

مدل‌سازی فرایند الکتروفنتون در حذف دیازینون از آب‌های زیرزمینی با استفاده از روش سطح پاسخ

سعید احمدزاده^{۱*}، مریم دولت آبادی^۲

^۱ استادیار مرکز تحقیقات فراماسیوتیکس، انستیتو نوروفارماکولوژی، دانشگاه علوم پزشکی کرمان، کرمان، ایران
^۲ دانشجوی دکتری بهداشت محیط، مرکز تحقیقات علوم و فناوری های محیط زیست، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی شهید صدوقی یزد، یزد، ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۶/۳/۱۰؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۶/۷/۳۰

چکیده

زمینه و هدف: دیازینون یکی مهم‌ترین آفت‌کش‌هایی است که به طور گسترده در کشاورزی مورد استفاده قرار می‌گیرد. از آن جایی که این ترکیبات، مقاوم به تجزیه بیولوژیکی هستند و رود آن‌ها به منابع آبی به یک مشکل زیست محیط جدی تبدیل شده است لذا در این مطالعه با فرایند اکسیداسیون پیشرفته الکتروفنتون به بررسی پارامترهای مؤثر در حذف دیازینون از آب‌های زیر زمینی پرداخته خواهد شد.

مواد و روش‌ها: این مطالعه به صورت تجربی و در مقیاس آزمایشگاهی صورت پذیرفت و تأثیر پارامترهای عملیاتی مهم از جمله غلظت اولیه دیازینون ($1-30 \text{ mg.L}^{-1}$)، pH محلول (۹-۳)، دانسیته جریان ($1-10 \text{ mA.cm}^{-2}$)، زمان واکنش (۱۵-۲) و مقدار پر اکسید هیدروژن ($100-200 \text{ mL.L}^{-1}$) مورد بررسی قرار گرفت. بهینه سازی توسط نرم افزار طراحی آزمایش و از روش سطح پاسخ و تحلیل مدل پیشنهادی به روش آنالیز واریانس صورت پذیرفت.

یافته‌ها: راندمان حذف دیازینون تحت شرایط بهینه شامل غلظت اولیه دیازینون $6/88 \text{ mg.L}^{-1}$ ، pH برابر با ۳، زمان ۱۰ دقیقه، دانسیته جریان $8/18 \text{ mA.cm}^{-2}$ و میزان پر اکسید هیدروژن $83/78 \text{ mL.L}^{-1}$ برابر با $98/5$ درصد تعیین شد؛ و در این شرایط میزان مصرف انرژی برابر با $0/524 \text{ kWh.m}^{-3}$ می‌باشد. همچنین میزان غلظت دیازینون در آب زیرزمینی $0/934 \pm 0/053 \text{ } \mu\text{g.L}^{-1}$ اندازه گیری شد که مقدار آن بعد از اعمال فرایند الکتروفنتون تحت شرایط بهینه به صفر رسید. **نتیجه‌گیری:** بر اساس نتایج به دست آمده فرایند الکتروفنتون یک تکنیک کارآمد جهت حذف دیازینون و همچنین سایر ترکیبات آلی مقاوم به تجزیه بیولوژیکی از منابع آبی می‌باشد.

کلمات کلیدی: دیازینون، الکتروفنتون، تجزیه، روش سطح پاسخ، اکسیداسیون پیشرفته.

مقدمه

آب یکی از اجزای مهم چرخه زندگی انسان و سایر موجودات محسوب می‌شود. کیفیت، نگهداری و جلوگیری از آلوده شدن آن توسط آلاینده‌های آلی، معدنی و بیولوژیکی از اهمیت خاصی برخوردار می‌باشد. آفت‌کش‌ها یکی از آلاینده‌های آلی می‌باشند که به علت رشد روزافزون جمعیت و افزایش نیاز به تولیدات کشاورزی و مواد غذایی و همچنین کنترل بیماری‌های منتقله توسط آفات، استفاده از آن‌ها در بخش کشاورزی افزایش یافته است اما به دلیل عدم آشنایی مصرف‌کننده‌ها از اثرات زیان بار این سموم و اصول صحیح سم پاشی، این کار به طور ناقص و یا بی رویه صورت می‌گیرد.^۱ در سال‌های اخیر آلودگی آب‌های سطحی و زیرزمینی با سموم مختلف توسط بسیاری از محققین گزارش شده است.^{۲-۴} آفت‌کش‌ها می‌توانند از طریق نفوذ زهاب‌های آلوده در لایه‌های خاک و سفره آب‌های زیرزمینی راه یابند؛ و همچنین توسط جریان‌ات سطحی باعث آلودگی منابع آب شوند. از آفت‌کش‌های مورد استفاده در جهان می‌توان به آفت‌کش‌های ارگانوکلره، ارگانوفسفره، کاربامات و پیریتریدها اشاره کرد. سموم ارگانوکلره به دلیل ایجاد مقاومت در آفات گیاهی به میزان کمتری مورد استفاده قرار می‌گیرد ولی سموم ارگانو فسفره و کاربامات برای مبارزه با آفات گیاهی بیشترین میزان مصرف را به دلیل در دسترس بودن و ارزان بودن و همچنین به دلیل اینکه بر طیف وسیعی از آفات اثر می‌کنند، به خود اختصاص داده‌اند. ترکیبات ارگانوفسفره بزرگ‌ترین و متنوع‌ترین گروه آفت‌کش‌های موجود هستند و حدود ۴۰ درصد آفت‌کش‌های ثبت شده در جهان را تشکیل می‌دهند. دیازینون یکی از حشره‌کش‌های ارگانو فسفره می‌باشد که برای کنترل انواع حشرات در محصولات کشاورزی، گیاهان زینتی، و میوه و سبزیجات استفاده می‌شود. این ترکیبات با فسفریلاسیون جایگاه فعال آنزیم کولین استراز باعث مهار عملکرد آنزیم می‌شود. سمیت این سم از نظر سازمان بهداشت جهانی جزء مواد با خطر متوسط می‌باشد که در دسته II طبقه

بندی می‌گردند و برای موجودات آبی در حد ۳۵۰ نانو گرم بر لیتر است و دز کشنده آن برای انسان، حدود ۹۰ تا ۴۴۴ میلی گرم در هر کیلوگرم وزن انسان گزارش شده است.^۵ حداکثر غلظت مجاز دیازینون توسط اتحادیه اروپا ۰/۱ میکروگرم در لیتر تعیین شده است.^۶ مشکلات و پیامدهای حضور دیازینون در آب بر حسب غلظت آن متفاوت بوده است به طوری که عوارض کوتاه مدت مانند سردرد، درد در ناحیه شکم، سرگیجه، سردرد، دو بینی، تهوع، مشکلات پوستی و چشمی می‌باشد و از عوارض بلند مدت آن می‌توان به افزایش احتمال بروز مشکلات تنفسی، اختلالات حافظه، اسپریدگی، پارکینسون، سرطان و ناباروری اشاره کرد.^{۵، ۷، ۸} بنابراین لزوم حذف آن‌ها از منابع آبی از اهمیت خاصی برخوردار می‌باشد. تاکنون روش‌های مختلفی از جمله تکنیک‌های جذب سطحی،^۷ فیلتراسیون،^۹ فرایندهای بیولوژیکی،^{۱۰} انعقاد الکتریکی^{۱۱} و ... جهت حذف دیازینون مورد بررسی قرار گرفته است. هر کدام از روش‌های ذکر شده دارای مزایا و محدودیت‌هایی می‌باشند به عنوان مثال تکنیک‌های جذب سطحی با توجه به طراحی ساده و سهولت در مدیریت، دارای راندمان پایین در غلظت‌های بالای آلاینده بوده و همچنین نیازمند احیاء جاذب می‌باشند. از طرف دیگر، روش‌های فیلتراسیون دارای راندمان بالایی در تصفیه می‌باشند اما برای حذف آلاینده‌ها با وزن‌های مولکولی بالا کارایی چندانی نداشته و مشکل گرفتگی غشاء‌ها مشاهده می‌گردد و همچنین غشاء‌ها نیازمند نگهداری دقیق می‌باشند. فرایندهای بیولوژیکی نیز به دلیل اینکه در غلظت‌های بالای آلاینده، اثر بازدارندگی بر فعالیت بیولوژیکی میکروارگانیسم‌های مسئول تجزیه فاضلاب داشته و در امر تصفیه اختلال ایجاد می‌کنند با محدودیت مواجه شده‌اند. همچنین روش‌های انعقاد الکتریکی علی‌رغم کارایی بالایی که دارند به دلیل تولید لجن نیازمند تاسیسات دفع لجن می‌باشند. لذا با توجه به محدودیت‌ها و نواقص موجود در فرایندهای ذکر شده فوق، می‌توان با کاربرد فناوری‌های نوین نظیر

