون اختصاص یافته است. ساختار این سم در تصویر شماره ۱ نشان داده شده است (۱). این سم در مزارع کشاورزی و باغات، برای از بین بردن کرم ساقه‌خوار و آفات درختان به‌طور گسترده‌ای استفاده می‌شود. دیازینون می‌تواند در انواع جانوران سبب مسمومیت شود و طیف وسیعی از آثار بیوشیمیایی را در دوزهای غیرکشنده نیز ایجاد کند. کاهش وزن در اندام‌های جنسی، کاهش قدرت حرکت، ناهنجاری و مرگ اسپرم از جمله آثار دیازینون هستند (۲).



تصویر شماره ۱: ساختار شیمیایی دیازینون

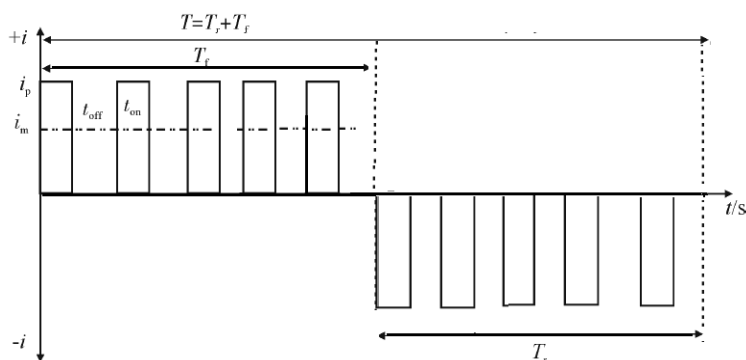
دیازینون ایجادکننده صدمات سلولی، ژنتیکی و محیطی است (۳). همچنین، عوارضی چون سردرد، تهوع، مشکلات گوارشی، عوارض پوستی، مشکلات کبدی، کلیوی و حتی تشنج و مرگ را ایجاد می‌کند (۴). شدت اثر تخریبی ناشی از تماس با دیازینون، به میزان دوز، نحوه تماس، چگونگی جذب، متابولیسم، تجمع و پایداری آن در بدن بستگی دارد و به‌طور عمده به‌وسیله پوست، چشم، تنفس و بلع وارد بدن می‌شود (۵). به‌تازگی این مواد به یک معضل در آب‌های سطحی که برای آشامیدن استفاده می‌شوند، تبدیل شده است. این ترکیبات به‌آسانی از آب یا خاک خارج نمی‌شوند و ممکن است فرآیندهای گوناگون فیزیکی، شیمیایی و زیستی در محیط‌های آبی را تحت تأثیر

هیدروکسیدهای آن‌ها در آب و pH خنثی، در فرآیند انعقاد الکتریکی به‌طور معمول از صفحات الکترودی از جنس این دو فلز استفاده می‌شود (۱۵،۱۴،۱۰،۷).

پس از تشکیل لخته‌ها، برای جداسازی آن‌ها از سه روش ته‌نشینی، فیلتراسیون و شناورسازی استفاده می‌شود. در جداسازی ذرات، فرآیند شناورسازی عکس فرآیند ته‌نشینی عمل می‌کند؛ به عبارت دیگر، شناورسازی روشی است که در آن، انتقال ذرات جامد از داخل فاز مایع به سطح رویی مایع صورت می‌گیرد. مزیت اصلی شناورسازی بر ته‌نشینی این است که در شناورسازی، ذرات بسیار کوچک یا سبک را که چگالی نزدیک به چگالی آب دارند و به آرامی ته‌نشین می‌شوند، می‌توان کامل‌تر و در زمان کوتاه‌تری حذف کرد (۱۶). از آنجا که لخته‌ها باید در شناورسازی شناور شوند، می‌توان دریافت که همانند فرآیند ته‌نشینی به تولید لخته‌های مترکم نیازی نیست. بدین ترتیب، در فرآیندهای شناورسازی باید لخته‌های با تراکم اندک و یا اصطلاحاً لخته‌های نوک‌سوزنی متخلخل ایجاد شوند تا شناور شدن آن‌ها به آسانی صورت پذیرد (۱۷). شناورسازی به کمک هوا یا روش القایی، شناورسازی به کمک خلأ و شناورسازی با هوای محلول (Dissolved air flotation: DAF) از مهم‌ترین روش‌های شناورسازی به‌شمار می‌روند (۱۸). یکی دیگر از روش‌های جدید شناورسازی، الکتروفلوتاسیون (Electro flotation: EF) است که در آن حباب‌های کوچک گازی که به‌صورت الکتریکی تولید شده‌اند، سبب می‌شود ذرات بر روی سطح شناور شوند. فرآیند مورد مطالعه، ترکیبی از الکتروکواگولاسیون و الکتروفلوتاسیون (ECF) است. این فرآیند نخستین بار توسط Kaliniichuk و همکاران به‌منظور حذف روغن از فاضلاب استفاده شد. نتایج مطالعه مزبور، بیانگر بالابودن کارایی فرآیند در مقایسه با فرآیند الکتروکواگولاسیون بوده است (۱۹). Hung و Cora یک راکتور ECF را

برای حذف یون کادمیوم از فاضلاب راه‌اندازی کردند. در طول فرآیند، حباب‌های گازی ریزی به کمک دو الکترود فلزی (کاتد/آند) تشکیل شد. حباب‌های ریز به ذرات نامحلولی چون فلزات یا دیگر مواد آلی می‌چسبیدند و آن‌ها را به سطح می‌آوردند. Merzouk و همکاران حذف کدورت و فلزات سنگین را با استفاده از فرآیند الکتروکواگولاسیون/فلوتاسیون بررسی کردند. نتایج نشان‌دهنده بالابودن حذف همزمان کدورت و فلزات سنگین از آب بوده است (۲۰). Mohora و همکاران حذف مواد آلی طبیعی و آرسنیک از آب را با استفاده از الکتروکواگولاسیون/فلوتاسیون در یک راکتور جریان پیوسته انجام دادند (۲۱).

در فرآیندهای الکتروکواگولاسیون، عملاً استفاده از جریان مستقیم (Direct Current: DC) متداول است. از معایب الکتروکواگولاسیون، مصرف انرژی و الکترود بالا، تولید منعقدکننده زیاد، نبود زمان ماند کافی برای لخته‌سازی و کم اثر شدن الکترودها (Passivation) می‌باشد که خود سبب افزایش بیشتر هزینه برق مصرفی و کارایی کمتر می‌شود. این پدیده به دلیل تشکیل یک لایه اکسید غیرقابل نفوذ روی کاتد رخ می‌دهد که از انتقال مؤثر جریان جلوگیری می‌کند. زمانی که از الکترودهای آلومینیومی استفاده شود، این پدیده خود را برجسته‌تر نشان می‌دهد. به دلیل چنین مواردی، استفاده از جریان متناوب (Alternative Current: AC) و جریان پالسی (Pulse Current: PC) در فرآیندهای الکتروکواگولاسیون توسعه یافته است (۲۲). در این مطالعه از جریان پالسی متناوب (Alternating pulse current) (تصویر شماره ۲) استفاده شد. هرچند که در این فرآیند همچنان مصرف الکتریسته، مصرف الکترود برای تولید منعقدکننده، تولید آلودگی ثانویه توسط باقی‌مانده منعقدکننده و تولید لجن به‌عنوان نقاط ضعف فرآیند به‌طور کامل برطرف نشده، اما این معایب نسبت به



تصویر شماره ۲: پالس‌ها در جریان پالسی متناوب استفاده شده (۲۹)

