

## حذف اسید هیومیک از محیط‌های آبی توسط فرایند انعقاد الکتریکی توام با افزودن هیدروژن پراکسید

ادریس بذرافشان<sup>۱</sup>، احمد جنیدی جعفری<sup>۲</sup>، فردوس کرد مصطفی پور<sup>۳</sup>، حامد بیگلری<sup>۴</sup>

نویسنده مسئول: زاهدان، میدان دکتر حسایی، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، دانشکده بهداشت، گروه بهداشت محیط Hamed.biglari@gmail.com

پذیرش: ۹۰/۱۱/۰۳

دریافت: ۹۰/۰۸/۰۷

### چکیده

**زمینه و هدف:** در فرایند سالم‌سازی آب شرب، اسید هیومیک موجود در منابع آب آشامیدنی با ماده گندزدای کلر واکنش داده و فرآورده‌های جانبی گندزدایی جهش‌زا، ناقص‌الخلقه‌زا و سرطان‌زا نظیر تری‌هالومتان‌ها و هالو استیک اسیدها را تشکیل می‌دهند. با توجه به این مهم در این مطالعه کارایی حذف اسید هیومیک از نمونه‌های آبی توسط فرایند انعقاد الکتریکی توام با افزایش هیدروژن پراکسید (ایجاد فرایند فنتون) مورد بررسی قرار گرفت.

**روش بررسی:** مطالعه حاضر در شرایط آزمایشگاهی و در یک ظرف بوکال پوشیده از فویل آلومینیومی با حجم موثر یک لیتر و تجهیز شده با الکترودهای آهنی و متصل به یک منبع تغذیه با اختلاف پتانسیل الکتریکی ۱۰ ولت به روش دو قطبی، انجام پذیرفت. ابتدا مخزن با محلول آبی حاوی غلظت ۲۰ میلی‌گرم در لیتر اسید هیومیک پر شد و در ادامه اثر متغیرهای  $pH$  ۳، ۵، ۷ و ۸، هدایت الکتریکی حاصل از افزودن ۱، ۱/۵، ۲ و ۳ گرم در لیتر کلرید پتاسیم، افزایش مستقیم ۵۰ میلی‌لیتر هیدروژن پراکسید ۳۰٪ در زمان‌های واکنش ۵، ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه، بر حذف اسید هیومیک از نمونه‌های آبی توسط فرایندهای فوق با استفاده از روش سنجش پارامتر جانشین کربن آلی توسط دستگاه  $TOC$  آنالایزر، مشخص شد.

**یافته‌ها:** نتایج نشان داد که راندمان کل حذف اسید هیومیک در  $pH=10$  مساوی ۵، ۳ گرم بر لیتر کلرید پتاسیم و زمان واکنش ۶۰ دقیقه حدود ۹۷٪ و از این مقدار ۹۲/۱ درصد سهم اثر فرایند انعقاد الکتریکی و ۷/۹ درصد سهم اثر فرایند فنتون است. همچنین نتایج نشان داد که با افزایش  $pH$  و هدایت الکتریکی به ترتیب راندمان حذف کاهش و افزایش می‌یابد.

**نتیجه‌گیری:** ترکیب فرایند انعقاد الکتریکی با ماده هیدروژن پراکسید می‌تواند به عنوان روشی کارآمد جهت حذف اسید هیومیک از نمونه‌های آبی استفاده گردد.

**واژگان کلیدی:** اسید هیومیک، الکتروکواکولاسیون، فنتون، پراکسید هیدروژن

۱- دکترای بهداشت محیط، دانشیار مرکز تحقیقات ارتقای سلامت و دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی زاهدان

۲- دکترای بهداشت محیط، دانشیار دانشکده پزشکی دانشگاه تربیت مدرس

۳- دکترای بهداشت محیط، استادیار مرکز تحقیقات ارتقای سلامت و دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی زاهدان

۴- دانش آموخته کارشناسی ارشد بهداشت محیط، دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی زاهدان

## مقدمه

مواد هیومیکی از جمله مواد پلی‌الکترولیتی آلی طبیعی هستند که بیشترین قسمت کربن آلی محلول موجود در محیط‌های آبی را تشکیل می‌دهند (۱). تعریف جامعی از این مواد وجود نداشته و عموماً هیومین نامیده می‌شوند. مواد هیومیکی بسته به میزان حلالیت در اسید یا قلیا معمولاً به دو بخش عمده اسید هیومیک (HA) با ویژگی محلول در محیط قلیایی ضعیف و ترسیب در pH کمتر از ۲، و اسید فولیک (FA) محلول در تمامی pHها، تقسیم می‌شوند (۲). وجود اسید هیومیک در محیط‌های آبی سبب بروز مشکلاتی از قبیل رنگ (۱)، تشکیل بیش از ۶۰۰ نوع فرآورده‌های جانبی گندزدایی سرطان‌زا از جمله تری‌هالومتان‌ها (Trihalomethanes) و هالو استیک اسیدها (Haloacetic acids) و افزایش مصرف مواد گندزدا در تصفیه آب (۳)، خوردگی فلزات و مواد آلی مصنوعی (۴)، اختلال در فرایند انعقاد (۵)، اثر منفی بر فرایند جذب سطحی (۶)، کاهش کارایی غشاهای (۷)، رشد مجدد میکروارگانیسم‌ها (۸) و... در فرایند سالم‌سازی آب شرب می‌شوند. در حال حاضر مهم‌ترین دلیل مطرح برای حذف این ترکیبات از آب آشامیدنی با توجه به اعمال قوانین سخت‌گیرانه گندزدایی، ممانعت از تشکیل فرآورده‌های جانبی گندزدایی و کنترل تری‌هالومتان‌ها و اسید هالو استیک‌ها است به گونه‌ای که مقدار مجاز آنها در آب آشامیدنی توسط سازمان حفاظت محیط زیست آمریکا به ترتیب در مرحله اول اجرای قوانین حدود  $80 \mu\text{g/L}$  و  $60$  و در مرحله دوم حدود  $40 \mu\text{g/L}$  و  $30$  اعلام شده است (۹). از روش‌های حذف این مواد از محیط‌های آبی می‌توان به فرایند انعقاد شیمیایی و ته‌نشینی، اکسیداسیون، جذب سطحی، تبادل یون و فیلتراسیون توسط انواع غشاهای اشاره کرد (۱۰). فرایند اکسیداسیون شیمیایی متداول مانند استفاده از ماده هیدروژن پراکسید و فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته نظیر فرایند فنتون و فرایند الکتروکواگولاسیون از جمله روش‌های مورد توجه در امور تصفیه آب آشامیدنی هستند که استفاده از آنها در تصفیه آب سطحی و زیرزمینی در چند سال اخیر مورد توجه فراوانی قرار گرفته است (۱۱). هیدروژن پراکسید یک اکسیدکننده مایع است که در غلظت‌های ۳ تا ۳۵٪ کاربردهای زیست محیطی داشته و رادیکال هیدروکسیل با قدرت اکسیدکنندگی بالا تولید