مشخص به راکتور اضافه گردید. تعیین غلظت دیازینون با استفاده از دستگاه HPLC و (C₁₈ column 250×4.6×5 mm) با فازهای متحرک متانول و آب (۷۰/۳۰) طول موج ۲۲۰ نانومتر سرعت جریان ۰/۸ mL/min مورد سنجش قرار گرفت.^{۱۴} آنالیز داده‌ها توسط نرم افزار طراحی آزمایش انجام شد میزان راندمان حذف و مصرف انرژی با استفاده از معادله ۱ و ۲ محاسبه شد.^{۱۴، ۱۵}

$$\% \text{Removal} = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100 \quad (۱)$$

C₀: غلظت اولیه دیازینون (میلی گرم بر لیتر)،

C_t: غلظت دیازینون بعد از واکنش (میلی گرم بر لیتر)

$$E = \left(\frac{Ult}{V} \right) \quad (۲)$$

U: ولتاژ مصرفی بر حسب ولت، I: جریان بر حسب آمپر،

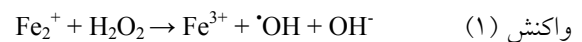
t: زمان بر حسب ساعت، V: حجم راکتور بر حسب لیتر و E:

میزان انرژی بر حسب (kwh.m⁻³)^{۱۵}.

طرح آزمایش و تحلیل آماری

طراحی مطالعه با استفاده از نرم افزار طراحی آزمایش (Design Expert) و به منظور تعیین فاکتورهای اصلی و اثر متقابل بین آن‌ها و اثرات مربعی، با هدف کمترین تعداد آزمایش و صرفه جویی در زمان و هزینه، از روش شناسی سطح پاسخ (Response Surface Methodology (RSM)) زیر شاخه طرح مرکب مرکزی (Central Composite Design (CCD))، استفاده شد. روش شناسی سطح پاسخ، شیوه ای است که به برآورد رابطه میان یک یا تعدادی متغیر پاسخ با تعدادی متغیر مستقل، از طریق مجموعه ای از آزمایش‌های طراحی شده و روش‌های تحلیل رگرسیون اختصاص دارد. در این مطالعه با استفاده از نرم افزار طراحی آزمایش به بررسی تأثیر فاکتورهای غلظت اولیه دیازینون، دانسیته جریان و غلظت پراکسید هیدروژن بر فرآیند حذف دیازینون در ۵ سطح مطابق جدول ۱ پرداخته شد.

اکسیداسیون پیشرفته، فرایندهای تصفیه ای را بهبود بخشید. در این میان فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته الکتروفنتون با توجه به ویژگی‌های منحصر به فرد از جمله راندمان قابل توجه در غلظت‌های بالای آلاینده، زمان واکنش بسیار پایین، امکان معدنی سازی آلاینده‌ها و لجن بسیار کم و ... مورد توجه بسیاری از محققان قرار گرفته است. فرایند فنتون فرایندی است که در آن به صورت همزمان یون آهن دو ظرفیتی و هیدروژن پر اکسید جهت اکسیداسیون آلاینده‌ها مورد استفاده قرار می‌گیرد (واکنش ۱ و ۲) رادیکال هیدروکسیل قادر است به سرعت با ترکیبات آلی وارد واکنش شود و با هیدروکسیله کردن و یا هیدروژنه کردن این ترکیبات، طی یک مکانیسم رادیکالی تا معدنی کردن کامل این ترکیبات پیش برود.^{۱۲، ۱۱}



اگر در فرایند فنتون به جای استفاده از یون آهن از جریان الکتروسیسته و الکتروود آهن جهت تولید یون آهن دو ظرفیتی استفاده شود این فرایند الکتروفنتون نامیده می‌شود؛^{۱۳} لذا در این مطالعه به کارایی فرایند الکتروفنتون در حذف دیازینون آب‌های زیرزمینی و بررسی پارامترهای مؤثر از جمله زمان واکنش، pH محلول، غلظت اولیه دیازینون، دانسیته جریان و میزان پر اکسید هیدروژن پرداخته شد.

مواد و روش‌ها

این مطالعه به صورت تجربی و در مقیاس آزمایشگاهی انجام شد و از یک راکتور با جریان ناپیوسته و از جنس پلکسی گلاس با ابعاد ۸×۶×۶ و حجم مفید ۲۵۰ میلی لیتر و دو الکتروود از جنس آهن با ابعاد ۴×۱ جهت انجام آزمایشات استفاده شد از اسید سولفوریک و سود برای جهت تنظیم pH، و از منبع تغذیه MEGATEK-3005D برای تنظیم دانسیته جریان و از نمک Na₂SO₄ در غلظت ۵۰ mg.L⁻¹ به عنوان الکتروولیت استفاده شد؛ و H₂O₂ به صورت دستی و در مقادیر

جدول ۱: متغیرها و محدوده مورد مطالعه

فاکتور	واحد	علامت کد شده	علامت واقعی	سطوح		
				$-\alpha$	-۱	صفر
غلظت دیازینون	mg.L^{-1}	X_1	A	۱	۶/۸۷	۱۵/۵
دانسیته جریان	mA.cm^{-2}	X_2	B	۱	۲/۸۲	۵/۵
غلظت H_2O_2	$\mu\text{L.L}^{-1}$	X_3	C	۲۰	۳۶/۲۱	۶۰

استفاده از ضرایب به دست از R^2 و مقادیر R^2 متعادل شده $R^2 \text{Adj}$ و مورد ارزیابی قرار گرفت $p < 0.05$ به عنوان معنی‌داری مناسب در نظر گرفته شد ^{۱۹،۱۸}.