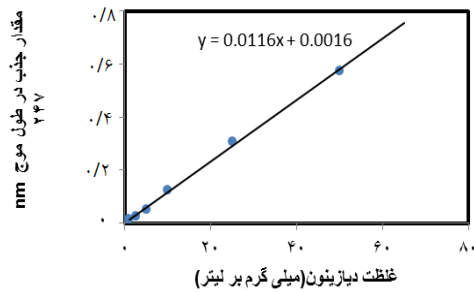
جنس آلومینیوم به صورت L شکل و به فاصله ۱ cm از یکدیگر و با سطح مؤثر 150 cm^2 در راکتور تعبیه شد. اتصال الکترودها به یکدیگر به صورت موازی و به منبع تغذیه به صورت تک قطبی بود. الکترودها به پالسر که خود به مولد جریان الکتریسته از نوع DC متصل است، وصل گردیدند. نقش الکتروشیمیایی هر الکترودها به تناوب فرکانس پالس اعمال شده توسط پالسر جابه‌جا می‌شود. برای افزایش کارایی، افزایش سطح الکترودها و کاهش اثر، لایه غیرفعال کننده الکترودهای مورد استفاده حفره‌دار شدند. پس از هر آزمایش، الکترودها به صورت شیمیایی تمیز شدند و با پولیش کاری سطح آن‌ها تازه گردید. تصویر راکتور در تصویر شماره ۳ نشان داده شده است. برای بررسی تغییرات مورفولوژی سطح الکترودها آلومینیوم مورد استفاده در طی فرآیند، از تکنیک SEM با دستگاه T-scan مدل MIRA3 ساخت کشور چک موجود در دانشگاه کردستان استفاده شد.

تنظیم pH با کمک اسید هیدروکلریک، هیدروکسید سدیم ۳ نرمال و دستگاه pH متر (Jenway 3510) کشور انگلستان صورت گرفت. تنظیم هدایت الکتریکی نیز با نمک نترات پتاسیم، با دستگاه هدایت‌سنج (Jenway 4510) کشور انگلستان انجام شد. شدت جریان الکتریکی و ولتاژ خروجی از پالسر، با استفاده از دو عدد مولتی‌متر مدل DT830D ساخت شرکت Gilsun کشور

فرآیند انعقاد و انعقاد الکتریکی با جریان مستقیم، بهبود بسیاری یافته‌اند (۲۷-۲۳). براساس مطالعات قبلی، کارایی فرآیندهای الکتروکواکولاسیون به چندین متغیر گوناگون از جمله pH محیط واکنش، دما، زمان واکنش (برای سیستم غیر پیوسته)، غلظت اولیه آلاینده و شدت جریان الکتریکی ایجاد شده وابسته است که مهم‌ترین این عوامل براساس مطالعات قبلی و پیش‌آزمایش‌هایی در این مطالعه مدنظر قرار خواهد گرفت (۲۷، ۲۸).

مواد و روش‌ها

مطالعه حاضر، یک مطالعه کاربردی است. مواد شیمیایی مورد استفاده شامل: اسید هیدروکلریک، هیدروکسید سدیم نمک نترات پتاسیم، از شرکت Merck کشور آلمان و دیازینون ۶۰ درصد از شرکت Arysta LifeScience ساخت کشور فرانسه تهیه شد. الکترودها آلومینیوم از فروشندگان ورق آلومینیوم در سطح شهر سنج خریداری شد و با ماشین کاری به اندازه و شکل دلخواه برش داده شد و حفره‌دار و آماده‌ی استفاده گردید. تجهیزات مورد استفاده در واحد انعقاد الکتریکی، شامل: یک راکتور جریان ناپیوسته شیشه‌ای به حجم ۷۵۰ ml مجهز به همزن مغناطیسی، دستگاه مولد جریان الکتریسته مستقیم مدل RXN-303D و مدول پالسی و متناوب کننده است. تعداد چهار الکترودها حفره‌دار از

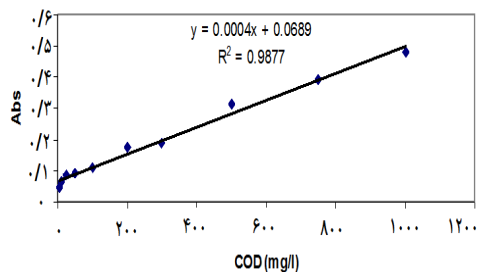


تصویر شماره ۴: منحنی استاندارد سم دیازینون

استاندارد کاربردی با غلظت‌های ۱، ۲/۵، ۵، ۲۵ و ۵۰ mg/L تهیه شد. سپس، منحنی استاندارد دیازینون رسم گردید. در تصویر شماره ۴ نمودار کالیبراسیون سم دیازینون با $R^2=0.998$ نشان داده شده است. برای آزمایش COD نیز از روش استاندارد رفلکس بسته استاندارد شماره ۵۲۲۰ استاندارد متد استفاده شد (۳۰). منحنی کالیبراسیون آزمایش COD نیز در تصویر شماره ۵ نمایش داده شده است. پس از انجام آزمایش‌ها، بازه حذف سم با استفاده از رابطه زیر به دست آمد.

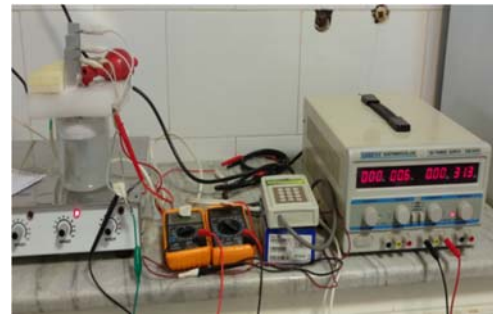
$$R_e = (C_0 - C_t) / C_0 \quad \text{معادله ۱}$$

که در اینجا R_e بازده حذف، C_0 غلظت اولیه سم دیازینون و C_t غلظت سم بعد از فرآیند در زمان t است. گفتنی است که درباره نمونه‌های با غلظت بالاتر از حد خطی بودن (LOL)، رقیق‌سازی لازم برای قرارگیری سیگنال در بازه خطی آنالیز صورت گرفت.



تصویر شماره ۵: منحنی استاندارد COD

چین، به صورت برخط پایش و به وسیله کنترل‌های تعبیه شده روی منبع تغذیه اصلی جریان مستقیم، دقیقاً روی مقادیر دلخواه تنظیم گردید. گفتنی است با توجه به تثبیت جریان روی مقادیر مشخص طبق طراحی آزمایش‌ها، مقادیر ولتاژ با تغییر مقاومت محلول در طول فرآیند تغییراتی را به خود دیده است که به صورت برخط پیگیری و ثبت شدند.



تصویر شماره ۳: تصویر راکتور مورد استفاده در این مطالعه

در هر آزمایش، ۵۰۰ ml فاضلاب سنتتیک با شرایط مشخص شده به درون راکتور منتقل گردیده و پس از اعمال فرآیند با زمان و شرایط مشخص شده، برای تعیین میزان حذف، نمونه‌ها از میانه راکتور برداشته شدند. پس از سانتریفیوژ، به وسیله اسپکتروسکوپی جذب مولکولی میزان جذب و غلظت هر نمونه با کمک دستگاه اسپکتروفوتومتر مدل DR5000 و در طول موج ۲۴۷ nm آنالیز شد. برای بررسی تأثیر پارامتر pH، ابتدا آزمایش‌ها در سه سطح pH ۳، ۷ و ۱۱ بررسی گردیدند. پس از آن، تأثیر غلظت‌های اولیه دیازینون در پنج سطح ۱۰، ۵۰، ۱۰۰، ۲۵۰، ۵۰۰ mg/L، دانسیته جریان ۳، ۲۰، ۳۳/۴، ۴۶/۷ و ۶۷ A/m²، هدایت‌های الکتریکی ۸۰، ۱۵۰، ۲۶۰، ۶۰۰، ۱۴۰۰ و ۱۸۰۰ $\mu\text{Siemens/cm}$ ، تعداد تکرار پالس: ۱، ۳، ۷ و ۱۰ و زمان پالس: ۱، ۵، ۷ و ۱۰ و در زمان‌های واکنش ۱۵، ۳۰، ۴۵، ۶۰ و ۹۰ دقیقه بررسی شدند.