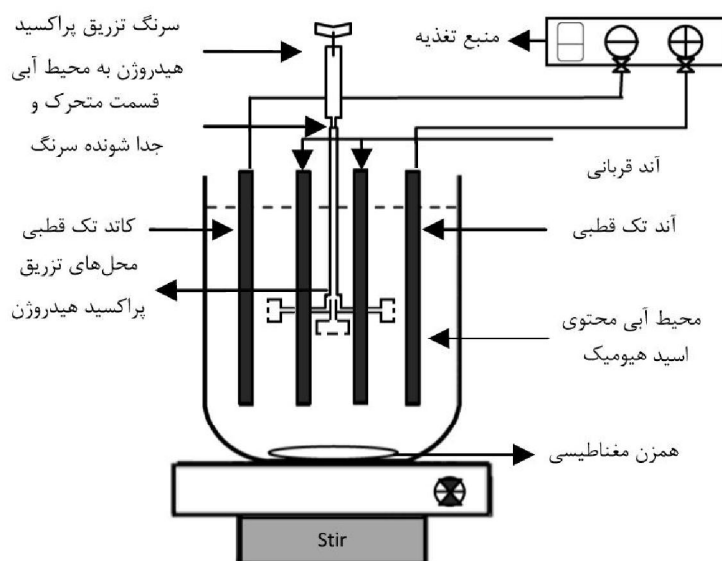
می‌کند و با انتخاب غلظت مناسب واکنش دهنده‌ها رادیکال‌های هیدروکسیل تولیدی، کلیه مواد آلی را به دی‌اکسید کربن و آب و نمک‌های معدنی تبدیل می‌نماید (۱۲). از مزایای این اکسیدکننده می‌توان به هزینه کم، قدرت اکسیدکنندگی بالا بخصوص در حضور مواد کاتالیزوری همچون یون‌های آهن، کاربرد آسان، حلالیت در آب و عدم ایجاد محصولات جانبی سمی و رنگی در آب اشاره نمود (۱۳). فرایند انعقاد الکتریکی (Electrocoagulation) با توجه به قابلیت بالای آن در حذف انواع آلاینده‌ها، در زمینه‌های مختلف تصفیه آب و فاضلاب، مورد توجه قرار گرفته است (۱۴). در فرایند انعقاد الکتریکی الکترودها تحت تاثیر میدان الکتریکی قوی و واکنش‌های اکسیداسیون و احیا قرار گرفته و با تولید مواد منعقدکننده در محل بر اساس اصول جذب، خنثی‌سازی بار الکتریکی و ایجاد کمپلکس زمینه حذف آلاینده‌های مورد نظر از محیط آبی را فراهم می‌نمایند (۱۵). با علم به این که در فرایند انعقاد الکتریکی یون‌های آهن موجودند می‌توان با تزریق مستقیم هیدروژن پراکسید به محیط تحت فرایند الکتروکواگولاسیون، فرایند فنتون را نیز در نمونه‌های آبی ایجاد کرد. فرایند فنتون از ترکیب دو ماده پراکسید هیدروژن و یون‌های آهن حاصل می‌گردد که در این فرایند اشکال آهن یونیزه به عنوان کاتالیست با ماده پراکسید هیدروژن وارد واکنش شده و موجب افزایش تولید و سرعت تشکیل رادیکال هیدروکسیل می‌گردند (۱۶). تاکنون مطالعاتی در زمینه بررسی راندمان فرایندهای انعقاد شیمیایی و فنتون بر حذف کربن آلی از محیط آبی انجام گرفته است. از جمله این مطالعات می‌توان به مطالعه Matilainen با عنوان حذف مواد آلی طبیعی توسط فرایند الکتروکواگولاسیون در طی تصفیه آب آشامیدنی (۱۷)، مطالعه مصدافی‌نیا با عنوان استفاده از مواد منعقدکننده در بهینه‌سازی مواد آلی طبیعی در آب‌های با کدورت پایین (۱۸)، مطالعه Lipczynska با عنوان اثر مواد هیومیک بر تصفیه فاضلاب‌های صنعتی توسط فرایند فنتون در pH های اسیدی و خنثی (۱۹)، مطالعه Yanyu با عنوان حذف مواد هیومیکی از شیرابه زباله امکان دفن زباله توسط فرایند اکسیداسیون فنتون و انعقاد (۲۰)، و مطالعه احمدی مقدم با عنوان حذف کل کربن آلی از فاضلاب

اسید هیومیک پر می‌شد. سپس اثر هر یک از متغیرهای pH مساوی ۳، ۵، ۷ و ۸ تنظیم شده با استفاده از اسید پرکلریک و هیدروکسید سدیم ۰/۱ و ۱ نرمال (کنترل توسط pH متر مدل Denver Ultra basic-UB10 ساخت امریکا)، هدایت‌های الکتریکی حاصل از افزودن مقادیر ۱، ۱/۵، ۲ و ۳ گرم در لیتر کلرید پتاسیم (KCl) (کنترل توسط هدایت‌سنج مدل WTW-Cond 1310 ساخت آلمان) به محیط آبی تحت فرایند پس از گذشت زمان‌های واکنش ۵، ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه با برداشت نمونه‌های ۵۰ mL از میانه راکتور بررسی می‌شد. برای جریان حجم آب از دست رفته و ایجاد فرایند فنتون، ۵۰ mg/L پراکسید هیدروژن ۳۰٪ توسط سرنگ به محل تعبیه شده در میانه راکتور و الکترودها بلافاصله پس از برداشت نمونه تزریق می‌گردید (شکل ۱). در ادامه پس از انجام فراوری‌های لازم و افزودن ناتریم بی‌سولفیت (۰/۵ گرم  $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ ) به نمونه‌ها (۱۹)، غلظت یون‌های آهن تولیدی در محیط آبی توسط دستگاه جذب اتمی مدل Perkin precisely AAnalyst 700 و غلظت اسید هیومیک ضمن استفاده از روش سنجش پارامتر جانشین کربن آلی به وسیله دستگاه TOC آنالایزر مدل ANA TOC Series II مطابق با روش‌های استاندارد ذکر شده در کتاب مرجع آزمایش‌های آب و فاضلاب بخش‌های B3113 و B5310 مورد آنالیز فوری قرار گرفتند (۲۳). به منظور مشخص شدن

فرایند انعقاد الکتریکی، اشاره کرد (۲۱). بنابراین با توجه به این که تا کنون مطالعه‌ای در زمینه بررسی اثر افزایش مستقیم ماده هیدروژن پراکسید به محیط آبی تحت فرایند انعقاد الکتریکی و بررسی کارایی فرایندهای ایجاد شده صورت نگرفته است، این مطالعه با هدف بررسی کارایی تلفیق روش‌های اکسیداسیون متداول (افزایش هیدروژن پراکسید) و اکسیداسیون پیشرفته الکتروکواگولاسیون (انعقاد الکتریکی تجهیز شده با الکتروده آهنی) و ایجاد فرایند اکسیداسیون پیشرفته با معرف فنتون، در حذف اسید هیومیک از نمونه‌های آبی طراحی و انجام پذیرفت.

## مواد و روش‌ها

ترکیبات شیمیایی مورد استفاده در این مطالعه از جمله اسید هیومیک، هیدروکسید سدیم، اسید پرکلریک و کلرید پتاسیم ساخت شرکت مرک آلمان بودند. در ابتدا مخزن مربوط به حجم موثر یک لیتر (ظرف بوکال پوشیده شده توسط فویل آلومینیومی) مجهز به چهار الکتروده آهنی صفحه‌ای با ابعاد ۱۱×۱۱ سانتی‌متر با فاصله ۲ سانتی‌متر از یکدیگر و متصل به یک منبع تغذیه به روش دو قطبی با اختلاف پتانسیل ثابت ۱۰ ولت، مستقر بر روی همزن مغناطیسی با دور ثابت ۸۰ دور بر دقیقه (۲۲)، با استفاده از محلول‌های آبی حاوی غلظت ۲۰ mg/L



شکل ۱: طرح شماتیک راکتور مورد استفاده (روش اتصال دو قطبی)

## یافته‌ها

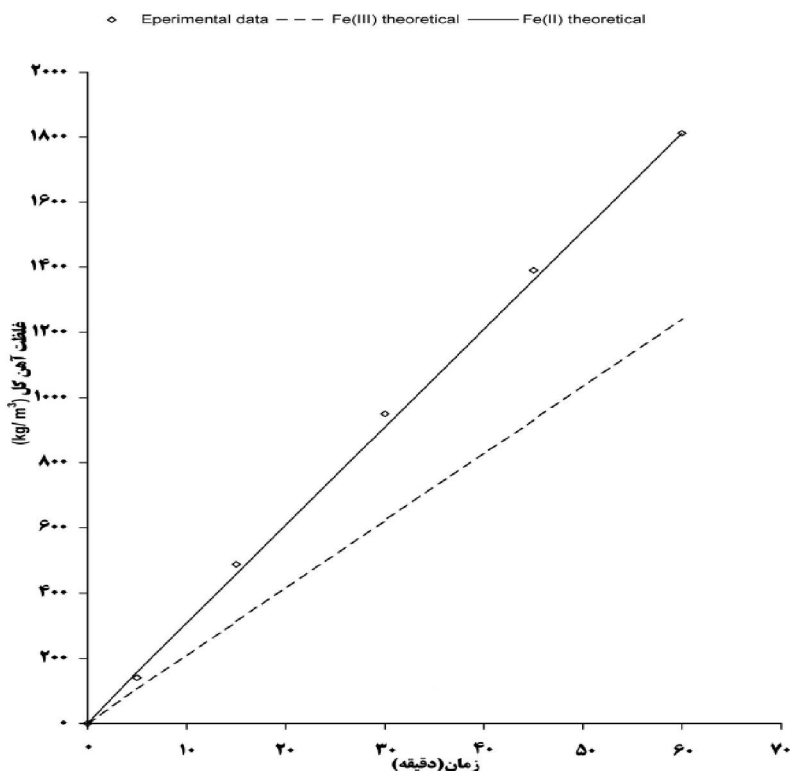
در این مطالعه کارایی فرایند انعقاد الکتریکی ضمن افزایش مستقیم ماده هیدروژن پراکسید، و استفاده از الکتروود آند قربانی با جنس فلز آهن و حفظ شرایط انجام آزمایشات کاملاً یکسان برای تمامی نمونه‌ها، در حذف اسید هیومیک از نمونه‌های آبی مورد بررسی قرار گرفته است. از آنجا که آزمایشات با روش ضرب کلیه متغیرهای هر پارامتر در متغیرهای پارامتر دیگر انجام پذیرفت و با توجه به حجم زیاد نتایج و عدم امکان ارائه کامل آنها، تنها نتایجی که در آنها متغیر بهینه پارامترها حاصل گردید به صورت اشکال ۲ الی ۸ در ادامه ارائه شده است. شکل ۲ غلظت یون‌های فرو و فریک تئوری محاسبه شده توسط قانون فارادی همراه با غلظت آهن کل تولید شده در فرایند انعقاد الکتریکی را نشان می‌دهد. بررسی این شکل نشان می‌دهد که غلظت یون‌های آهن تولید شده در فرایند انعقاد الکتریکی با افزایش زمان الکترولیز افزایش یافته است که بسیار به غلظت تئوری یون فرو محاسبه شده توسط قانون فارادی