یافته‌ها

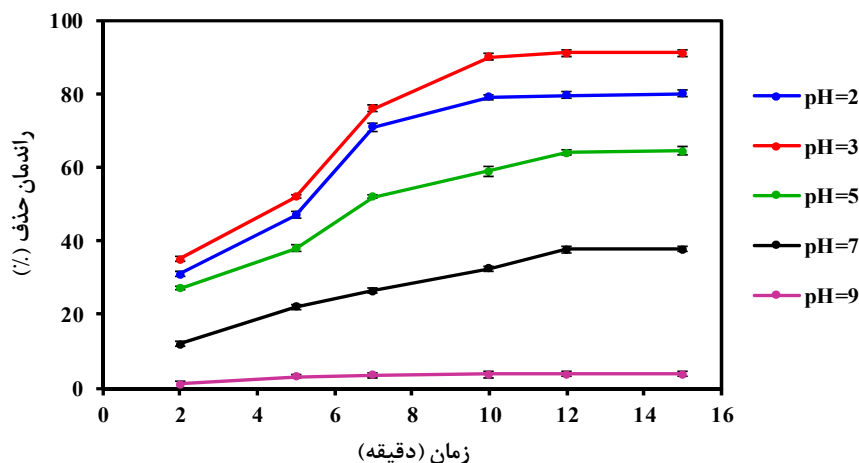
تأثیر pH محلول

در این مطالعه تأثیر pH در محدوده ۲ تا ۹ مورد بررسی قرار گرفت همان‌گونه که در نمودار ۱ نشان داده شده است بیشترین راندمان حذف در pH برابر با ۳ به میزان ۹۱/۶۵٪ در زمان واکنش ۱۰ دقیقه به دست آمد و با افزایش pH راندمان حذف به شدت کاهش می‌یابد به گونه‌ای که در pH برابر با ۹ راندمان حذف به ۳/۷٪ می‌رسد. همچنین در pH های کمتر از ۳ راندمان حذف افت می‌کند به طوری که در pH برابر با ۲ راندمان حذف پس از ۱۰ دقیقه به ۸۰/۳۴٪ می‌رسد.

همچنین راندمان حذف به عنوان پاسخ در طراحی آزمایشات انتخاب شد که در جدول ۲ نشان داده شده است. پس از انجام آزمایشات و وارد کردن مقادیر پاسخ در جدول طراحی آزمایش نرم افزار، انتخاب مدل صورت گرفت. جهت تجزیه و تحلیل داده‌ها از آزمون آنالیز واریانس ANOVA استفاده شد متغیر پاسخ در قالب مدل رگرسیون چند جمله‌ای که در معادله ۳ نمایش داده شده است به صورت تابعی از متغیرهای مستقل ارائه گردید ^{۱۷،۱۵}.

$$Y = b_0 + \sum_{i=1}^n b_i x_i + \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n b_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^n b_{ii} x_i^2 \quad (3)$$

در معادله فوق، Y متغیر پاسخ، b_0 عرض از مبدأ، b_i ضریب رگرسیون محاسبه شده از مقادیر بدست آمده از Y و X_i سطوح کد گذاری شده از متغیرهای مستقل است، بخش‌های X_i^2 و $X_i X_j$ به ترتیب شامل ضوابط برهمکنش (اثر متقابل) و اثر درجه دوم می‌باشد. کیفیت برازش معادله با و



نمودار ۱: تأثیر pH بر راندمان حذف دیازینون (غلظت اولیه دیازینون 10 mg.L^{-1} ، غلظت پراکسید هیدروژن $70 \mu\text{L.L}^{-1}$ و دانسیته جریان 5 mA.cm^{-2})

جدول ۲: طراحی آزمایشات سطح پاسخ بر اساس مقادیر کد شده و واقعی

شماره اجرا	مقدار کد شده			مقدار واقعی			راندمان حذف	راندمان حذف پیش بینی شده (%)
	X ₃	X ₂	X ₁	A (mg.L ⁻¹)	B (mA.cm ⁻²)	C (μL.L ⁻¹)		
۱	۱/۶۸	۰	۰	۱۵/۵۰	۵/۵۰	۱۰۰/۰۰	۶۲/۳۷	۶۱/۶۵۸۴
۲	-۱	-۱	-۱	۶/۸۸	۲/۸۲	۳۶/۲۲	۵۴/۳۶	۵۳/۴۲۶۵
۳	۰	۱/۶۸	۰	۱۵/۵۰	۱۰/۰۰	۶۰/۰۰	۷۱/۴۵	۷۲/۲۶۹۰
۴	۰	۰	۰	۱۵/۵۰	۵/۵۰	۶۰/۰۰	۸۸/۴۰	۸۸/۵۶۳۱
۵	-۱	-۱	۱	۲۴/۱۲	۲/۸۲	۳۶/۲۲	۴۴/۲۵	۴۲/۶۸۴۳
۶	۱	-۱	۱	۲۴/۱۲	۲/۸۲	۸۳/۷۸	۴۲/۵۰	۴۳/۴۷۸۲
۷	۰	۰	۰	۱۵/۵۰	۵/۵۰	۶۰/۰۰	۸۴/۵۰	۸۳/۵۹۲۶
۸	-۱	۱	۱	۲۴/۱۲	۸/۱۸	۳۶/۲۲	۵۰/۲۵	۵۱/۵۹۷۲
۹	۱	-۱	-۱	۶/۸۸	۲/۸۲	۸۳/۷۸	۷۲/۲۵	۷۰/۳۶۸۲
۱۰	۰	۰	۰	۱۵/۵۰	۵/۵۰	۶۰/۰۰	۸۶/۶۷	۸۷/۶۷۹۲
۱۱	۱	۱	-۱	۶/۸۸	۸/۱۸	۸۳/۷۸	۹۸/۵۰	۹۷/۵۹۹۲
۱۲	۱	۱	۱	۲۴/۱۲	۸/۱۸	۸۳/۷۸	۷۰/۸۰	۷۱/۶۹۸۷
۱۳	۰	۰	۱/۶۸	۳۰/۰۰	۵/۵۰	۶۰/۰۰	۶۹/۴۶	۶۸/۴۲۵۸
۱۴	۱/۶۸	۰	۰	۱۵/۵۰	۵/۵۰	۲۰/۰۰	۳۸/۲۵	۳۷/۵۶۴۲
۱۵	۰	۰	۱/۶۸	۱/۰۰	۵/۵۰	۶۰/۰۰	۹۸/۹۵	۹۹/۵۹۴۸
۱۶	-۱	۱	-۱	۶/۸۸	۸/۱۸	۳۶/۲۲	۵۶/۰۰	۵۶/۵۶۸۷
۱۷	۰	۰	۰	۱۵/۵۰	۵/۵۰	۶۰/۰۰	۸۵/۵۴	۸۴/۶۵۹۸
۱۸	۰	۱/۶۸	۰	۱۵/۵۰	۱/۰۰	۶۰/۰۰	۳۷/۵۰	۳۷/۵۴۳۲
۱۹	۰	۰	۰	۱۵/۵۰	۵/۵۰	۶۰/۰۰	۸۷/۱۰	۸۸/۲۳۸۴
۲۰	۰	۰	۰	۱۵/۵۰	۵/۵۰	۶۰/۰۰	۸۶/۳۶	۸۵/۷۰۴۶

مدل سازی فرایند حذف دیازینون

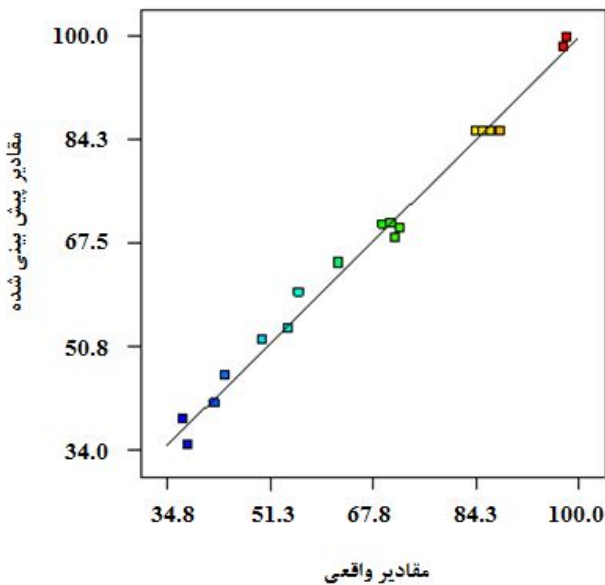
از آن جایی که فرایند الکتروفتون در pH برابر با ۳ و زمان واکنش ۱۰ دقیقه به تعادل می‌رسد در ادامه مطالعه با استفاده از طرح مرکب مرکزی با ثابت در نظر گرفتن این دو پارامتر به بهینه سازی پارامترهای غلظت اولیه دیازینون، غلظت پر اکسید هیدروژن، دانسیته جریان یا استفاده از طرح مرکب مرکزی پرداخته شد که راندمان حذف (پاسخ) مشاهده شده و پیش بینی شده در جدول شماره ۲ نشان داده شده است.