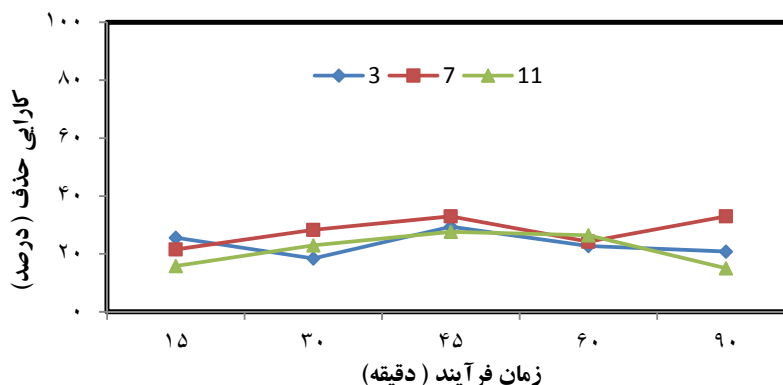
برای رسم منحنی کالیبراسیون استاندارد سم دیازینون از محلول استاندارد ذخیره ۱۰۰۰ mg/L محلول‌های

یافته‌ها

تأثیر pH اولیه بر کارایی فرآیند

برابر ۳۳ درصد در pH خنثی (طبیعی) مشاهده گردید و در مقادیر pH کمتر (۲۲ درصد) و pH بیشتر (۱۵ درصد) از آن، میزان حذف سم کاهش یافته است که از لحاظ عملیاتی، به دلیل عدم نیاز به کنترل و تنظیم pH بسیار کمک‌کننده می‌باشد. با توجه به کارایی بالاتر و مزیت‌های pH طبیعی، ادامه آزمایش‌ها نیز در همین pH انجام گردید.

در این مطالعه، ابتدا تأثیر pH در مقادیر ۳، ۷ و ۱۱ در غلظت اولیه مشخص شده دیازینون 50 mg/L ، غلظت نمک 0.5 g/L ، دانسیته جریان 67 A/m^2 ، تعداد پالس ۱ و زمان پالس ۵ ثانیه، در زمان‌های تماس ۱۵ تا ۹۰ دقیقه بررسی گردید که نتایج آن در تصویر شماره ۶ نمایش داده شده است. بالاترین بازده حذف دیازینون

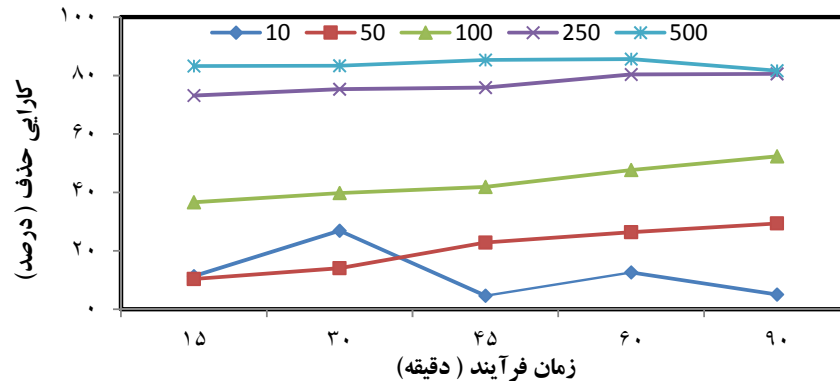


تصویر شماره ۶: تأثیر پارامتر عملیاتی pH بر فرآیند الکتروکواکولاسیون (غلظت اولیه دیازینون 50 mg/L ، دانسیته جریان 67 A/m^2 ، هدایت الکتریکی $600 \mu\text{Siemens/cm}$)

تأثیر غلظت اولیه دیازینون بر کارایی فرآیند

دقیقه در غلظت 250 mg/L و در ۴۵ دقیقه در غلظت 500 mg/L به دست آمد که به ترتیب ۸۱ و ۸۵ درصد بود. افزایش غلظت آلاینده به عنوان واکنش‌دهنده فرآیند انعقاد، با افزایش پتانسیل شیمیایی و به بیان ساده‌تر، طبق اصل لوشاتلیه سبب افزایش کارایی فرآیند و همچنین طبق نظریه برخورد سبب افزایش سرعت خواهد بود. اگرچه بازده حذف در غلظت‌های 250 mg/L و 500 mg/L بیشتر بوده، نظر به کارایی بالای ۸۵ درصد در این غلظت‌ها و امکان مشاهده نشدن تأثیر بیشتر توسط دیگر پارامترهای مورد بررسی و این واقعیت که غلظت 100 mg/L به غلظت مجموع سموم نمونه‌های واقعی در فاضلاب‌های صنعتی و کشاورزی (۳۱) نزدیک‌تر بوده،

برای بررسی تأثیر غلظت اولیه دیازینون بر بازده حذف در فرآیند ECF و pH بهینه (طبیعی)، مقدار نمک 0.5 g/L ، دانسیته جریان 67 A/m^2 ، تعداد پالس ۱ و زمان تماس ۵ ثانیه، مقادیر غلظت دیازینون ۱۰، ۵۰، ۱۰۰، ۲۵۰ و 500 mg/L و زمان‌های تماس ۱۵ تا ۹۰ دقیقه استفاده شدند. نتایج این مرحله از آزمایش‌ها در تصویر شماره ۷ نمایش داده شده است. مطابق تصویر، بازده حذف با افزایش غلظت اولیه دیازینون افزایش یافته؛ به نحوی که بازده حذف بعد از گذشت ۹۰ دقیقه به ترتیب برابر ۵، ۲۹، ۵۲، ۸۱ و ۸۲ درصد در غلظت‌های اولیه ۱۰، ۵۰، ۱۰۰، ۲۵۰ و 500 mg/L بوده است. بیشترین بازده حذف در ۹۰

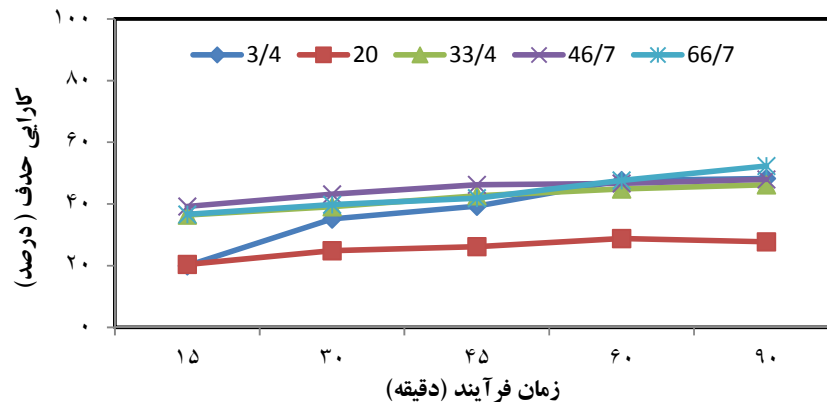


تصویر شماره ۷: تأثیر غلظت اولیه دیازینون بر فرآیند الکتروکواگولاسیون (جریان ۶۷ A/m²، pH طبیعی، هدایت الکتریکی ۶۰۰ µSiemens/cm)

در ادامه کار این مقدار به عنوان غلظت بهینه انتخاب شد. تصویر شماره ۸ نشان داده شده است. نتایج این مرحله نشان می‌دهد که با افزایش جریان اعمال شده، کارایی حذف سم دیازینون افزایش یافته؛ به نحوی که بازده حذف دیازینون بعد از زمان ۹۰ دقیقه از انجام فرآیند در دانسیته جریان ۶۶/۷ A/m² حدود ۵۲ درصد بوده است؛ اما به دلایل اقتصادی، دانسیته جریان ۴۶/۷ A/m² که بازده نزدیک به مقدار بهینه با مصرف انرژی کمتر داشته است، برای ادامه آزمایش‌ها انتخاب گردید.