اثر هر یک از فرایندهای انعقاد و فرایند اکسیداسیون بر راندمان حذف، غلظت اسید هیومیک موجود در لجن نیز سنجش شد. در پایان منحنی‌های مرتبط با اثر پارامترهای pH، زمان واکنش، اختلاف پتانسیل و هدایت الکتریکی بر راندمان حذف اسید هیومیک ترسیم و ارائه گردید. میزان انرژی مصرفی بر اساس معادله ۱ و غلظت تئوری یون‌های آهن فرو و فریک مطابق معادله ۲ (قانون فارادی) محاسبه شدند.

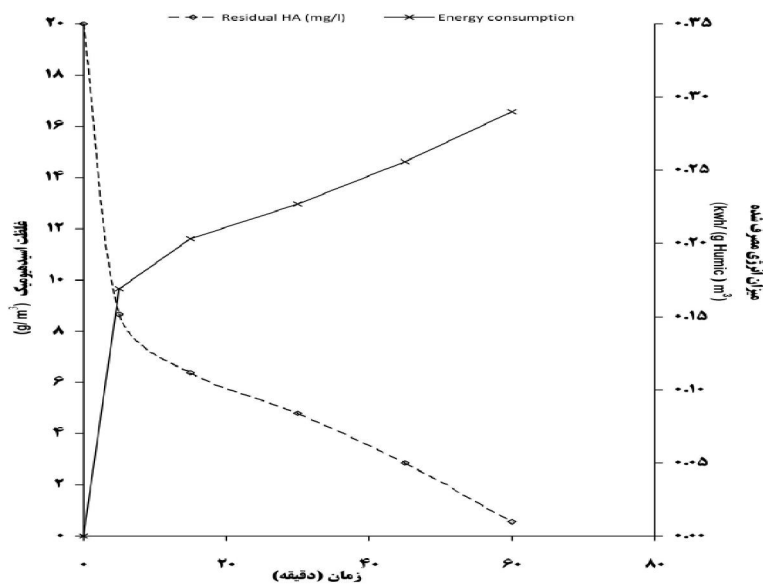
$$E_c = \frac{U_{\text{cell}} \cdot I \cdot t}{V \cdot 3600} \quad (1)$$

$$m = \frac{M \cdot I \cdot t}{F \cdot z} \quad (2)$$

که  $U_{\text{cell}}$  متوسط ولتاژ سلول (V)،  $I$  جریان (A)،  $t$  زمان الکترولیز (s)،  $v$  حجم محلول ( $\text{m}^{-3}$ )،  $m$  جرم آهن حل شده (g)،  $M$  وزن مولکولی ( $55.86 \text{ g mol}^{-1}$ )،  $F$  ثابت فارادی ( $96.485 \text{ C eq}^{-1}$ ) و  $z$  ظرفیت یون ( $\text{eq mol}^{-1}$ ) است.



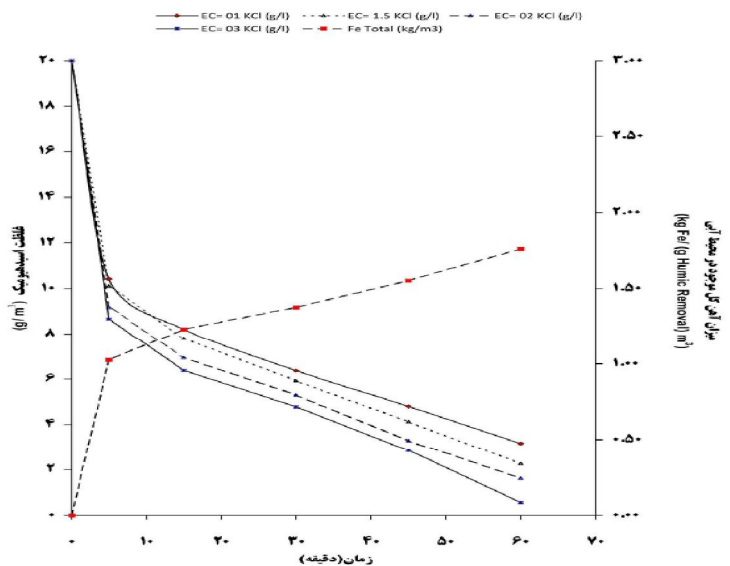
شکل ۲: آهن تولیدی در فرایند انعقاد الکتریکی و مقادیر تئوریک آهن محاسبه شده توسط قانون فارادی (اختلاف پتانسیل ۱۰۷ ولت، pH=۳.۵، گرم بر لیتر کلراید پتاسیم، اسید هیومیک ۲۰ mg/L)



شکل ۳: مصرف انرژی همراه با غلظت باقی مانده هیومیک اسید (۳ گرم بر لیتر کلراید پتاسیم، pH=۵ اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت، اسید هیومیک ۲۰ میلی گرم بر لیتر)

در شکل ۳ میزان انرژی مصرفی بر حسب Kw/h به ازای هر گرم ماده هیومیک حذف شده در متر مکعب با در نظر گرفتن درصد راندمان حذف همراه با غلظت اسید هیومیک باقی مانده در طول زمان واکنش (دقیقه) نشان داده شده است. بررسی این شکل نشان می دهد که با افزایش میزان مصرف انرژی راندمان

نزدیک ( $R^2 = 0.98$ ) است. بیشترین و کمترین غلظت آهن کل تولید شده در زمان های واکنش ۵ و ۶۰ دقیقه به ترتیب برابر ۱۴/۸۹ و ۱۸۱/۰۹ mg/L در شرایط pH مساوی ۵، اختلاف پتانسیل ۱۰۷ ولت و هدایت الکتریکی حاصل از افزایش ۳ g/L کلراید پتاسیم حاصل شد.



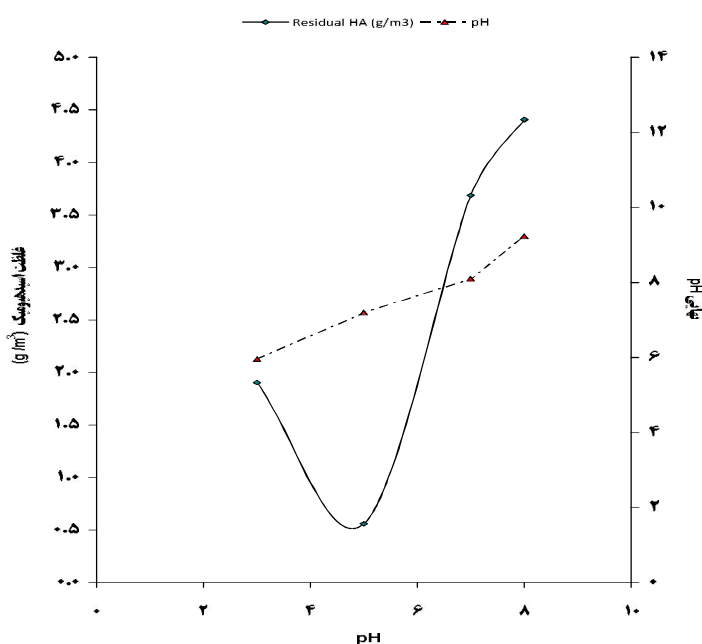
شکل ۴: غلظت باقی مانده اسید هیومیک در هدایت های الکتریکی ۱، ۱/۵، ۲، ۳ گرم در لیتر KCl، همراه با غلظت های آهن تولیدی (اختلاف پتانسیل ۱۰۷، اسید هیومیک ۲۰ mg/L، pH=۵)

تمامی شرایط با افزایش زمان واکنش از ۵ دقیقه به ۶۰ دقیقه همواره مشاهده گردید. شکل ۸ نشان داد که بر خلاف نتایج شکل ۴، با توجه به افزایش مقادیر یون آهن تولیدی با توجه به مقادیر ثابت غلظت هیدروژن پراکسید راندمان حذف اسید هیومیک توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته که اصولاً با توجه به حضور یون‌های آهن فرو و فریک و ماده اکسیدان هیدروژن پراکسید که فرایند فتون نامیده می‌شود، کاهش محسوسی داشته است.