نتایج آنالیز واریانس ANOVA برای فاکتورهای مؤثر در مدل، در جدول ۳ ارائه گردیده است. در جدول فوق C, B, A نشان دهنده‌ی اثر اصلی متغیرهای مستقل به ترتیب شامل غلظت اولیه دیازینون، دانسیته جریان و غلظت پر اکسید هیدروژن می‌باشد. همانطور که جدول نشان می‌دهد مقدار P-Value برای مدل کمتر از ۰/۰۰۰۱ تعیین شد. و برای آماره عدم برازش ۰/۰۵۲ محاسبه شد.

جدول ۳: نتایج آنالیز واریانس برای مدل راندمان حذف دیازینون

فاکتور	مجموع مربعات	درجه آزادی	میانگین مربعات	F-Value	p-value
مدل	۷۵۷۸/۹۹	۷	۱۰۸۲/۷۱	۱۸۶/۵۳	<۰/۰۰۰۱
A	۱۱۰۶/۱۶	۱	۱۱۰۶/۱۶	۱۹۰/۵۷	<۰/۰۰۰۱
B	۱۰۴۱/۹۲	۱	۱۰۴۱/۹۲	۱۷۹/۵۰	<۰/۰۰۰۱
C	۱۰۵۰/۱۱	۱	۱۰۵۰/۱۱	۱۸۰/۹۱	<۰/۰۰۰۱
AC	۲۱۶/۲۲	۱	۲۱۶/۲۲	۳۷/۲۵	<۰/۰۰۰۱
BC	۲۷۵/۰۷	۱	۲۷۵/۰۷	۴۷/۳۹	<۰/۰۰۰۱
B ²	۱۸۶۰/۷۳	۱	۱۸۶۰/۷۳	۳۲۰/۵۷	<۰/۰۰۰۱
C ²	۲۳۷۶/۹۶	۱	۲۳۷۶/۹۶	۴۰۹/۵۱	<۰/۰۰۰۱
باقی مانده‌ها ^۱	۶۹/۶۵	۱۲	۵/۸۰	-	-
عدم برازش ^۲	۶۰/۷۴	۷	۸/۶۸	۴/۸۷	۰/۰۵۲
خطای خالص ^۳	۸/۹۱	۵	۱/۷۸	-	-
مجموع تصحیحات ^۴	۷۶۴۸/۶۴	۱۹	-	-	-
ضریب تغییرات ^۵			۳/۴۸		
ضرایب همبستگی ^۶					
	Pred.R ² =۰/۹۶۰۲		Adj.R ² =۰/۹۸۵۶		R ² =۰/۹۹۰۹

^۱ (Residual), ^۲ (Lack of fit), ^۳ (Pure error), ^۴ (Cor. Total), ^۵ (Coefficient of variation), ^۶ (Correlation coefficient)



نمودار ۲: برازش مقادیر مشاهده شده تجربی در برابر مقادیر پیش‌بینی شده

مدل ارائه شده به صورت مدل اصلاح شده برای کارایی حذف دیازینون در معادله (۴) بیان شده است در این رابطه، X_1, X_2, X_3 به ترتیب مقادیر کد شده فاکتورهای غلظت اولیه دیازینون، دانسیته جریان و غلظت پراکسید هیدروژن می‌باشد.

$$Y_{(%) } = 85.72 - 9.0X_1 + 8.73X_2 + 8.77X_3 - 5.20X_1X_3 + 5.86X_2X_3 - 11.31X_2^2 - 12.78X_3^2 \quad (4)$$

با توجه به جدول ۳ می‌توان دریافت که در مدل برازش شده، مقادیر عددی ضریب همبستگی (R^2)، ضریب همبستگی تعدیل شده ($Adj.R^2$) و ضریب همبستگی پیش‌بینی شده ($Pred.R^2$) تفاوت محسوسی با همدیگر ندارند که بیانگر همبستگی بسیار خوب بین نتایج به دست آمده با روش تجربی و مقادیر پیش‌بینی شده با روش آماری است. نمودار ۲ همپوشانی مقادیر پیش‌بینی شده در مقابل مقادیر مشاهده شده را نشان می‌دهد.

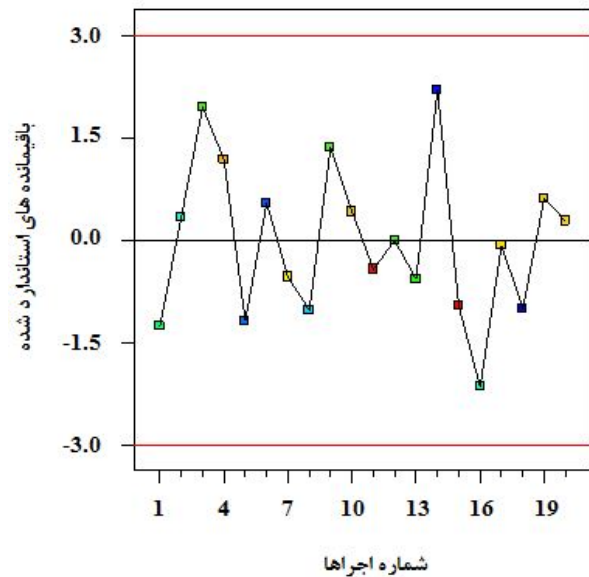
اثر متغیرها بر فرایند آنالیز پارتو

اهمیت هر کدام از اثرات اصلی، مداخله ای و مربعی در کارایی حذف دیازینون از طریق آنالیز پارتو مطابق معادله ۵ تعیین شد. ۱۵.۲۰

$$P_i = \frac{b_i^2}{\sum b_i^2} \times 100 \quad (i \neq 0) \quad (5)$$

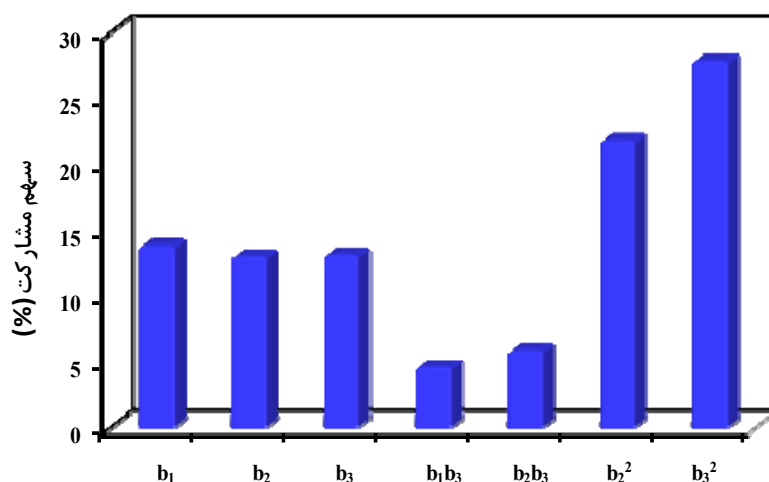
در این معادله P_i در صد مشارکت هر اثر، b_i ضریب تأثیر هر اثر می باشد نتایج این آنالیز به صورت گرافیکی در نمودار ۴ نشان داده است.