تأثیر تغییرات دانسیته جریان بر کارایی فرآیند

به منظور بررسی اثر دانسیته جریان در حذف دیازینون در pH طبیعی، غلظت اولیه دیازینون ۱۰۰ mg/L، مقدار نمک ۰/۵ g/L، تعداد پالس ۱، زمان پالس ۵ ثانیه و طیف دانسیته جریان ۳ تا ۶۷ A/m² مجموعه‌ای از آزمایش‌ها در زمان‌های تماس ۱۵ تا ۹۰ دقیقه انجام شد که نتایج آن در



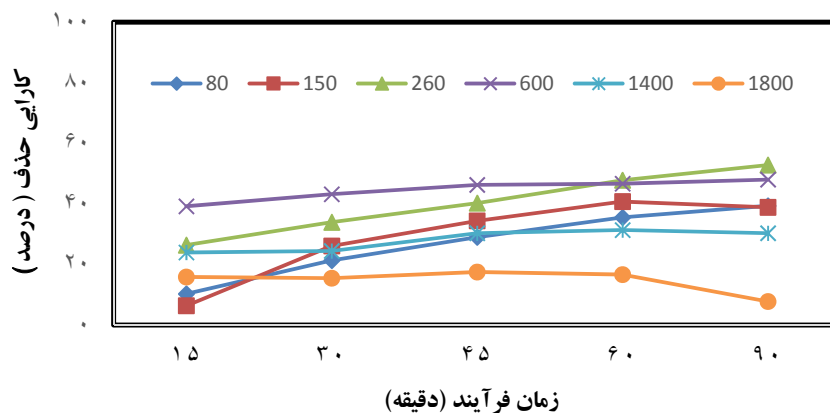
تصویر شماره ۸: تأثیر دانسیته جریان بر فرآیند الکتروکواگولاسیون (غلظت اولیه دیازینون ۱۰۰ mg/L، pH طبیعی، هدایت الکتریکی ۶۰۰ µSiemens/cm)

هدایت محلول اولیه دیازینون با غلظت ۱۰۰ mg/L در pH خنثی، با دانسیته جریان ۴۶/۷ A/m² در رنج

تأثیر هدایت الکتریکی محلول بر کارایی فرآیند
برای بررسی تأثیر این پارامتر در حذف دیازینون،

۶۰۰ $\mu\text{Siemens/cm}$ ، بازده حذف افزایش یافته و به حدود ۴۸ درصد رسید؛ ولی هدایت بیشتر از این مقدار، کارایی فرآیند ECF در حذف سم را کاهش داد.

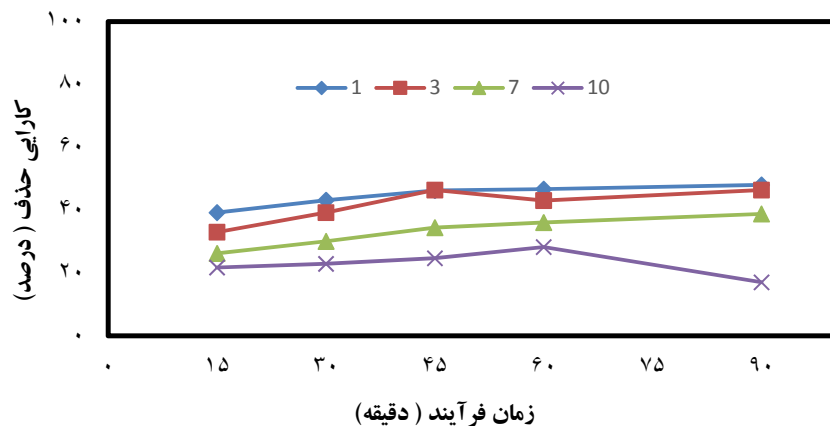
۸۰-۱۸۰۰ $\mu\text{Siemens/cm}$ به وسیله نمک پتاسیم نیترات تنظیم شد. همان‌طور که در تصویر شماره ۹ نشان داده شده است، پس از سپری شدن ۹۰ دقیقه از زمان فرآیند، با افزایش هدایت تا مقدار معین



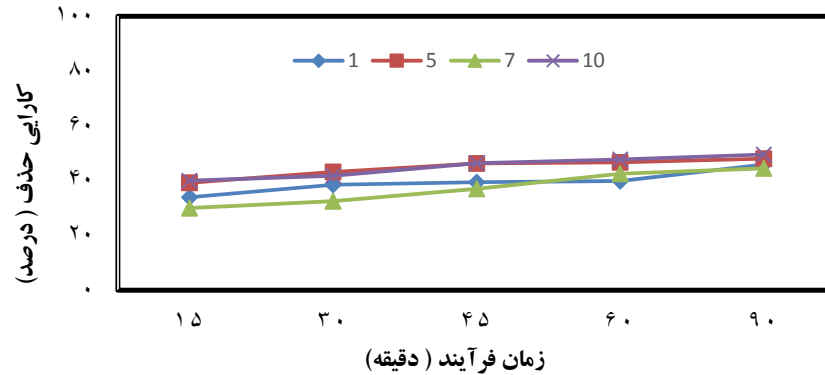
تصویر شماره ۹: تأثیر پارامتر عملیاتی هدایت الکتریکی محلول بر فرآیند الکتروکواکولاسیون (غلظت اولیه دیازینون ۱۰۰ mg/L، pH طبیعی، دانسیته جریان $46/7 \text{ A/m}^2$)

تعداد پالس‌های کمتر، بازده حذف سم بالاتر است؛ به طوری که بازده حذف پس از ۹۰ دقیقه حدود ۴۸ درصد بوده و با افزایش تعداد پالس، به حدود ۱۷ درصد کاهش یافته است.

تأثیر تعداد پالس بر کارایی فرآیند در این مطالعه، تأثیر تعداد پالس بر روی کارایی فرآیند ECF در حذف سم دیازینون نیز بررسی شد. همان‌طور که در تصویر شماره ۱۰ مشاهده می‌شود، در



تصویر شماره ۱۰: تأثیر تعداد تکرار پالس در فرآیند الکتروکواکولاسیون (غلظت اولیه دیازینون ۱۰۰ mg/L، pH طبیعی، دانسیته جریان $46/7 \text{ A/m}^2$ ، هدایت الکتریکی $600 \mu\text{Siemens/cm}$)



تصویر شماره ۱۱: تأثیر زمان پالس در فرآیند الکتروکواگولاسیون (غلظت اولیه دیازینون ۱۰۰ mg/L، pH طبیعی، دانسیته جریان ۴۶/۷ A/m²، هدایت الکتریکی ۶۰۰ μSiemens/cm)