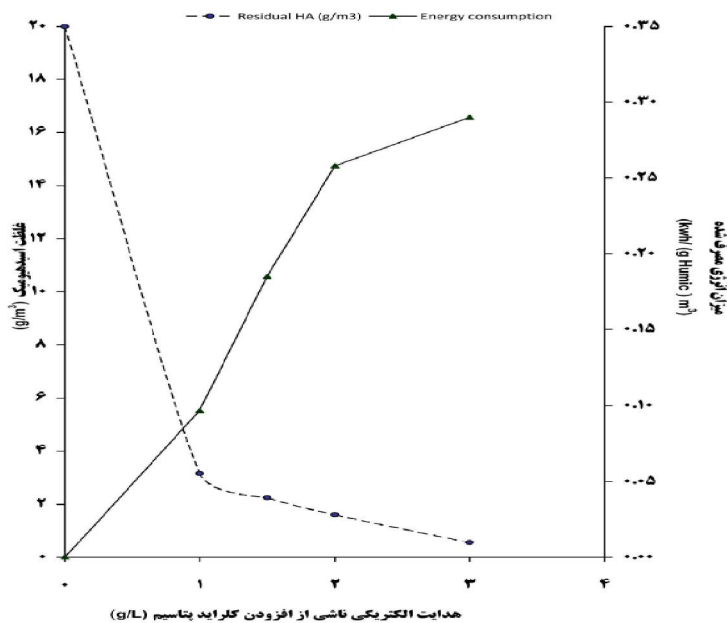
شکل ۵ تغییرات pH در پایان فرایند انعقاد الکتریکی نسبت به مقادیر pH اولیه در نمونه‌های آبی تحت فرایند را نشان می‌دهد. بررسی این شکل نشان می‌دهد که pH نهایی در تمامی حالات نسبت به میزان اولیه خود افزایش یافته است و این افزایش در مقادیر pH ۷ و ۸ اولیه به نسبت pH ۳ و ۵ اولیه رشد کمتری داشته است. همچنین شکل ۵ نشان می‌دهد که با افزایش pH از ۲ به ۵ راندمان حذف اسید هیومیک به شدت افزایش یافته و سپس از pH مساوی ۵ به ۸ راندمان حذف به طور محسوس کاهش یافته است، به طوری که در زمانی که pH اولیه مساوی ۵ تنظیم شده بود pH نهایی تا مقدار ۷/۲ و در زمانی که pH اولیه مساوی ۸ تنظیم شده بود pH نهایی تا

حذف نیز افزایش یافته است. بر این اساس بیشترین میزان انرژی مصرفی معادل با ۰/۲۹ Kw/h به ازای حذف ۱۹/۴۳ میلی گرم بر لیتر ماده اسید هیومیک است.

شکل ۴ غلظت باقی‌مانده اسید هیومیک بر حسب mg/L در هدایت‌های الکتریکی حاصل از افزایش ۱، ۱/۵، ۲ و ۳ کلراید پتاسیم به همراه مقادیر آهن تولیدی در بر حسب g آهن تولیدی به ازای گرم اسید هیومیک حذف شده در متر مکعب با احتساب راندمان حذف در واحد زمان (دقیقه) نشان می‌دهد. بررسی این شکل نشان می‌دهد که افزایش غلظت آهن تولیدی موجب افزایش تولید مواد منعقدکننده شده و بنابراین راندمان حذف اسید هیومیک توسط فرایند الکتروکواگولاسیون افزایش می‌یابد. بر این اساس مقدار آهن تولید شده در راندمان ۹۷/۱۹ درصد حذف ۲۰ mg/L ر اسید هیومیک برابر ۱۸۱ g/m<sup>3</sup> در هدایت الکتریکی حاصل از افزودن ۳ گرم بر لیتر کلراید پتاسیم است. سریع‌ترین مقدار کاهش غلظت ماده اسید هیومیک در زمان واکنش ۵ دقیقه برابر ۶۳/۴۸ درصد در pH برابر ۵ حاصل گردید. کمترین راندمان نیز در زمان واکنش ۵ دقیقه برابر ۳۸/۶۵٪ در pH برابر ۳ و هدایت الکتریکی ناشی از افزودن ۱ g/L کلراید پتاسیم حاصل شد و افزایش راندمان حذف در



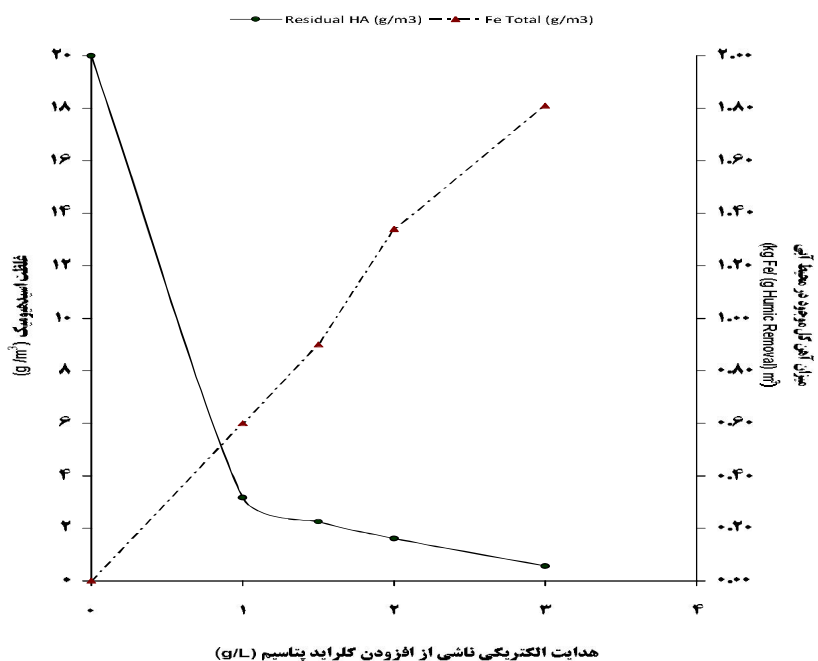
شکل ۵: اثر تغییرات pH بر کاهش مقادیر ماده اسید هیومیک و میزان pH نهایی در نمونه‌های آبی تحت فرایند (زمان واکنش ۶۰ دقیقه، ۳ گرم بر لیتر کلراید پتاسیم، اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت)



شکل ۶: اثر هدایت‌های الکتریکی مختلف بر میزان مصرف انرژی الکتریکی در کاهش غلظت ماده اسید هیومیک (زمان واکنش ۶۰ دقیقه، اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت، pH=۵، اسید هیومیک ۲۰ میلی گرم بر لیتر)

پتانسیم را در میزان انرژی مصرفی بر حسب کیلو وات ساعت به ازای گرم ماده آلی اسید هیومیک حذف شده در متر مکعب و وزن الکتروود مصرف شده (آهن تولیدی) بر حسب گرم آهن آزاد شده به ازای گرم اسید هیومیک حذف شده بر متر

مقدار ۹/۲۳ افزایش می‌یابد. در شکل ۵ بیشترین راندمان در زمان pH اولیه مساوی ۵ حاصل شد. شکل‌های ۶ و ۷ ارتباط تغییرات هدایت‌های الکتریکی حاصل از افزودن مقادیر مختلف ۱، ۱/۵، ۲ و ۳ گرم بر لیتر کلراید