همان طور که آنالیز پارتو نشان می‌دهد اثر مربعی غلظت پراکسید هیدروژن X_3^2 و دانسیته جریان X_2^2 به ترتیب با ۲۷/۸۳٪ و ۲۱/۷۹٪ بیشترین تأثیر را در کارایی حذف به خود اختصاص داده‌اند و پس از آن اثر اصلی غلظت اولیه دیازینون فاکتور X_1 با سهم ۱۳/۸۰٪ سومین پارامتر مؤثر معرفی شد؛ و پس از آن اثرات اصلی غلظت پراکسید هیدروژن X_3 و دانسیته جریان X_2 و به ترتیب با درصد مشارکت ۱۳/۱۱٪ و ۱۳/۰٪ و اثرات مداخله ای دانسیته جریان و غلظت پراکسید هیدروژن به ترتیب با ضرایب ۵/۸۶٪ و ۴/۶۱٪ کمترین تأثیر را در فرایند از خود نشان دادند.



نمودار ۳: باقیمانده های استاندارد شده در مقابل هر اجرای آزمایش

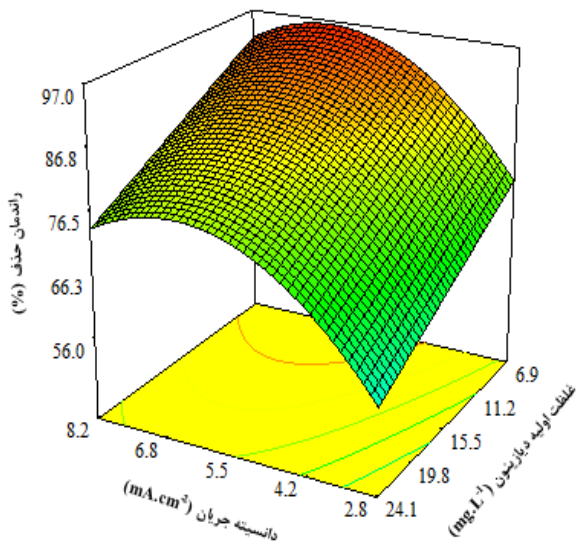
همچنین مقدار باقیمانده های استاندارد شده در مقابل هر اجرای آزمایش در نمودار ۳ نمایش داده شده است. با توجه به این نمودار می‌توان نتیجه گیری کرد که برای کلیه اجراهای انجام گرفته، مقادیر باقیمانده های استاندارد شده در محدوده قابل قبول قرار دارند.



نمودار ۴: آنالیز پارتو

تأثیر غلظت اولیه دیازینون

غلظت اولیه آلاینده یکی از فاکتورهای مهم و تأثیرگذار در فرایند الکتروفتون می‌باشد در این مطالعه غلظت اولیه دیازینون در محدوده $1-30 \text{ mg.L}^{-1}$ مورد مطالعه قرار گرفت نتایج به دست آمده نشان داد که غلظت اولیه دیازینون تأثیر منفی در کارایی حذف دارد به طوری که با افزایش فاکتور A (غلظت اولیه دیازینون) از سطح ۱- ($6/88$ میلی گرم بر لیتر) به $1+$ ($24/12$ میلی گرم بر لیتر) کارایی حذف از $94/71$ به $76/72$ ٪ کاهش می‌یابد مطابق با آنالیز پارتو، غلظت اولیه دیازینون سومین فاکتور مؤثر بر راندمان حذف می‌باشد.

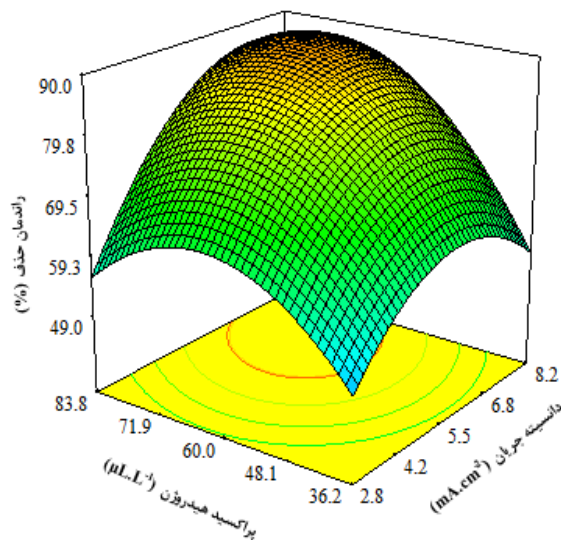


نمودار ۵: تأثیر غلظت اولیه دیازینون و دانسیته جریان (غلظت H_2O_2 برابر با $60 \mu\text{L.L}^{-1}$).

نتایج به دست آمده نشان داد که غلظت پراکسید هیدروژن تأثیر نیمه مستقیمی با راندمان حذف دارد به طوری که مطابق با آنالیز پارتو، اولین و مهم‌ترین فاکتور مؤثر بر راندمان حذف شناخته شد.

تأثیر دانسیته جریان

در تمامی فرایندهای الکتروشیمی دانسیته جریان یکی از مهم‌ترین عامل تعیین کننده کارایی حذف و میزان مصرف انرژی می‌باشد. همچنین افزایش چگالی جریان با افزایش فلز تولیدی ناشی از حل شدن آن نیز همراه است. که در این مطالعه دانسیته جریان در محدوده 1 تا 10 mA.cm^{-2} مورد بررسی قرار گرفت. اثر دانسیته جریان و غلظت اولیه دیازینون در نمودار ۵ نشان داده شده است. با توجه به نمودار ۵ با افزایش فاکتور B (دانسیته جریان) از سطح $1- (\text{mA.cm}^{-2})$ به $1+ (\text{mA.cm}^{-2})$ کارایی حذف از $65/67$ به $83/14$ ٪ افزایش می‌یابد؛ و در دانسیته جریان برابر با $6/47 \text{ mA.cm}^{-2}$ به حداکثر خود می‌رسد و پس از آن با شیب ملایم‌تری کاهش می‌یابد.



نمودار ۶: تأثیر دانسیته جریان و میزان پراکسید هیدروژن (غلظت اولیه دیازینون $15/5 \text{ mg.L}^{-1}$)

تأثیر پراکسید هیدروژن

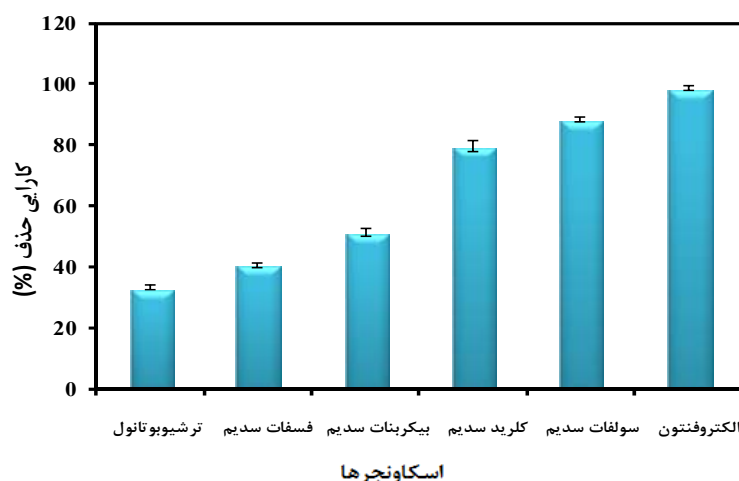
حضور پراکسید هیدروژن به دلیل تولید رادیکال هیدروکسیل، تأثیر شگرفی در کارایی حذف دارد. در این مطالعه غلظت پراکسید هیدروژن در $100-20 \mu\text{L.L}^{-1}$ مورد مطالعه قرار گرفت.