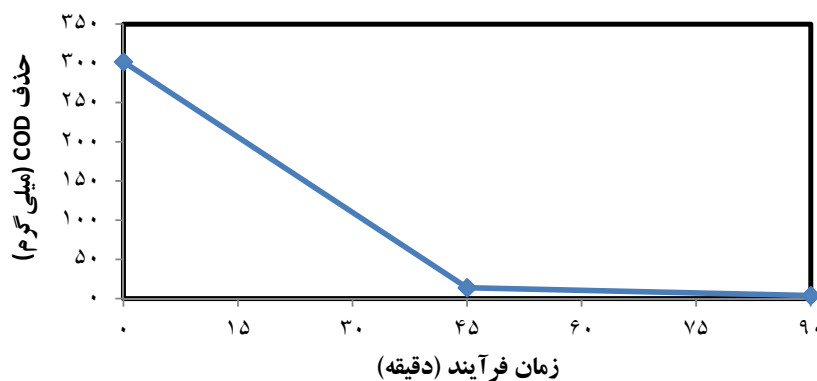
تأثیر زمان پالس بر کارایی فرآیند

تأثیر زمان پالس نیز در شرایط بهینه pH طبیعی، غلظت اولیه دیازینون ۱۰۰ mg/L، جریان ۴۶/۷ A/m²، هدایت الکتریکی ۶۰۰ μSiemens/cm در تصویر شماره ۱۱، نشان می‌دهد که بازده حذف دیازینون در تمام زمان‌های اعمال شده نزدیک به یکدیگر بوده است.

شرایط pH طبیعی، دانسیته جریان ۴۶/۷ A/m²، هدایت الکتریکی ۶۰۰ μSiemens/cm، غلظت ۲۵۰ mg/L دیازینون و در سه زمان صفر، ۴۵ و ۹۰ دقیقه بررسی شد. مطابق تصویر شماره ۱۲، بعد از ۴۵ دقیقه غلظت COD از ۳۰۲ به ۱۷ mg کاهش یافته و بازده حذف، ۹۵ درصد به دست آمد. پس از آن، شیب بازده تقریباً ثابت می‌شود؛ به طوری که با افزایش زمان تا ۹۰ دقیقه، کارایی حذف فقط حدود ۳ درصد افزایش می‌یابد.

اثر فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف COD

تعیین اثر فرآیند ECF بر روی حذف COD، در

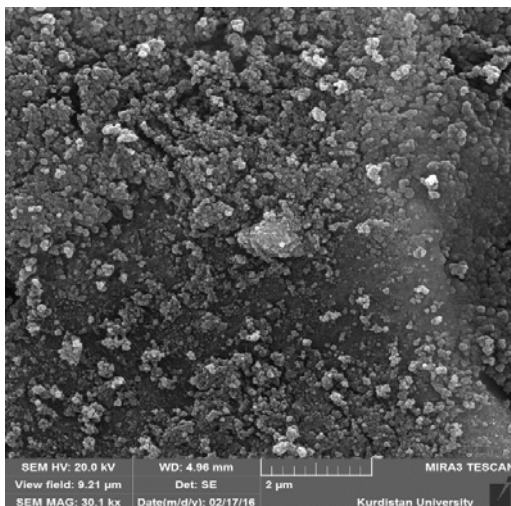


تصویر شماره ۱۲: تأثیر فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف COD (غلظت اولیه دیازینون ۲۵۰ mg/L، pH طبیعی، دانسیته جریان ۴۶/۷ A/m²، هدایت الکتریکی ۶۰۰ μSiemens/cm)

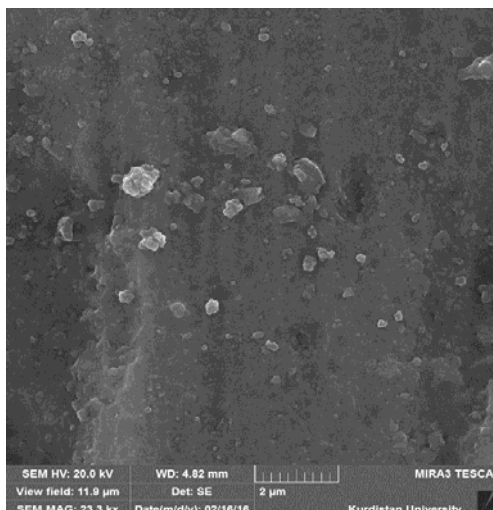
اثر جریان پالسی متناوب بر روی الکتروکود Al

اثر جریان پالسی متناوب بر مورفولوژی سطح

الکترودهای آلومینیوم، به وسیله میکروسکوپ الکترونی روبشی مطالعه و نتایج آن در تصویر شماره ۱۳ نشان داده



ب



الف

تصویر شماره ۱۳: تصاویر میکروسکوپ الکترونی رویشی الکتروکواکولاسیون؛ الف: قبل از اعمال جریان و ب: بعد از اعمال جریان متناوب پالسی

بود. در مطالعه حاضر در $\text{pH}=7$ ، دانسیته جریان 467 A/m^2 ، هدایت الکتریکی $600 \mu\text{Siemens/cm}$ ، زمان الکترولیز ۴۵ دقیقه و افزایش غلظت تا 500 mg/L ، بالاترین بازده حذف برابر ۸۵ درصد به دست آمد.

تأثیر pH اولیه بر کارایی فرآیند

pH یکی از فاکتورهای مهم و مؤثر در فرآیندهای انعقاد الکتریکی برای حذف آلاینده‌ها است. بررسی نتایج مطالعات متعدد در این زمینه، عامل مهم و تأثیرگذار در فرآیندهای انعقاد شیمیایی را تأثیر pH محیط بر تشکیل انواع هیدروکسیدهای فلزی در فرآیند و اثر آن‌ها بر حذف ترکیبات گوناگون دانسته‌اند (۳۳). در فرآیند انعقاد الکتریکی که از الکتروکواکولاسیون استفاده می‌شود، در نهایت Al(OH)_3 تشکیل می‌گردد که در تشکیل لخته‌ها و حذف آلاینده‌ها نقش اصلی و مهمی دارد. در pH کمتر از ۴، گونه‌های مونومر کاتیونی Al^{3+} و Al(OH)_2^+ تشکیل می‌شوند و با افزایش pH در محدوده ۴-۹ لخته‌های کوچک Al(OH)_3 شکل می‌گیرند که دارای سطح ویژه زیادی بوده و سبب جذب سریع

شده است. الکترودها قبل از اعمال جریان متناوب پالسی و بعد از اعمال جریان به مدت ۲ ساعت با جریان الکتریکی ۱ A مطالعه شدند. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، الکتروکواکولاسیون پس از اعمال جریان پالسی متناوب دچار خوردگی سراسری و نسبتاً منظم شده است. خوردگی منظم سبب ایجاد نانوساختارهای آلومینیومی شده که امکان تغییر مکانیسم و سنتیک انتقال الکترون و اکسایش را ایجاد می‌کند. با بررسی الکتروشیمیایی و تأثیر طول عمر الکتروکواکولاسیون بر کارایی فرآیند، می‌توان آن را بیشتر ارزیابی کرد.