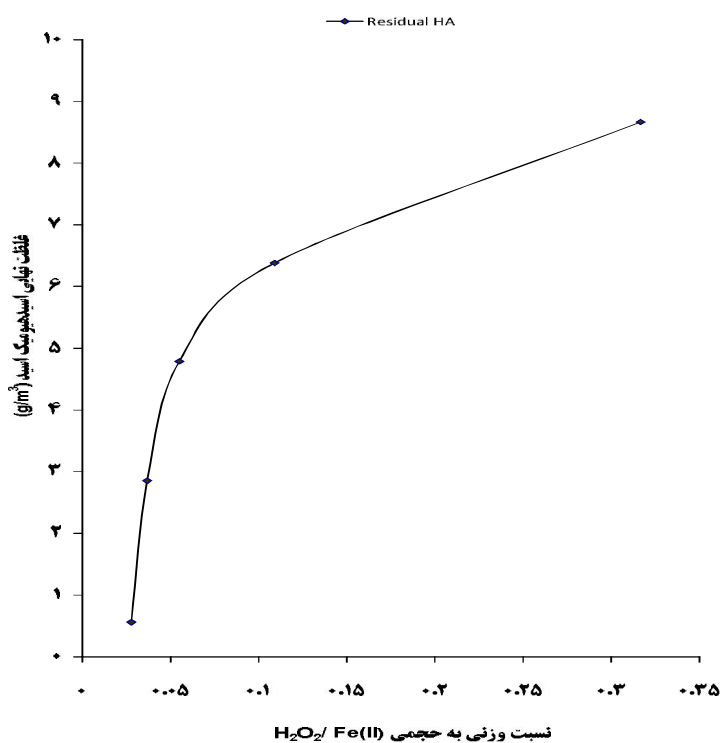


شکل ۷: اثر هدایت‌های الکتریکی مختلف بر مقدار تولید آهن (الکتروود آهن مصرفی) (اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت، زمان واکنش ۶۰ دقیقه، pH=۵، اسید هیومیک ۲۰ میلی گرم بر لیتر)

راندمان حذف کل در زمان واکنش ۵ دقیقه، ۵۴ درصد سهم اثر فرایند انعقاد الکتریکی و ۴۶ درصد سهم اثر فرایند اکسیداسیون پیشرفته فنتون و از ۹۷/۱۹ درصد راندمان کل در زمان واکنش ۶۰ دقیقه ۹۲/۱ درصد سهم اثر فرایند انعقاد الکتریکی و ۷/۹ درصد سهم اثر فرایند فنتون در شرایط هدایت الکتریکی ۳ گرم بر لیتر حاصل از افزایش کلرید پتاسیم، pH اولیه مساوی ۵، غلظت اولیه اسید هیومیک ۲۰ میلی گرم بر لیتر و اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت بود. در pH اولیه مساوی ۳ در زمان واکنش ۶۰ دقیقه، هدایت الکتریکی ۳ گرم بر لیتر حاصل از افزایش کلرید پتاسیم، غلظت اولیه اسید هیومیک ۲۰ میلی گرم بر لیتر و اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت، از ۹۰/۴۸ درصد راندمان کل، ۷۶ درصد سهم اثر فرایند فنتون و ۲۴ درصد سهم اثر فرایند انعقاد الکتریکی بود.

مکعب محلول آبی را نشان می‌دهند. بررسی این اشکال نشان می‌دهد که با افزایش مصرف انرژی و متعاقباً تولید بیشتر یون‌های آهن راندمان حذف اسید هیومیک نیز افزایش یافته است (۲۷-۲۴).

شکل ۸ سهم اثر فرایند اکسیداسیون پیشرفته فنتون و انعقاد الکتریکی را بر اساس غلظت حذف شده اسید هیومیک بر غلظت اولیه اسید هیومیک برحسب نسبت وزنی به حجمی غلظت ثابت ۵۰ میلی گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن ۳۰٪ بر غلظت یون‌های آهن تولیدی در مدت زمان‌های واکنش ۵، ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه نشان می‌دهد. بررسی این شکل نشان می‌دهد که با افزایش غلظت آهن و به تبع آن کاهش نسبت وزنی به حجمی پراکسید هیدروژن بر یون‌های آهن تولیدی، راندمان حذف اسید هیومیک توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته فنتون کاهش می‌یابد و برعکس با افزایش حضور یون‌های آهن و تولید مواد منعقدکننده بیشتر راندمان حذف در فرایند الکتروکواگولاسیون افزایش می‌یابد. از ۵۶/۶۸ درصد



شکل ۸: اثر نسبت وزنی به حجمی هیدروژن پراکسید به غلظت آهن تولیدی در حذف هیومیک اسید (اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت، اسید هیومیک ۲۰ میلی گرم بر لیتر، pH=۵، زمان ۶۰ دقیقه، ۳ گرم بر لیتر کلرید پتاسیم)



## بحث

## بررسی اثر تغییرات pH

در بسیاری از مطالعات به اثر محسوس پارامتر pH بر کارایی حذف آلاینده‌ها در فرایند انعقاد الکتریکی اشاره شده است (۲۰، ۲۱ و ۲۷-۲۳). به همین منظور در این مطالعه اثر pH های ۳، ۵، ۷ و ۸ در کنار سایر متغیرها مورد بررسی قرار گرفت. در بسیاری از مطالعات محققان بر این اصل که پارامتر pH در طول فرایند الکتروکواگولاسیون همواره دارای تغییرات متوسطی است، با یکدیگر اتفاق نظر دارند و عنوان داشته اند که این تغییرات pH به جنس الکتروود و به pH اولیه وابسته است (۲۸). بررسی شکل ۵ نشان می‌دهد در هنگام استفاده از الکتروود با جنس آهن، مقادیر pH نهایی همواره بیشتر از مقادیر pH اولیه است و با مطالعه Matilainena و همکارانش در بررسی حذف ترکیب اسید هیومیک توسط عمل انعقاد در طی تصفیه آب آشامیدنی (۱۷)، مطالعه بذرافشان و همکاران با عنوان حذف اسید هیومیک از محیط‌های آبی توسط فرایند انعقاد الکتریکی تجهیز شده با الکتروود آهنی (۲۹)، مطالعه Savas و همکارانش در بررسی اثر pH اولیه بر میزان حذف ماده اسید هیومیک در فرایند الکتروکواگولاسیون (۳۰)، مطابقت دارد. برخی از محققین تغییرات pH را در فرایند الکتروکواگولاسیون ناشی از افزایش هیدروژن تولید شده از الکتروود کاتد و برخی دیگر این تغییرات را با توجه به این که اسیدیته در بسیاری از محیط‌های آبی، تابع وجود ترکیباتی همچون دی‌اکسید کربن محلول و یا اسیدهای آلی مشتق شده از ترکیبات هوموس خاک است به خروج گاز دی‌اکسید کربن ( $CO_2$ ) از محیط آبی تحت فرایند و بر اثر اختلاط حاصل از حباب‌های گاز هیدروژن تولید شده می‌دانند (۲۷). اهمیت این موضوع بدین علت است که با توجه به مقدار pH نهایی پس از پایان فرایند می‌توان پساب را بدون نیاز به انجام اعمال آماده‌سازی برابر با قوانین و استانداردهای pH پساب در زمان تخلیه به سایر منابع آبی از قبیل رودخانه‌ها و دریاچه‌ها دفع نمود (۲۸). در این مطالعه بیشترین راندمان حذف ماده آلی اسید هیومیک هنگامی که pH محیط مساوی ۵ تنظیم شده بود، حاصل گردید که با نتایج مطالعات مختلف از جمله مطالعه بذرافشان و همکاران در خصوص حذف اسید هیومیک از