الکتروکوآگولاسیون (آزمایش الکتروفتون بدون حضور پراکسید هیدروژن) می‌باشد، انجام گردید که نشان دهنده ی راندمان حذف ۳/۲۱٪ بود این در حالیست که با اضافه کردن مقدار بهینه پراکسید هیدروژن راندمان حذف ۹۸/۵٪ مشاهده می‌گردد. نتایج بدست آمده مبین این است که سهم فرایند الکتروکوآگولاسیون فقط محدود به ۳/۲۱٪ می‌باشد. دومین آزمون تائیدی که ناظر بر فرایند شبه فتون (آزمایش الکتروفتون در عدم حضور جریان الکتریکی) می‌باشد، انجام گردید که نشان دهنده ی راندمان حذف ۰/۶۸٪ بود که نشان دهنده سهم بسیار ناچیز فرایند شبه فتون می‌باشد. نهایتاً سومین آزمون تائیدی که ناظر بر تاثیر حضور اسکاونجرها بر راندمان حذف دیازینون طی فرایند الکتروفتون می‌باشد، با استفاده از غلظت‌های ۰/۵ مولار از اسکاونجرهای ترشیو بوتانول، کلرید سدیم، بیکربنات سدیم، فسفات سدیم و سولفات سدیم در شرایط بهینه مورد مطالعه قرار گرفت که نتایج حاصله در نمودار ۷ نشان داده شده است. نتایج بدست آمده نشان می‌دهد که راندمان حذف دیازینون طی فرایند الکتروفتون در حضور اسکاونجرها کاهش می‌یابد و کمترین راندمان حذف مشاهده شده مربوط به ترکیب ترشیو بوتانول با ۳۳/۱۵٪ و فسفات سدیم ۴۰/۵٪ می‌باشد.

با توجه به نمودار ۶ اگر دانسیته جریان برابر با $6/7 \text{ mA.cm}^{-2}$ باشد در غلظت $64/83 \mu\text{L.L}^{-1}$ از پراکسید هیدروژن حداکثر راندمان حذف دیازینون ۸۹/۹۳٪ مشاهده می‌شود و با افزایش پراکسید هیدروژن بیش از این مقدار، راندمان حذف افت می‌کند به طوریکه اگر غلظت پراکسید هیدروژن به $83/78 \mu\text{L.L}^{-1}$ برسد کارایی حذف دیازینون ۸۱/۷۰٪ می‌رسد. شرایط بهینه معرفی شده توسط نرم افزار به همراه مقدار بازدهی فرایند تحت شرایط بهینه در جدول شماره ۴ نمایش داده شده است. همانطور که از مقدار عددی ۰/۹۸۸ مربوط به مطلوبیت مدل بر می‌آید راندمان حذف پیش بینی شده توسط مدل در توافق قابل قبولی با راندمان حذف تجربی بدست آمده می‌باشد.

مطالعات مکانیسم حذف

جهت تعیین مکانیسم حذف، سه آزمون تائیدی شامل فرایند الکتروکوآگولاسیون، شبه فتون و اسکاونجرها مورد مطالعه قرار گرفت. تحت شرایط بهینه شامل غلظت اولیه دیازینون $6/88 \text{ mg.L}^{-1}$ ، pH برابر با ۳، زمان ۱۰ دقیقه، دانسیته جریان $8/18 \text{ mA.cm}^{-2}$ و میزان پراکسید هیدروژن $\mu\text{L.L}^{-1}$ ۸۳/۷۸ اولین آزمون تائیدی که در واقع ناظر بر فرایند



نمودار ۷: تأثیر اسکاونجرها در فرایند الکتروفتون در شرایط بهینه

جدول ۴: شرایط بهینه تعیین شده توسط نرم افزار در pH=۳ و زمان ۱۰ دقیقه

غلظت دیازینون (mg.L ⁻¹)	دانسیته جریان (mA.cm ⁻²)	غلظت H ₂ O ₂ (μL.L ⁻¹)	مطلوبیت	راندمان حذف تجربی (%)	راندمان حذف پیش بینی شده (%)	میزان مصرف انرژی (kWh.m ⁻³)
۶/۸۸	۸/۱۸	۸۳/۷۸	۰/۹۸۸	۹۸/۵	۹۷/۵۹	۰/۵۲۴

نمونه واقعی

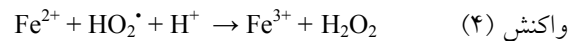
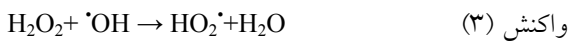
به منظور تعیین غلظت دیازینون در آب‌های زیر زمینی و همچنین کارایی و قابلیت اجرای فرایند الکتروفتون در تصفیه آب، از نمونه واقعی آب‌های زیرزمینی جهت استفاده شد بدین صورت که در هنگام نمونه برداری جهت جلوگیری از تجزیه دیازینون، در هر بطری بعد از برداشت نمونه ۱۰cc دی‌کلورفرم اضافه شد نمونه‌های جمع آوری شده در بطری ۲۵۰ در کنار کیسه یخ نگهداری شد استخراج آفت کش‌ها به صورت زیر انجام گرفت که ۲۵۰ میلی لیتر نمونه داخل قیف دکانتور ریخته و ۲ میلی لیتر کلرور سدیم اشباع به آن اضافه شد عمل جداسازی در سه مرحله با افزودن ۱۵/۵، ۱۲، ۱۲/۵ دی کلرومتان ادامه یافت. فاز آلی نمونه‌ها در هر مرحله جدا شد، سپس ۷ گرم سولفات سدیم انیدرید به آن اضافه گردید تا عاری از آب شود حجم محلول آلی جدا شده و در دمای آزمایشگاه تبخیر شد سپس باقی مانده مورد آنالیز قرار گرفت.^{۱۴} مطابق با این روش، غلظت سم دیازینون در آب‌های زیر زمینی ۰/۰۵۳ ± ۰/۹۳۴ میکروگرم در لیتر اندازه گیری شد که نشان دهنده غلظت بالای این سم در آب‌های زیرزمینی می‌باشد و تحت شرایط بهینه شامل pH برابر با ۳، زمان ۱۰ دقیقه، دانسیته جریان ۸/۱۸ mA.cm⁻² و میزان پراکسید هیدروژن ۸۳/۷۸ μL.L⁻¹ مورد تصفیه قرار گرفت که راندمان ۱۰۰٪ را از خود نشان داد.

بحث

pH محلول یکی از پارامترهای تأثیرگذار بر کارایی فرایند الکتروفتون می‌باشد از آن جایی که pH می‌تواند نقش تعیین