بحث

در این مطالعه، فرآیند الکتروکواکولاسیون/فلوتاسیون به عنوان یک تکنولوژی جدید در حذف دیازینون بررسی شد. بازده حذف دیازینون در شرایط گوناگون (pH، دانسیته جریان و هدایت الکتریکی) در زمان‌های متفاوت تعیین گردید. در مطالعه مشابهی که عمومی و همکاران (۳۲) انجام دادند، در $\text{pH}=3$ ، دانسیته جریان 12 A/cm^2 ، زمان الکترولیز ۳۵ دقیقه و افزایش غلظت تا 90 mg/L ، بالاترین بازده حذف برابر ۸۹ درصد

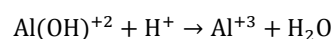
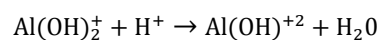
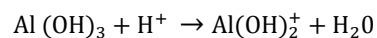
الکترواستاتیک با ذرات مثبت گونه‌های آلومینیوم در محیط می‌شود (۳۸). از طرف دیگر، در طول فرآیند ECF، pH محلول تغییر می‌کند. در بسیاری از مطالعات نیز وقتی که pH ابتدایی محلول پایین باشد، افزایش در pH نهایی رخ می‌دهد و وقتی pH ابتدایی بالای ۹ باشد، افزایش خیلی کمی در pH نهایی اتفاق می‌افتد؛ بنابراین، می‌توان گفت که فرآیند EC می‌تواند موجب تعدیل pH گردد. Vik و همکاران (۳۹) علت افزایش pH را تشکیل گاز هیدروژن در الکتروود کاتد و تولید یون هیدروکسید در این فرآیند می‌دانند. طی آزمایش‌های این مطالعه نیز، pH افزایش یافت و در نهایت، pH نهایی واکنش به حدود ۱۰ رسید و واکنش‌ها در یک pH قلیایی انجام شدند.

تأثیر غلظت اولیه دیازینون بر کارایی فرآیند

در این مطالعه یکی دیگر از پارامترهای تأثیرگذار، غلظت‌های اولیه سم دیازینون بوده است. مجموعه‌ای از آزمایش با غلظت‌های اولیه دیازینون برای تعیین بازده حذف در شرایط گوناگون انجام شد. نتایج نشان داد که غلظت اولیه دیازینون می‌تواند روی بازده حذف اثرگذار باشد. دیازینون در حلقه هتروسیلیک خود، اتم‌های نیتروژن دارد (تصویر شماره ۱). الکترون‌های ناپیوندی نیتروژن، اثر دهنده الکترون به یون‌های مثبت را دارند که می‌توانند با آلومینیوم یا یون‌های آلومینیوم هیدروکسیلات که در لخته‌ها وجود دارند، واکنش نشان دهند و سبب کاهش غلظت دیازینون در محلول شوند؛ بنابراین، در غلظت‌های بیشتر دیازینون، مقدار جذب و بازده حذف دیازینون بیشتر می‌شود. اثر غلظت اولیه آلاینده‌ها بر کارایی سیستم، در مطالعات زیادی بررسی شده است. در مطالعه حسینی و همکاران (۴۰) حذف دیازینون به وسیله فرآیند الکتروفتون و الکتروکواگولاسیون، غلظت‌های ۲ تا ۳۰۰ mg/L بررسی شده که حاکی از کاهش بازده با

ترکیبات آلی، ذرات کلوییدی و نمک‌ها می‌شوند. با افزایش بیشتر pH محیط به بالاتر از ۹، آنیون $Al(OH)_4^-$ تولید می‌شود که نقشی چندانی در حذف آلاینده‌ها ندارد (۳۴، ۳۵). از طرف دیگر، مقدار گاز هیدروژن تولیدی در این فرآیندها به‌عنوان عامل شناورسازی خود به pH وابسته است.

همان‌طور که اشاره شد، بیشترین بازده حذف دیازینون در این مطالعه، pH=۷ بود و در pHهای کمتر و بیشتر از ۷، بازده حذف پایین بود. در دیگر مطالعات انجام‌شده از این دست نیز، pH عامل مهمی در بازده فرآیند بوده است. عبد الجواد و همکاران، بهترین بازده حذف سم مالاتیون، کلرپیرفوس و ایمیداکلوپرید با الکتروود آهن را در pH ۶ تا ۷ به‌عنوان pH بهینه به‌دست آورده‌اند که با نتایج این مطالعه همخوانی دارد (۳۶)؛ درحالی‌که، در مطالعات انجام‌شده توسط بذرافشان و همکاران (۶) در حذف دیازینون با الکتروود آهن و مطالعه عمومی و همکاران در حذف دیازینون با الکتروود آلومینیوم، pH اسیدی به‌عنوان pH بهینه معرفی شده است (۳۲). از آنجا که pH بار صفر (نقطه‌ای از pH یک ماده که در آن بار روی سطح آن ماده صفر می‌باشد). pH_{ZPC} آلومینیوم ۹/۶ می‌باشد (۳۷)، در pH خنثی، بار کلی رسوب مثبت خواهد بود. به‌عبارتی، در انعقاد با pH کمتر از ZPC یون‌های مثبت ایجاد می‌شوند و رسوب براساس واکنش‌های زیر بار مثبت می‌یابد:



از آنجا که pKa دیازینون در دمای اتاق حدود ۲/۶ است؛ بنابراین، در pHهای بالاتر از این عدد دارای بار سطحی منفی می‌باشد که سبب ایجاد جاذبه‌های

افزایش غلظت اولیه دیازینون است؛ اما در مطالعه عمومی و همکاران (۳۲)، با افزایش غلظت اولیه دیازینون، بازده فرآیند در حذف دیازینون افزایش نشان داد که از این نظر با مطالعه حاضر همخوانی دارد.

تأثیر تغییرات دانسیته جریان بر کارایی فرآیند

دانسیته جریان الکتریکی در یک فرآیند الکترودی، مقدار جریان الکتریسیته اعمال شده بر واحد سطح الکتروود است. تأثیر تغییرات دانسیته جریان، از دیگر عوامل تأثیرگذار در حذف آلاینده‌ها در فرآیندهای الکتروکواکولاسیون می‌باشد. براساس مطالعه عمومی و همکاران (۳۲) بازده حذف دیازینون به مقدار منعقدکننده تولیدشده در فرآیند EC بستگی دارد. مقادیر نظری انحلال آلومینیوم در سل EC بر طبق قانون فارادی می‌تواند به صورت زیر بیان شود:

$$m = \frac{ItM}{zF} \quad \text{معادله ۲}$$

I: دانسیته جریان (A)

t: زمان فرآیند الکترودی (S)

m: جرم آلومینیوم حل شده (g)

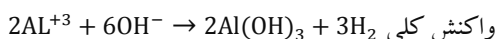
M: وزن اتمی آلومینیوم (g/mol)

z: تعداد الکترون‌های مبادله شده در فرآیند الکترودی (برای آلومینیوم ۳)

F: عدد فارادی (۹۶۴۸۷ c/mol)

در دانسیته‌های جریان بالا، مقدار Al^{3+} تولیدشده با انحلال آندی افزایش می‌یابد و منعقدکننده بیشتری براساس واکنش‌های آندی تولید می‌شود. مقدار آلومینیوم حل شده اغلب موجب افزایش کارایی الکتروکواکولاسیون و ناپایداری بیشتر ذرات کلئیدی می‌گردد. همچنین، میزان حباب تولیدی در فرآیند شناورسازی الکتریکی افزایش می‌یابد که اثر

مثبتی بر کارایی حذف آلاینده به واسطه شناورسازی با گاز هیدروژن دارد (۴۱، ۴۲)؛ بنابراین، افزایش دانسیته جریان باید با افزایش بازده حذف رابطه مستقیمی داشته باشد. از طرف دیگر، مقدار بسیار بالای منعقدکننده می‌تواند با مکانیسم‌های برگشتی موجب انحلال دوباره لجن تولیدی گردد که نشان می‌دهد مقدار دانسیته جریان باید به صورت بهینه، نه بیشینه، استفاده شود. این مسئله در تأثیر زمان فرآیند نیز می‌تواند کاربرد داشته باشد که نتایج این مطالعه مؤید وجود مقادیر بهینه، هم برای دانسیته جریان و هم برای زمان فرآیند است.