محیط‌های آبی توسط فرایند انعقاد الکتریکی تجهیز شده با الکتروود آهنی (۲۹)، مطالعه Matilainena و همکارانش پیرامون حذف ترکیب اسید هیومیک توسط عمل انعقاد در طی تصفیه آب آشامیدنی (۱۷)، مطالعه Savas و همکارانش در رابطه با بررسی اثر pH آغازین بر میزان حذف ماده اسید هیومیک در فرایند الکتروکواگولاسیون (۳۰) و مطالعه Feng و همکارانش در ارتباط با بررسی حذف اسید هیومیک از منابع آب زیرزمینی توسط فرایند الکتروکواگولاسیون (۳۱)، هم‌خوانی دارد. در این مطالعه pH بهینه در حذف اسید هیومیک توسط فرایند انعقاد الکتریکی مساوی ۵ است. همچنین در مطالعات مختلف اثر پارامتر pH بر عملکرد واکنش‌ها در فرایند فنتون در حذف آلاینده‌های مختلف مورد بررسی قرار گرفته است (۳۵-۳۲). از جمله این مطالعات می‌توان به مطالعه Ho و همکارانش با عنوان اسید هیومیک واسط میان آهن آزاد شده در فریتین و ارتقای مایعات پراکسیداسیون در محیط آزمایشگاه اشاره نمود. بر این اساس گزارش شده است که بهترین گستره pH برای حذف ترکیبات هیومیکی ۲ تا ۶ است. این محققین علت این اتفاق را با قابلیت مواد آلی در کاهش آهن سه ظرفیتی به فرم آهن دو ظرفیتی در محیط‌های آبی مرتبط دانسته‌اند (۳۲). در مطالعه Pignatello و همکارانش در خصوص استفاده از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته در تجزیه مواد آلی آلاینده بر پایه واکنش‌های فنتون و شیمی مرتبط با آن گزارش شده است که در pH های اسیدی واکنش بین پراکسید هیدروژن و یون آهن دو ظرفیتی اتفاق می‌افتد که موجب تجزیه بسیاری از آلاینده‌های آلی می‌گردد (۳۳)، در واقع در pH های اسیدی تولید رادیکال‌های هیدروکسیل نسبت به pH های قلیایی بیشتر است. در pH های بالاتر از ۳ آهن سه ظرفیتی به صورت  $Fe(OH)_3$  رسوب کرده و از طرف دیگر در pH های اسیدی اثر تهاجمی  $H^+$  بر  $OH^0$  بسیار بیشتر از OH خواهد بود ضمن آنکه در pH های اسیدی  $CO_2$  نیز به صورت گاز از محیط آب خارج می‌شود در صورتی که در محیط قلیایی تشکیل عواملی همچون کربنات‌ها موجب از بین رفتن رادیکال‌های هیدروکسیل می‌شوند (۳۴ و ۳۵). در این مطالعه بررسی شکل ۵ نشان داد که راندمان حذف اسید هیومیک توسط فرایند فنتون به سمت pH مساوی ۳ افزایش یافته و به بیشترین میزان خود

می‌رسد و سپس راندمان حذف به سمت  $\text{pH} = 8$  به شدت کاهش یافته است، که بدین ترتیب نتایج این مطالعه با نتایج مطالعات فوق مطابقت دارد. پس در این مطالعه  $\text{pH}$  بهینه در حذف اسید هیومیک توسط فرایند فنتون مساوی ۳ و سپس استفاده از  $\text{pH}$  های ۵، ۷ و ۸ بترتیب از راست به چپ مناسب معرفی می‌گردند. به طور کلی در این مطالعه حدود  $\text{pH}$  بهینه برای بهبود اثر تلفیق دو فرایند فنتون و الکترو گولاسیون ۴ تا ۶ تعیین گردید.

### بررسی اثر افزودن پراکسید هیدروژن

در مطالعات بسیاری اثر این پارامتر بر کارایی فرایند فنتون مورد بررسی قرار گرفته است، اما تاکنون مطالعه‌ای در زمینه استفاده مستقیم از پراکسید هیدروژن در فرایند انعقاد الکتریکی به خصوص در کشور ما صورت نگرفته است. از جمله مطالعاتی که به بررسی اثر پراکسید هیدروژن در فرایند فنتون انجام گرفته است می‌توان به مطالعه Pignatello و همکارانش در خصوص استفاده از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته در تجزیه مواد آلی آلاینده با پایه واکنش‌های فنتون و شیمی مرتبط با آن و مطالعه Yanyu و همکارانش در مطالعه با عنوان حذف مواد هیومیک از شیرابه زباله اماکن دفن توسط اکسیداسیون فنتون و انعقاد شیمیایی (در حالت مجزا) اشاره کرد. آنها گزارش کرده‌اند که با افزایش غلظت یون‌های آهن در غلظت ثابت یون هیدروژن پراکسید راندمان حذف تا غلظت مشخص افزایش و سپس کاهش می‌یابد و همچنین نتایج مطالعات آنها نشان داد که با حضور غلظت بیشتر یون‌های آهن تا حد مشخصی سرعت تجزیه هیدروژن پراکسید به رادیکال‌های هیدروکسیل به شدت افزایش یافته و در صورت افزایش بیش از اندازه آن اثر باز دارندگی در تولید رادیکال‌های هیدروکسیل داشته و موجب کاهش سرعت و بازده تخریب مواد آلاینده هدف می‌شود (۲۰ و ۳۳). واکنش گر فنتون دارای عملکردهای متفاوت تصفیه است بدین معنی که بسته به نسبت هیدروژن پراکسید بر یون‌های آهن، نوع تصفیه آن متفاوت خواهد بود. زمانی که میزان یون‌های آهن بیشتر از هیدروژن پراکسید باشد کوآگولاسیون شیمیایی شکل غالب خواهد بود (۱۶). در این مطالعه نیز مطابق نتایج مطالعات فوق بر اساس شکل ۸ با افزایش غلظت یون‌های آهن تولیدی با افزایش زمان واکنش

در غلظت ثابت ماده هیدروژن پراکسید، راندمان حذف اسید هیومیک توسط فرایند فنتون به شدت کاسته شد، اما با توجه به اثر رادیکال‌های هیدروکسیل در فرایند فنتون مقادیری از اسید هیومیک به دام افتاده در حجم لجن به دی اکسید کربن و آب و نمک‌های معدنی تبدیل شده و بنابراین از غلظت آن در لجن کاسته شد (۱۲). به طور کلی با توجه به بهبود شرایط انعقاد راندمان کل حذف اسید هیومیک از نمونه‌های آبی افزایش یافت. در این مطالعه بهترین اثر تزریق هیدروژن پراکسید ۳۰٪ به میزان ۵۰ میلی گرم بر لیتر به نمونه‌ها در زمان‌های کوتاه‌تر که غلظت یون‌های آهن کمتر بوده است، انجام گرفته است.

### بررسی اثر تغییرات زمان واکنش

تقریباً در بسیاری از مطالعات انجام گرفته این پارامتر جز اصلی، اولیه و مهمی در بررسی هر فرایند است چرا که علاوه بر کاهش هزینه‌های اقتصادی بر قدرت و قابلیت استفاده از فرایند مربوط افزوده خواهد شد (۲۸). در مطالعات مختلف، اثر زمان اکسیداسیون‌های مختلف بر کارایی فرایند فنتون و انعقاد الکتریکی مورد بررسی قرار گرفته است که از جمله می‌توان به مطالعه Matilainena و همکارانش در بررسی حذف ترکیب اسید هیومیک توسط عمل انعقاد در طی تصفیه آب آشامیدنی (۱۷) و مطالعه Savas و همکارانش در بررسی اثر  $\text{pH}$  اولیه بر میزان حذف ماده اسید هیومیک در فرایند الکتروکوآگولاسیون اشاره نمود (۳۰). این محققین نتیجه‌گیری نموده‌اند که با افزایش زمان واکنش و مصرف انرژی میزان تشکیل ذرات معلق و تا زمان معینی راندمان حذف افزایش و پس از آن نرخ رشد راندمان حذف کاهش می‌یابد که به دلایل اقتصادی از ادامه فرایند خودداری می‌گردد. در مطالعه بذرافشان و همکاران با عنوان حذف اسید هیومیک از محیط‌های آبی توسط فرایند انعقاد الکتریکی تجهیز شده با الکتروده آهنی زمان بهینه معادل ۸۰ دقیقه گزارش شده است (۲۹). مطالعه Goslan و همکارانش با عنوان بررسی کاهش مواد آلی طبیعی در منابع آب با استفاده از پرتو تابی فرابنفش و فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته نشان داد که با افزایش زمان واکنش راندمان حذف تا حدی افزایش می‌یابد و پس از آن اثر ناچیزی بر فرایند خواهد داشت. ایشان در مطالعه خود زمان اکسیداسیون بهینه را ۳۰ دقیقه گزارش نمودند (۳۷). در مطالعه ملکوتیان و همکارانش