کننده ای در پایداری پراکسید هیدروژن، میزان تولید رادیکال هیدروکسیل و تعیین گونه و حالت آهن محلول موجود در محیط واکنش داشته باشد. با توجه به اینکه بیشترین کارایی حذف در pH برابر با ۳ حاصل شد و با افزایش pH کارایی حذف به شدت کاهش می‌یابد. با توجه به اینکه سرعت تجزیه پراکسید هیدروژن در pH برابر با ۷ و ۹ به ترتیب برابر با ۲/۳×۱۰^۲ و ۷/۴×۱۰^۲ می‌باشد لذا با افزایش pH خصوصاً در pH برابر با ۵، پراکسید هیدروژن به دلیل ناپایداری در ساختار، به آب و اکسیژن تبدیل می‌گردد. علاوه بر این، افزایش pH باعث کاهش پتانسیل اکسیداسیون رادیکال هیدروکسیل می‌گردد به عبارت دیگر با اینکه رادیکال هیدروکسیل در سیستم موجود است ولی توانایی اکسیداسیون آن کم می‌شود. با افزایش pH به بیشتر از ۴ یون‌های فرو به گونه فریک تبدیل می‌گردد آهن فریک قابلیت انجام واکنش با H₂O₂ و تولید رادیکال هیدروکسیل را نداشته و سبب کاهش کارایی حذف می‌گردد. همچنین با افزایش pH، یون‌های آهن به فرم‌های هیدروکسید فریک Fe(OH)₃ و اوکسی هیدروکسید فریک FeOO²⁺ رسوب کرده و کارایی کاهش می‌یابد. این امر با کاهش غلظت Fe³⁺ در محیط واکنش، مانع از انجام واکنش یون‌های آهن فریک با پراکسید هیدروژن می‌گردد از طرفی به دلیل رسوب یون‌های فریک بر سطح الکتروود از احیای یون‌های آهن فرو جلوگیری به عمل می‌آید. همچنین بسیاری از محققین بازسازی یون‌های آهن فرو را تنها در pH های اسیدی و به فرم محلول گزارش نموده‌اند^{۲۱} در pH بالاتر آهن به شکل کلوئیدی تبدیل می‌گردد و در pH های بسیار اسیدی به دلیل اینکه پراکسید هیدروژن در pH کمتر از ۳ به یون

با پتانسیل اکسیداسیون $1/65 \text{ eV}$ که در مقایسه با پتانسیل اکسیداسیون رادیکال هیدروکسیل $2/8 \text{ v}$ بسیار کمتر است لذا تجزیه و تخریب آلاینده کاهش می‌یابد.^{۲۱}



به منظور تعیین مکانیسم حذف دیازینون؛ سه آزمایش الکتروکاتالیزور، شبه فتون و تاثیر رادیکال اسکاونجر بر راندمان فرایند حذف انجام شد. نتایج به دست آمده از این آزمایشات، تشکیل رادیکال هیدروکسیل را به عنوان عامل مؤثر بر فرآیند حذف تأیید می‌نماید. راندمان پایین مشاهده شده در فرایند شبه فتون احتمالاً به این دلیل است که آزاد شدن یون فرو بدون برقراری جریان دشوار است. این در حالی است که در فرایند الکتروفنتون، با برقراری جریان الکتریکی طبق قانون فارادی با توجه به شدت جریان اعمال شده و مدت زمان اعمال آن، میزان معینی از ترکیبات آهن دو ظرفیتی به محیط واکنش وارد می‌شود که پس از واکنش با پراکسید هیدروژن موجود در محیط، رادیکال هیدروکسیل را تولید می‌کنند. از طرف دیگر، کاهش در عملکرد فرایند الکتروفنتون در حضور اسکاونجرهای مختلف احتمالاً بیانگر اینست که فرایند الکتروفنتون با تولید رادیکال هیدروکسیل، حذف مؤثر دیازینون را کنترل می‌نماید. زیرا ثابت سرعت واکنش ترشیو بوتانول با رادیکال هیدروکسیل خیلی بالا است و ترشیو بوتانول به رادیکال‌های آزاد هیدروکسیل در مقایسه با سایر رادیکال‌های سطحی تمایل بیشتری دارد در حالی که آنیون‌های کلراید، فسفات، سولفات و کربنات سایت‌های فعال روی سطح کاتالیست (در اینجا آهن فروس) را غیر فعال کرده و از این طریق مانع تشکیل رادیکال‌های سطحی می‌شوند. با توجه به اینکه در این مطالعه اسکاونجر ترشیو بوتانول با $33/15$ درصد کاهش در کارایی حذف دیازینون نسبت به سایر اسکاونجرها تأثیر بیشتری در کارایی فرایند الکتروفنتون داشت ثابت می‌شود که رادیکال‌های هیدروکسیل آزاد نسبت

پایدار اکسینیوم H_3O^{2+} تبدیل می‌شود که واکنش پذیری آن با یون فرو بسیار ناچیز است میزان رادیکال هیدروکسیل کاهش می‌یابد و علاوه بر این در pH کمتر از ۳ علاوه بر کاهش غلظت یون فرو غلظت H^+ افزایش یافته که خود به عنوان اسکونجرهای رادیکال هیدروکسیل بوده و کارایی را کاهش می‌دهد.^{۲۲} با افزایش غلظت اولیه آلاینده کارایی حذف کاهش می‌یابد دلیل این امر را این‌گونه می‌توان توجیه کرد که با افزایش غلظت آلاینده تشکیل محصولات واسطه ناشی از اکسیداسیون دیازینون صورت گرفته و این مواد تشکیل شده در مصرف رادیکال هیدروکسیل رقابت می‌کنند از سویی دیگر با توجه به ثابت بودن شرایط عملیاتی آزمایش در غلظت‌های بالاتر با افزایش مولکول‌های آلاینده میزان کاتالیزور مانند آهن فرو و پراکسید هیدروژن مصرف شده و با کاهش میزان امکان مواجه رادیکال با آلاینده کاهش یافته و کارایی کاهش می‌یابد.^{۲۴، ۲۳} دانسیته جریان میزان یون‌های آهن آزاد شده از الکتروآند (آهن) را کنترل می‌کند به طوری که احیا یون‌های Fe^{2+} از طریق احیا مداوم یون‌های Fe^{3+} در سطح کاتد واکنش (۱) و در نهایت میزان غلظت تولیدی رادیکال هیدروکسیل با دانسیته جریان کنترل می‌شود به طوری که در فقدان Fe^{2+} پراکسید هیدروژن به تنهایی قادر نیست مولکول دیازینون را مورد تجزیه قرار دهد و از طرفی وقوع واکنش‌های جانبی و مداخله گر، با افزایش ولتاژ افزایش می‌یابد این واکنش‌ها باعث کاهش کارایی حذف خواهند شد.^{۲۵} همچنین پراکسید هیدروژن در ولتاژهای بالا به آب تجزیه می‌شود و کارایی کاهش می‌یابد. با توجه به نتایج به دست آمده غلظت پراکسید هیدروژن مؤثرترین پارامتر در کارایی حذف بود زمانی که در حد متعادل و مناسب به راکتور اضافه می‌گردد کارایی حذف به حداکثر خود می‌رسد اما با افزودن بیش از حد به دلیل مصرف شدن پراکسید هیدروژن جهت اکسید کردن یون‌های آهن فرو در طی واکنش‌های (۳) و (۴) از محیط واکنش خارج می‌شود و از طرفی این واکنش‌ها با تولید رادیکال $\text{HO}_2\cdot$

آمیز و کامل این گونه آلاینده می‌باشد.

تقدیر و تشکر

نویسندگان این مقاله از مرکز تحقیقات فارماسیوتیکس، معاونت پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی کرمان جهت حمایت از این پروژه، کمال تشکر را دارند.