مطالعات زیادی در این زمینه توسط Chopra و همکاران (۴۳) و Balla (۴۴) و همکاران انجام شده است که با نتایج مطالعه حاضر همخوانی دارد.

تأثیر هدایت الکتریکی محلول بر کارایی فرآیند

به طور معمول برای افزایش هدایت الکتریکی محلول، ممانعت از غیرفعال شدن الکتروودها (جلوگیری از رسوب بر روی الکتروودها به عنوان عایق بین الکتروود و الکتروولیت) و نیز کاهش مصرف الکتریسیته، از نمک استفاده می‌شود. هنگامی که نمک الکتروولیت به محلول افزوده می‌شود، هدایت محلول و دانسیته جریان افزایش می‌یابد. قدرت یونی بیشتر معمولاً سبب افزایش دانسیته جریان در ولتاژ سل یکسان می‌شود یا ولتاژ سل با افزایش هدایت محلول در دانسیته جریان ثابت کاهش می‌یابد. در نتیجه، ولتاژ لازم برای رسیدن به دانسیته

تعویض سریع تر نقش الکترودها سبب کاهش اثر لایه عایق و در نتیجه، افزایش کارایی می شود. هراندازه تعداد پالس کمتر باشد، جریان به حالت متناوب نزدیک تر می شود. تعویض سریع تر نقش الکترودها در تعداد پالس های کمتر، سبب کاهش مصرف الکترودها و کاهش مصرف انرژی به دلیل پلاریزاسیون غلظتی و کاهش اثر لایه عایق می گردد (۴۷،۴۶).

امروزه بیشتر محققان در حیطه محیط زیست به دنبال روش هایی کارآمد و درعین حال اقتصادی برای تصفیه ی فاضلاب های صنعتی هستند. از آنجا که فرآیند روش الکتروکواگولاسیون/فلوتاسیون با جریان متناوب پالسی، بازده بالایی در حذف دیازینون و COD به ترتیب برابر با ۸۵ درصد و ۹۸/۶ درصد داشته است؛ در نتیجه نتایج قابل قبولی را برای استفاده از این روش در حذف سم دیازینون از فاضلاب های با غلظت بالا و تأمین استانداردهای زیست-محیطی تأیید می کند. البته این مطالعه لزوم استفاده از فرآیندهای تکمیلی برای رسیدن به استانداردهای آب آشامیدنی را نیز واضح می سازد.

سپاسگزاری

این مقاله برگرفته از پایان نامه کارشناسی ارشد مصوب مرکز تحقیقات بهداشت محیط کردستان می باشد که با حمایت مالی دانشگاه علوم پزشکی کردستان انجام شده است؛ بنابراین، نویسندگان این مقاله از حامیان مالی طرح و همکاران اجرایی تشکر می کنند. مسئولیت درست بودن همه نتایج و مطالب به عهده دانشجو است.

References

1. Real FJ, Benitez FJ, Acero JL, Gonzalez M. Removal of diazinon by various advanced oxidation processes. J Chem Technol Biotechnol. 2007; 82(6):566-574.
2. Larkin DJ, Tjeerdema RS. Fate and effects of diazinon. Rev Environ Contam Toxicol. 2000; 166:49-82.
3. Abd El-Aziz MI, Sahlab AM, Abd El-Khalif

جریان قطعی تقلیل یافته و انرژی الکتریکی مصرف شده کاهش می یابد (۴۵).

در این مطالعه، برای بررسی تأثیر هدایت الکتریکی محلول بر بازده حذف دیازینون با غلظت اولیه دیازینون 100 mg/L ، در $\text{pH}=7$ ، دانسیته جریان 46 A/m^2 ، در رنج $80-1800 \text{ } \mu\text{Siemens/cm}$ هدایت توسط نمک پتاسیم نترات تنظیم شد. مقدار دانسیته جریان استعمالی در الکترودها 46 A/m^2 بود. نتایج نشان داد که با افزایش هدایت تا مقدار معین $600 \text{ } \mu\text{Siemens/cm}$ ، بازده حذف افزایش یافته و بیشتر از این مقدار، بازده حذف کاهش می یابد. علت افزایش بازده تا $600 \text{ } \mu\text{Siemens/cm}$ را می توان به دلیل سهولت تبادل الکتریکی در الکترولیت ها توجیه کرد؛ همچنین، علت کاهش بازده در هدایت بیش از $600 \text{ } \mu\text{Siemens/cm}$ را نیز می توان به افزایش مزاحمت گونه های الکترولیت در فرآیندهای الکترودی نسبت داد.

تأثیر زمان و تعداد پالس بر کارایی فرآیند

زمان پالس که نشان دهنده زمان اعمال پالس و زمان آرامش یا عدم اعمال پالس بین هر دو پالس متوالی است، در صورتی که کاهش باید سبب کاهش اثر لایه عایق به دلیل زمان پالس کمتر برای هر پالس می شود. همچنین، با افزایش زمان پالس و به تبع آن، زمان آرامش، جریان از حالت پالسی بیشتر فاصله می گیرد و به حالت جریان مستقیم با فاصله های زمانی استراحت نزدیک می شود. هراندازه تعداد پالس که نشان دهنده تعداد پالس های هم قطب اعمال شده بر الکترودها است، کمتر باشد، به دلیل

- M. Influence of diazinon and deltamethrin on reproductive organs and fertility of male rats. *Deutsch Tierarztl Wochenschr.* 1994; 101(6):230-232.
4. Vittozzil L, Fabrizi L, Di Consiglio E, Testai E. Nechanistic aspects of organophorothionate toxicity in fish and humans. *Environ Int.* 2001; 26(3):125-129.
 5. Jeyaratnamj J, Lun KC, Phoon WO. Survey of acute pesticide poisoning among agricultural workers in four Asian countries. *Bull World Health Organ.* 1987; 65(4):521-527.
 6. Bazrafshan E, Mahvi AH, Nasserli S, Shaieghi M. Performance evaluation of electrocoagulation process for diazinon removal from aqueous environments by using iron electrodes. *Iran J Environ Health Sci Eng.* 2007; 4(2):127-132.
 7. Kobya M, Demirbas E, Can OT, Bayramoglu M. Treatment of levafix orange textile dye solution by electrocoagulation. *J Hazard Mater.* 2006; 132(2-3):183-188.
 8. Can OT, Bayramoglu M, Kobya M. Decolorization of reactive dye solutions by electrocoagulation using Aluminum electrodes. *Indusrt Eng Chem Res.* 2003; 42(14):3391-3396.
 9. Shin SH, Kim YH, Jung SK, Suh KH, Kang SG, Jeong SK, et al. Combined performance of electrocoagulation and magnetic separation processes for treatment of dye wastewater. *Korean J Chem Eng.* 2004; 21(4):806-810.
 10. Bayramoglu M, Kobya M, Can OT, Sozbir M. Operating cost analysis of electrocoagulation of textile dye wastewater. *Separat Purificat Technol.* 2004; 37(2):117-125.
 11. Janssen LJ, Koene L. The role of electrochemistry and electrochemical technology in environmental protection. *Chem Eng J.* 2002; 85(2):137-146.
 12. Kobya M, Bayramoglu M, Can OT. Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation using iron and aluminum electrodes. *J Hazard Mater.* 2003; 100(1-3):163-178.
 13. Bhatti MS, Reddy AS, Thukral AK. Electrocoagulation removal of Cr (VI) from simulated wastewater using response surface methodology. *J Hazard Mater.* 2009; 172(2):839-846.
 14. Chang EE, Hsing HJ, Ko CS, Chiang PC. Decolorization, mineralization, and toxicity reduction of acid orange 6 by iron-sacrificed plates in the electrocoagulation process. *J Chem Technol Biotechnol.* 2007; 82(5):488-495.
 15. Can OT, Kobya M, Demirbas E, Bayramoglu M. Treatment of the textile wastewater by combined electrocoagulation. *Chemosphere.* 2006; 62(2):181-187.
 16. Rubio J, Souza ML, Smith RW. Overview of flotation as a wastewater treatment technique. *Miner Eng.* 2002; 20(8):139-155.
 17. Mahmoudian MH, Amin MM, Shahmansouri MR, Ghasemian M. Treatment spent filter backwash water using dissolved air flotation (DAF) in Isfahan WTP. *Water Prac Technol.* 2008; 3(3):74-79.
 18. Patterson JW. *Industrial wastewater treatment technology.* 2nd ed. Stoneham, USA: Butterworth Publishers; 1985.
 19. Kaliniichuk EM, Vasilenko II, Shchepanyuk VY, Shukhaverkhova NA, Makarov IS. Treating refinery wastewaters to remove emulsified oils by electrocoagulation and electroflotation. *Int Chem Eng.* 1976; 16(3):434-435.