### بررسی اثر هدایت الکتریکی

آب‌های طبیعی و تمامی فاضلاب‌ها و پساب‌ها همگی محتوی ترکیبات و یون‌های متفاوتی هستند که در صورت ایجاد پل الکتریکی در این محیط‌های آبی، یون‌های موجود مسبب انتقال جریان الکتریکی بین این پل می‌گردند. هر چه قدرت یونی این گونه‌ها بزرگتر باشد انتقال جریان در ولتاژ ثابت افزایش بیشتری داشته و یا در جریان یکنواخت با افزایش هدایت الکتریکی میزان ولتاژ کاهش می‌یابد (شکل ۳ و ۴ و ۶ و ۷) (۲۸ و ۲۹). اثر هدایت الکتریکی بر راندمان حذف، انرژی و وزن الکتروود مصرفی ضمن استفاده از الکتروود با جنس آهن نشان داده شده است. حضور یون‌های کلراید در آب موجب از بین رفتن لایه اکسید غیرفعال تشکیل شده از سطوح الکتروود می‌شود، پس میزان مصرف انرژی در اختلاف پتانسیل ثابت افزایش یافته و راندمان حذف فنل بهبود یافته است (۲۵). بررسی شکل‌ها نشان داد که با افزایش هدایت الکتریکی حاصل از افزودن ۱، ۱/۵، ۲ و ۳ گرم بر لیتر کلراید پتاسیم راندمان حذف اسید هیومیک به طور محسوس افزایش یافته است. در واقع مصرف انرژی بیشتر با اختلاف پتانسیل ثابت در این دو نقطه علاوه بر افزایش تولید مواد منعقدکننده، با افزایش تولید حباب‌های حاصل از متصاعد شدن گاز هیدروژن، افزایش اندازه و رشد لخته‌های تولیدی، افزایش راندمان در فرایند انعقاد الکتریکی را موجب شده است (۲۹-۲۵).

### نتیجه‌گیری

حذف اسید هیومیک از محلول‌های آبی تنها در شرایطی مطلوب خواهد بود که توجه کافی به شرایط بهره‌برداری در فرایند انعقاد الکتریکی و فرایند فنتون صورت گیرد. با توجه به بالاترین راندمان حذف و شرایط pH در آب‌های طبیعی و تولید بیشتر یون آهن در این pH، فرایند موثر و بهینه در این مطالعه، فرایند انعقاد الکتریکی است. بالاترین راندمان کلی حذف اسید هیومیک در اینجا در شرایط بهینه pH اولیه مساوی ۵، زمان واکنش ۶۰ دقیقه، هدایت الکتریکی حاصل از افزودن ۳ گرم بر لیتر کلراید پتاسیم، اختلاف پتانسیل ۱۰ ولت و غلظت اولیه ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر اسید هیومیک معادل ۹۷/۱۹ درصد با سهم اثر فرایند انعقاد الکتریکی ۹۲/۱ درصد و سهم اثر فرایند فنتون ۷/۹ درصد، حاصل شد.

با عنوان بررسی تصفیه‌پذیری شیرابه زباله شهر کرمان با استفاده از فرایند فنتون گزارش شده است که راندمان حذف تا زمان ۷۵ دقیقه افزایش و پس از آن راندمان حذف کاهش داشته است. این محققین زمان واکنش بهینه را ۷۵ دقیقه گزارش کرده اند (۳۶). در فرایند فنتون کربن آلی طی واکنش‌های اکسیداسیون و احیای به کربن معدنی (غیر آلی) از جمله دی‌اکسید کربن در محیط آبی تبدیل و سپس طی معادلاتی به کربنات و بی‌کربنات تبدیل می‌شوند (۱۶). کربنات و بی‌کربنات در فرایند فنتون به عنوان خاموش‌کننده رادیکال‌های هیدروکسیل عمل کرده و موجب کاهش راندمان حذف ناشی از حضور رادیکال‌های هیدروکسیل می‌شوند (۳۸). یکی از مزیت‌های این مطالعه این است که گاز دی‌اکسیدکربن توسط عمل اختلاط انجام گرفته ناشی از خروج گاز هیدروژن تولید شده در فرایند به دلیل یون‌های زیاد تولیدی در قطب‌های الکتروود، از محیط تحت فرایند خارج می‌شود، بنابراین از تشکیل کربنات‌ها و بی‌کربنات به شدت کاسته می‌شود. در برخی مطالعات نیز گزارش شده است که با اعمال تجزیه اولیه مواد هیومیک در آنها واکنش‌های زنجیره‌ای رخ می‌دهد که خود موجب تجزیه بیشتر مواد هیومیکی می‌گردند (۱۷). در این مطالعه با توجه به این که در زمان‌های ۵، ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه، مقادیر ثابت هیدروژن پراکسید به نمونه‌ها افزوده می‌شد مهم‌ترین عامل کاهش نرخ رشد راندمان در فرایند فنتون ناشی از اثر زمان واکنش، افزایش بیش از حد یون‌های آهن و در نتیجه تجزیه سریع ماده هیدروژن پراکسید به رادیکال‌های پر قدرت هیدروکسی با نیمه عمر بسیار کوتاه (۱۶)، قبل از اتصال به مواد آلی جهت تجزیه آنها و همچنین کمتر شدن حضور اسید هیومیک به علت حذف این ماده در زمان‌های کوتاه‌تر توسط فرایند فنتون و انعقاد است. در این حالت مهم‌ترین عامل موثر بر افزایش راندمان افزایش حضور یون‌های آهن و در نتیجه انجام عمل انعقاد ناشی از تشکیل لخته‌های منعقدکننده بیشتر و همچنین تبدیل قدرت اثر فرایند فنتون با توجه به وضعیت pH محیط از عمل تجزیه به ایجاد عمل انعقاد و کمک به آن را می‌توان اشاره کرد. در این مطالعه زمان بهینه برای اثر فرایند فنتون جدای از در نظر گرفتن pH محیط، زمان ۵ دقیقه و برای اثر فرایند انعقاد الکتریکی زمان ۶۰ دقیقه زمان واکنش بهینه معرفی می‌گردد.

## تشکر و قدردانی

دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی، درمانی زاهدان اجرا شده است. بدینوسیله از مسئولین و همکاران محترم حوزه تحقیقاتی دانشگاه و همه افرادی که به نوعی در انجام این تحقیق مساعدت نمودند، تشکر و قدردانی به عمل می‌آید.

این مقاله حاصل طرح تحقیقاتی با عنوان بررسی استفاده از  $H_2O_2$  و  $Fe^{2+}/H_2O_2$  در حذف اسید هیومیک از محیط‌های آبی، مصوب دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی، درمانی زاهدان در سال ۱۳۸۹ با کد ۲۱۴۶-۸۹ است که با حمایت

## منابع

- Katsumata H, Sada M, Kaneco S, Suzuki T, Ohta K, Yobiko Y. Humic acid degradation in aqueous solution by the photo-Fenton process. *Chemical Engineering Journal*. 2008;137(2):225-30.
- Magdaleno GB, Coichev N. Chemiluminescent determination of humic substances based on the oxidation by peroxymonosulfate. *Analytica Chimica Acta*. 2005;552(1-2):141-46.
- Panyapinyopol B, Marhaba TF, Kanokkantapong V, Pavasant P. Characterization of precursors to trihalomethanes formation in Bangkok source water. *Journal of Hazardous Materials*. 2005;120(1-3):229-36.
- Yoon Y, Lueptow RM. Removal of organic contaminations by RO and NF membranes. *Journal of Membrane Science*. 2005;261(1-2):76-86.
- Jacangelo JG, Demarco J, Owen DM, Randtke SJ. Selected processes for removing NOM: An overview. *Journal of the American Water Works Association*. 1995;87(1): 64-77.
- Morran JY, Bursill DB, Drikas M, Nguyen H. A new technique for the removal of natural organic matter. *Proceedings of AWWA Watertec Convention*; 1996; Sydney, Australia; 1996.
- Fan SC, Wang YC, Li CL, Lee KR, Laiw DJ, Huang HP, Lai YY. Effect of coagulation media on membrane formation and vapor permeation performance of novel aromatic polyimide membrane. *Journal of Membrane Science*. 2002;204(1-2):67-79.
- Huang WJ, Chen LY, Peng HS. Effect of NOM characteristic on brominated organics formation by ozonation, *Environment International*. 2004;29(8):1049-55.
- Zhang X, Minear RA. Formation, adsorption and separation of high molecular weight disinfection byproducts resulting from chlorination of aquatic humic substances. *Water Research*. 2006;40:221-30.
- Fearing, Wilson D, Hillis PH. Combination of Ferric AND MIEX for the treatment of a humic Rich Water. *Water Research*. 2004;38(10):2551-58.
- AWWA. *Water Quality and Treatment: A Handbook on Drinking Water*. 6th ed. New York: McGraw-Hill; 2011.
- Flotron V, Delteil C, Padellec Y, Camel V. Removal of sorbed polycyclic aromatic hydrocarbons from soil, sludge and sediment samples using the Fenton's reagent process. *Chemosphere*. 2005;59:1427-37.
- Ferrarese E, Andreottola G, Oprea IA. Remediation of PAH-contaminated sediments by chemical oxidation. *Journal of Hazardous Materials*. 2007;152(1):128-39.
- Beagles A. *Electrocoagulation (EC) – Science and applications*. California: ECO Services International; 2004 [cited 2002 Jul 9]. Available from: <http://www.eco-web.com/edi/050526.html>.
- Faiqun M, Fadil NA, J Othman, Sohaili Z. Removal of COD and Turbidity to improve wastewater quality using electrocoagulation technique. *The Malaysian Journal of Analytical Sciences*. 2007;11(1):198-205.
- Neyens E, Baeyens J. A review of classic Fenton's peroxidation as an advanced oxidation technique. *Journal of Hazardous Materials*. 2003;98(1-3):33-50.
- Matilainen A, Vepsalainen M, Sillanpaa M. Natural organic matter removal by coagulation during drinking water treatment: A review. *Advances in Colloid and Interface Science*. 2010;159(2):189-197.
- Mesdaghinia A, Tayefeh Rafeii MT, Mahvi A, Vaezi F. Using coagulation process in optimizing natural organic matter removal from low turbidity waters. *Journal of Water and Wastewater*. 2006;57:2-7 (in Persian).