به سایر رادیکال‌های سطحی تأثیر بیشتری در فرایند الکتروفتون داشته‌اند. همچنین به دلیل کوتاه بودن زمان واکنش و شرایط pH اسیدی محیط، احتمال انعقاد الکتریکی بسیار پایین بوده است و تنها ۳/۲۱٪ از آلاینده در اثر مکانیسم انعقاد حذف شده است. فرایند حذف سم دیازینون به عنوان آلاینده آب‌های زیرزمینی با استفاده از تکنیک الکتروفتون تحت شرایط بهینه انجام شد که نشان دهنده حذف موفقیت

References

- Esfandian H, Samadi-Maybodi A, Parvini M, Khoshandam B. Development of a novel method for the removal of diazinon pesticide from aqueous solution and modeling by artificial neural networks (ANN). *J. Ind. Eng. Chem* 2016;35 (3):295-308.
- Motaharian A, Motaharian F, Abnous K, et al. Molecularly imprinted polymer nanoparticles-based electrochemical sensor for determination of diazinon pesticide in well water and apple fruit samples. *Anal. Bioanal. Chem* 2016;4(24): 6769-79.
- Mekonen S, Argaw R, Simanesew A, et al. Pesticide residues in drinking water and associated risk to consumers in Ethiopia. *Chemosphere* 2016;162(2): 252-60.
- Akoto O, Azaure AA, Adotey K. Pesticide residues in water, sediment and fish from Tono Reservoir and their health risk implications. *SpringerPlus* 2016;5(1): 1849-54.
- Mirmasoomi SR, Ghazi MM, Galedari M. Photocatalytic degradation of diazinon under visible light using TiO₂/Fe₂O₃ nanocomposite synthesized by ultrasonic-assisted impregnation method. *Sep. Purif. Technol* 2017;175: 418-27.
- Bazrafshan E, Mohammadi L, Balarak D, et al. Optimization of Diazinon Removal from Aqueous Environments by Electrocoagulation Process Using Response Surface Methodology. *JMUMS* 2016;26(138): 118-30.
- Dehghani MH, Niasar ZS, Mehrnia MR, et al. Optimizing the removal of organophosphorus pesticide malathion from water using multi-walled carbon nanotubes. *Chem. Eng. J* 2017;310(5):22-32.
- Shirzad-Siboni M, Jonidi-Jafari A, Farzadkia M, et al. Enhancement of photocatalytic activity of Cu-doped ZnO nanorods for the degradation of an insecticide: Kinetics and reaction pathways. *J. Environ. Manage* 2017;186:1-11.
- Rodriguez-Mozaz S, Ricart M, Köck-Schulmeyer M, et al. Pharmaceuticals and pesticides in reclaimed water: efficiency assessment of a microfiltration–reverse osmosis (MF–RO) pilot plant. *J. Hazard. Mater.* 2015;282: 165-73.
- Wu J, Luan T, Lan C, et al. Efficacy evaluation of low-concentration of ozonated water in removal of residual diazinon, parathion, methyl-parathion and cypermethrin on vegetable. *J. Food Eng.* 2007;79(3): 803-9.
- Flores N, Cabot PL, Centellas F, et al. 4-Hydroxyphenylacetic acid oxidation in sulfate and real olive oil mill wastewater by electrochemical advanced processes with a boron-doped diamond anode. *J. Hazard. Mater.* 2017;321: 566-75.
- Wang Y, Feng C, Li Y, et al. Enhancement of emerging contaminants removal using Fenton reaction driven by H₂O₂-producing microbial fuel cells. *Chem. Eng. J.* 2017;307: 679-86.
- Brillas E, Sirés I, Oturan MA. Electro-Fenton process and related electrochemical technologies based on Fenton's reaction chemistry. *Chemical reviews* 2009;109(12): 6570-631.
- Moghiseh Z, Najafpoor AA, Hassanzadeh-Khayyat M, Dadban Shahamat Y. Survey of using of analysis methods in determination of diazinon pesticide concentration in drinking water resources. *Razi Journal of Medical Sciences* 2014;21(124): 11-8.
- Yoosefian M, Ahmadzadeh S, Aghasi M, Dolatabadi M. Optimization of electrocoagulation process for efficient removal of ciprofloxacin antibiotic using iron electrode; kinetic and isotherm studies of adsorption. *Journal of Molecular Liquids* 2017;225: 544-53.
- Najafpoor AA, Soleimani G, Ehrampoush MH, et al. Study on the adsorption isotherms of chromium (VI) by means of carbon nano tubes from aqueous solutions. 2014.
- Dolatabadi M, Alidadi H, Davoudi M. Comparative study of cationic and anionic dye removal from aqueous solutions using sawdust-based adsorbent. *Environmental Progress & Sustainable Energy* 2016;35(4): 1078-90.

18. Salmani ER, Ghorbanian A, Ahmadzadeh S, et al. Removal of Reactive Red 141 Dye from Synthetic Wastewater by Electrocoagulation Process: Investigation of Operational Parameters. *Iranian Journal of Health, Safety and Environment* 2016;3(1): 403-11.
19. Dehghani MH, Dehghan A, Alidadi H, et al. Removal of methylene blue dye from aqueous solutions by a new chitosan/zeolite composite from shrimp waste: Kinetic and equilibrium study. *Korean Journal of Chemical Engineering* 2017: 1-9.
20. Ahmadzadeh S, Asadipour A, Pournamdari M, et al. Removal of ciprofloxacin from hospital wastewater using electrocoagulation technique by aluminum electrode; optimization and modelling through response surface methodology. *Process Saf. Environ. Prot.* 2017;109: 538-47.
21. Wang N, Zheng T, Zhang G, Wang P. A review on Fenton-like processes for organic wastewater treatment. *J. Environ. Chem. Eng.* 2016;4(1): 762-87.
22. Huang D, Hu C, Zeng G, et al. Combination of Fenton processes and biotreatment for wastewater treatment and soil remediation. *Sci. Total Environ.* 2017;574: 1599-610.
23. Babuponnusami A, Muthukumar K. A review on Fenton and improvements to the Fenton process for wastewater treatment. *J. Environ. Chem. Eng.* 2014;2(1): 557-72.
24. Bokare AD, Choi W. Review of iron-free Fenton-like systems for activating H₂O₂ in advanced oxidation processes. *J. Hazard. Mater.* 2014;275: 121-35.
25. Nidheesh PV, Gandhimathi R. Trends in electro-Fenton process for water and wastewater treatment: An overview. *Desalination* 2012;299: 1-15.

Modeling of Electro Fenton Process for Removal of Diazinon from Groundwater Using Response Surface Methodology

Saeid Ahmadzadeh^{1*}, Maryam Dolatabadi²

1. *Pharmaceutics Research Center, Institute of Neuropharmacology, Kerman University of Medical Sciences, Kerman, Iran*

2. *Environmental Science and Technology Research Center, Department of Environmental Health Engineering, Shahid Sadoughi University of Medical Sciences, Yazd, Iran*

* E-mail: Iranchem_ahmadzadeh@yahoo.com

Received: 31 May 2017; Accepted: 22 Oct. 2017

ABSTRACT

Background: Diazinon is one of the most important pesticides extremely used in agriculture. Since these compounds are resistant to biodegradation, the arrival of these compounds to water resources has become a serious environmental problem. Therefore, in the current work, the removal of diazinon from groundwater was investigated using advanced oxidation processes electro Fenton.

Methods: the current work was conducted in lab scale. The effect of operating parameters such as initial concentration of diazinon (1-30 mg.L⁻¹), pH solution (3-9), current density (1-10 mA.cm⁻²), reaction time (3-30 min), and dosage of H₂O₂ (20-100 μL.L⁻¹) were investigated. Response surface methodology (RSM) was used to optimize the parameters and suggested model was analyzed using ANOVA.

Results: On the optimum condition including initial diazinon concentration of 6.88 mg.L⁻¹, pH solution of 3, the reaction time of 10 min, the current density of 8.18 mA.cm⁻², and dosage H₂O₂ of 83.78 μL.L⁻¹ removal efficiency of diazinon was found to be 98.5 %. Electrical energy consumption (EEC) was found to be 0.524 kWh.m⁻³. Moreover, the concentration of diazinon in groundwater was found to be 0.934±0.053 μg.L⁻¹.

Conclusion: According to the obtained results, electro Fenton process was found to be an efficient technique for successful removal of diazinon and other resistant ungradable organic compound from water sources.

Keywords: Diazinon, Electro Fenton, Removal, Response surface methodology, Groundwater.