20. Merzouk B, Gourich B, Sekki A, Madani K, Chibane M. Removal turbidity and separation of heavy metals using electrocoagulation-electroflotation technique: a case study. *J Hazard Mater.* 2009; 164(1):215-222.
21. Mohora E, Rončević S, Dalmacija B, Agbaba J, Watson M, Karlović E, et al. Removal of natural organic matter and arsenic from water by electrocoagulation/flotation continuous flow reactor. *J Hazard Mater.* 2012; 235:257-264.
22. Vasudevan S, Lakshmi J, Sozhan G. Effects of alternating and direct current in electrocoagulation process on the removal of cadmium from water. *J Hazard Mater.* 2011; 192(1):26-34.
23. Maleki A, Daraei H, Alaei L, Abasi L, Izadi A. Dye removal probing by electrocoagulation process: modeling by MLR and ANN methods. *J Chem Soc Pak.* 2012; 34(5):1056-1069.
24. Maleki A, Daraei H, Shahmoradi B, Razei S, Ghobadi N. Electrocoagulation efficiency and energy consumption probing by artificial intelligent approaches. *Desalination Water Treat.* 2014; 52(13-15):2400-2411.
25. Hosseini G, Maleki A, Daraei H, Faez E, Shahamat YD. Electrochemical process for diazinon removal from aqueous media: design of experiments, optimization, and DLLME-GC-FID method for diazinon determination. *Arab J Sci Eng.* 2015; 40(11):3041-3046.
26. Maleki A, Mahvi AH, Daraei H, Rezaei R, Meihami N, Mohammadi K, et al. Influence of selected anions on fluoride removal in Electrocoagulation/ electroflotation. *Fluoride.* 2015; 48(1):45-55.
27. Zazouli MA, Yazdani Charati J, Alavinia M, Esfandyari Y. Efficiency of electrocoagulation process using aluminum electrode in hospital laundry wastewater pretreatment. *J Mazandaran Univ Med Sci.* 2016; 25(134):251-260.
28. Bazrafshan E, Mahvi AH, Zazouli MA. Removal of zinc and copper from aqueous solutions by electrocoagulation technology using iron electrodes. *Asian J Chem.* 2011; 23(12):5506-5510.
29. Xuhui M, Song H, Hua Z, Hui L, Lin W, Fuxing G. Alternating pulse current in electrocoagulation for wastewater treatment to prevent the passivation of Al electrode. *J Wuhan Univ Technol Mater Sci Ed.* 2008; 23(2):239-241.
30. Horwitz W. Standard methods in for the examination of water and wastewater. 20th ed. Washington DC: American Public Health Association; 2000.
31. Bazrafshan E, Mohammadi L, Balarak D, Keikhaei S, Mahvi AH. Optimization of diazinon removal from aqueous environments by electrocoagulation process using response surface methodology. *J Mazandaran Univ Med Sci.* 2016; 26(138):118-130.
32. Amooey AA, Ghasemi S, Mirsoleimani-azizi SM, Gholaminezhad Z, Chaichi MJ. Removal of Diazinon from aqueous solution by electrocoagulation process using aluminum electrodes. *Korean J Chem Eng.* 2014; 31(6):1016-1020.
33. Rahmani AR, Samarghandi MR. Electrocoagulation treatment of color solution containing colored index eriochrome black T. *J Water Wastewater.* 2009; 69:52-58.
34. Gao S, Yang J, Tian J, Ma F, Tu G, Du M. Electro-coagulation-flotation process for algae

- removal. *J Hazard Mater.* 2010; 177(1): 336-343.
35. Emamjomeh MM, Sivakumar M. Review of pollutants removed by electrocoagulation and electrocoagulation/flotation processes. *J Environ Manag.* 2009; 90(5):1663-1679.
36. Abdel-Gawad SA, Baraka AM, Omran KA, Mokhtar MM. Removal of some pesticides from the simulated waste water by electrocoagulation method using iron electrodes. *Int J Electrochem Sci.* 2012; 7:6654-665.
37. Qi F, Chen Z, Xu B, Shen J, Ma J, Joll C, et al. Influence of surface texture and acid-base properties on ozone decomposition catalyzed by aluminum (hydroxyl) oxides. *Appl Catal B Environ.* 2008; 84(3):684-690.
38. Kalantary RR, Dadban Shahamat Y, Farzadkia M, Esrafilit A, Asgharnia H. Heterogeneous photocatalytic degradation of diazinon in water using nano-TiO₂: modeling and intermediates. *Eur J Experimen Biol.* 2014; 4(1):186-194.
39. Vik EA, Carlson DA, Eikum AS, Gjessing ET. Electrocoagulation of potable water. *Water Res.* 1984; 18(11):1355-1360.
40. Hosseini G, Maleki A, Daraei H, Faez E, Shahamat YD. Electrochemical process for diazinon removal from aqueous media: design of experiments, optimization, and DLLME-GC-FID method for diazinon determination. *Arab J Sci Eng.* 2015; 40(11):3041-3046.
41. Golder AK, Samanta AN, Ray S. Removal of trivalent chromium by electrocoagulation. *Separat Purificat Technol.* 2007; 53(1):33-41.
42. Yazdanbakhsh AR, Massoudinejad MR, Arman K, Aghayani E. Investigating the potential of electrocoagulation-flotation (ECF) process for pollutants removal from olive oil mill wastewater. *J Appl Environ Biol Sci.* 2013; 3(3):22-28.
43. Chopra AK, Sharma AK, Kumar V. Overview of electrolytic treatment: an alternative technology for purification of wastewater. *Arch Appl Sci Res.* 2011; 3(5):191-206.
44. Balla W, Essadki AH, Gourich B, Dassaa A, Chenik, Azzi M. Electrocoagulation/electroflotation of reactive, disperse and mixture dyes in an external-loop airlift reactor. *J Hazard Mater.* 2010; 184(1):710-716.
45. El-Shazly AH, Al-Zahrani AA, Alhamed YA. Kinetics and performance analysis of batch electrocoagulation unit used for the removal of a mixture of phosphate and nitrate ions from industrial effluents. *Int J Electrochem Sci.* 2013; 8:3176-3185.
46. Eyvaz M, Kirlaroglu M, Aktas TS, Yuksel E. The effects of alternating current electrocoagulation on dye removal from aqueous solutions. *Chem Eng J.* 2009; 153(1):16-22.
47. Keshmirizadeh E, Yousefi S, Rofouei MK. An investigation on the new operational parameter effective in Cr (VI) removal efficiency: a study on electrocoagulation by alternating pulse current. *J Hazard Mater.* 2011; 190(1):119-124.