19. Lipczynska-Kochany E, Kochany J. Effect of humic substances on the Fenton treatment of wastewater at acidic and neutral pH. *Chemosphere*. 2008;73:745–50.
20. Shaoqi Z, Fanghui Q, Huaping P, Yanglan L, Yiming L. Removal of humic substances from landfill leachate by Fenton oxidation and coagulation. *Process Safety and Environmental Protection*. 2010;88:276–84.
21. Ahmadi Moghadam M, Amiri H. Investigation of TOC Removal from Industrial Wastewaters using Electrocoagulation Process. *Iranian Journal of Health & Environment*. 2010;3(2):185-94 (in Persian).
22. Khodadadi DA, Shahmansouri A, Ganjidost H. Fenton remediation of methyl tertiary butyl ether (MTBE) and effects of reaction conditions on the byproducts formed. *Journal of Water and Wastewater*. 2009;72:36-43 (in Persian).
23. APHA, AWWA, WEF. *Standard Method for the Examination of Water and Wastewater*. 20th ed. Washington DC: APHA; 1998.
24. Susana SM, Cristina LB. Chlorbromuron urea herbicide removal by electro-Fenton reaction in aqueous effluents. *Water Research*. 2009;43(1):33–40.
25. Bazrafshan E, Mahvi AH, Nasser S, Shaighi M. Performance evaluation of electrocoagulation process for diazinon removal from aqueous environment by using iron electrodes. *Iranian Journal of Environmental Health Science and Engineering*. 2007;2(4):127-32.
26. Bazrafshan E, Mahvi A. H. Performance evaluation of electrocoagulation process for removal of chromium(VI) from synthetic chromium solutions using iron and aluminum electrodes. *Turkish Journal of Engineering and Environmental Sciences*. 2008;32:59–66.
27. Nouri J, Mahvi A H, Bazrafshan E. Application of electrocoagulation process in removal of zinc and copper from aqueous solutions by aluminum electrodes. *Iranian Journal of Environmental Research*. 2010;4(2):201-208.
28. Biglari H, Bazrafshan E. Phenol removal from synthetic aqueous environment by electrochemical process using iron and aluminum electrodes. *Iranian Journal of Health & Environment*. 2011;4(5):531-42 (in Persian).
29. Bazrafshan E, Biglari H, Kord Mostafapour F. Humic acid removal from aqueous environments by electrocoagulation process using iron electrodes. *Journal of Rostamineh*. 2011;3(1):36-46 (in Persian).
30. Savas A, Yalcin K, Yildiz S, Keskinler B, Demircioglu N. Effect of initial pH on the removal of humic substances from wastewater by electrocoagulation. *Separation and Purification Technology*. 2008;59:175–82.
31. Feng Qy, Xiang dL, Yu Jie Ch, Lei M, Qing Jun M. Removal of humic acid from groundwater by electrocoagulation. *Journal of China University of Mining and Technology*. 2007;17(4):513-20.
32. Ho KJ, Liu TK, Huang TS, Lu FJ. Humic acid mediates iron release from ferritin and promotes lipid peroxidation in vitro: a possible mechanism for humic acid-induced cytotoxicity. *Archives of Toxicology*. 2003;77:100–109.
33. Pignatello JJ, Oliveros E, MacKay A. Advanced oxidation processes for organic contaminant destruction based on the Fenton reaction and related chemistry. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*. 2006;36:81–84.
34. Emami F, Tehrani-Bagha AR, Gharanjig K. Influence of Operational Parameters on the Decolorization of an Azo Reactive Dye (C. I Reactive Red 120) by Fenton Process. *Iranian Journal of Color Science and Technology*. 2010;4:105-14 (in Persian).
35. Kusic H, Bozic AN NL, Koprivanac N. Fenton type processes for minimization of organic content in coloured wastewaters: Part I: Processes optimization. *Dyes and Pigments*. 2007;74:380-87.
36. Malakootian M, Jafarzadeh M, Haghhighifard N, Ahmadian M, Loloie M. Influence of fenton process on treatability of Kerman City solid waste leachate. *Iranian Journal of Health & Environment*. 2010;3(2):123-34 (in Persian).
37. Goslan E H, Gurses F, Banks J, Parsons SA. An investigation into reservoir NOM reduction by UV photolysis and advanced oxidation processes. *Chemosphere*. 2006;65:111–13.
38. Al-Ananzeh NM. *Oxidation processes: Experimental study and theoretical investigations [dissertation]*. UK: Worcester Polytechnic Institute; 2004.

# **Humic acid Removal from Aqueous Environments by Electrocoagulation Process Duad with Adding Hydrogen Peroxide**

**Edris Bazrafshan<sup>1</sup>, Ahmad Joneidi Jaafari<sup>2</sup>, Ferdos Kord Mostafapour<sup>1</sup>, \*Hamed Biglari<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>Department of Health Promotion Research Center, Zahedan University of Medical Sciences, Zahedan, Iran

<sup>2</sup>Department of Environmental Health, Faculty of Medical Sciences, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran

Received; 29 October 2011 Accepted; 24 December 2011

## **ABSTRACT**

**Background and Objectives:** Presence of humic acids in water resources is important because it is a precursor to disinfection by-products (DBPs) and affects many treatment processes. In this study, we investigated the performance of electrocoagulation process duad with hydrogen peroxide (creating Fenton process) in removal of humic acids (HA) from aqueous environment.

**Materials and Methods:** The experiments were performed using a 1 L bipolar batch reactor (covered with the aluminum foil) equipped with iron electrodes and connected to electric source having electrical potential 10 V in bipolar mode. First, reactor was filled up using aqueous solution containing 20 mg/L HA. Later, several working parameters, such as initial pH (3, 5, 7, and 8), electrical conductivity produced from adding 1, 1.5, 2 and 3 g/l KCl and reaction time were studied to achieve the highest humic acid removal capacity. To follow the progress of the treatment, hydrogen peroxide (50 mg/l) was added to reactor and then samples of 10 ml were taken at 5, 15, 30, 45, and 60 min and then filtered (0.45  $\mu$ ) to eliminate sludge formed during electrolysis. Finally, humic acid and iron concentration was measured using TOC analyzer and atomic absorption method respectively.

**Results:** Results of this study showed that the most effective removal capacities of humic acid (97.19%) could be achieved when the pH was kept 5(KCl 3g/l and reaction time 60 min). The share of Fenton and electrocoagulation process was %7.9 and %92.1 respectively. In addition, our results indicated that the removal efficiency of humic acid with increase of pH and electrical conductivity parameters decreases and increases respectively.

**Conclusion:** It can be concluded that the Fenton process duad with electrocoagulation process has the potential to be utilized for cost-effective removal of humic acid from aqueous environments.

**Keywords:** Humic acid, Electrocoagulation, Fenton, Hydrogen Peroxide

---

**\*Corresponding Author:** *Hamed.biglari@gmail.com*

**Tel:** +98 541 24202983 , **Fax:** +98 541 2420014