



## کاربرد فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده در حذف یون نیترات از محیط آبی

ادریس بذرافشان<sup>۱</sup>، محمد مهدی سوری<sup>۲</sup>، فردوس کرد مصطفی پور<sup>۳</sup>، حسین جعفری منصوریان<sup>۴</sup>، علی پاسبان<sup>۵\*</sup>

### چکیده

**زمینه و هدف:** امروزه در بسیاری از شهرهای کشور افزایش بیش از حد آنیون نیترات منابع آبی مشاهده می‌شود که این افزایش غلظت زمینه ساز بروز مخاطرات زیست محیطی فراوانی می‌باشد. نیترات در غلظت‌های بالا در آب آشامیدنی در نوزادان زیر ۶ ماه با هموگلوبین تولید متهموگلوبین کرده و ایجاد سندرم بچه آبی می‌کند. از این رو در مطالعه حاضر میزان حذف یون نیترات از محیط‌های آبی با استفاده از فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده مورد بررسی قرار گرفته است.

**مواد و روش کار:** مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی در مقیاس آزمایشگاهی است که در شکل پایلوت به انجام رسید. یک مخزن شیشه ای به حجم ۱/۵۷ لیتر (حجم مؤثر یک لیتر) و حاوی چهار الکتروود صفحه آهنی جهت انجام مطالعه مورد استفاده قرار گرفت. الکتروودها به روش دو قطبی به یک منبع تغذیه (جهت تبدیل جریان برق متناوب به مستقیم) متصل شدند. در ابتدا مخزن با نمونه سنتتیک حاوی آنیون نیترات در غلظت‌های اولیه ۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر پر شده و سپس عملیات واکنش آغاز می‌شد. در ادامه درصد حذف یون نیترات در مقادیر pH برابر ۳، ۷ و ۱۰ و در گستره پتانسیل الکتریکی ۱۰ الی ۴۰ ولت، در زمانهای واکنش ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه تعیین مقدار شد.

**یافته‌ها:** بر اساس یافته‌های مطالعه حاضر بیشترین راندمان حذف نیترات توسط الکتروود آهنی معادل ۹۶ درصد در غلظت ۵ میلی گرم در لیتر نیترات و pH=۱۰ و ولتاژ ۴۰ بدست آمد. در این شرایط میزان انرژی مصرفی ۰/۰۲۵۷ کیلو وات ساعت در لیتر تعیین شد. **نتیجه گیری:** نتایج این مطالعه نشان داد که راندمان حذف نیترات توسط فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده با pH، ولتاژ و زمان تماس رابطه مستقیم و با غلظت اولیه نیترات رابطه عکس دارد. از طرفی با توجه به راندمان بالای فرایند، می‌توان این روش را به عنوان روشی مؤثر جهت تصفیه آبها یا پساب‌های حاوی یون نیترات مورد استفاده قرار داد. **واژه‌های کلیدی:** فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده، حذف نیترات، محیط آبی

- ۱- دانشیار عضو هیات علمی مرکز تحقیقات ارتقاء سلامت، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، زاهدان، ایران
- ۲- دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، زاهدان، ایران
- ۳- استادیار عضو هیات علمی مرکز تحقیقات ارتقاء سلامت، دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، زاهدان، ایران
- ۴- مربی عضو هیات علمی مرکز تحقیقات ارتقاء سلامت، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی زاهدان، زاهدان، ایران
- ۵- دانشجوی دکتری بهداشت محیط، عضو هیات علمی دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی، بجنورد، ایران

\*نویسنده مسئول: بجنورد، دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی، دانشکده بهداشت

تلفن: ۰۵۸۴-۲۲۴۰۵۷۱ پست الکترونیک: alipaseban@gmail.com

تاریخ دریافت: ۱۳۹۰/۹/۱ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۰/۱۱/۶

## مقدمه

شتاب سریع جوامع انسانی به سمت شهرنشینی، صنعتی شدن و توسعه فعالیتهای کشاورزی باعث انتشار انواع آلودگی‌های زیست محیطی شده است. ترکیبات نیتروژنی از جمله آلاینده‌هایی است که در اثر آلودگیهای زیست محیطی وارد محیط شده و سبب بروز مشکلاتی از قبیل اوتروفیکاسیون دریاچه‌ها، کاهش کیفیت آب و اثرات سوء برای سلامت انسان‌ها و حیوانات می‌شود [۱]. غلظت بالای نیترات در حدود ۱۰۰ تا ۲۰۰ میلی‌گرم در لیتر در منابع آب شرب می‌تواند باعث بروز بیماری متهموگلوبینمیا گردد. در این بیماری نیترات در بدن تبدیل به نیتريت می‌شود و وارد جریان خون شده و آهن دو ظرفیتی خون را اکسید کرده و آنرا تبدیل به آهن سه ظرفیتی می‌کند. لذا هموگلوبین که قابلیت انتقال اکسیژن را دارد به متهموگلوبین تبدیل می‌شود که دیگر توانایی انتقال اکسیژن را ندارد و در نتیجه بافت‌ها دچار کمبود اکسیژن می‌شوند [۶-۲]. بر اساس استانداردهای سازمان جهانی بهداشت حداکثر مقدار مجاز نیترات در آب آشامیدنی ۵۰ میلی‌گرم در لیتر تعیین شده است [۷]. در ایران مؤسسه استاندارد و تحقیقات صنعتی که از اعضای سازمان بین‌المللی استاندارد می‌باشد حداکثر غلظت مجاز نیترات آب آشامیدنی را ۵۰ میلی‌گرم در لیتر بر حسب یون نیترات تعیین نموده است و به منظور دستیابی به این استاندارد در مورد منابع آبی آلوده انجام فرآیند تصفیه آب ضرورت دارد [۸].

روش‌های تصفیه و حذف نیترات از آب مشتمل بر فرایندهای فیزیکی، بیولوژیکی و شیمیایی می‌باشد. تبادل یون، اسمز معکوس، دنیتریفیکاسیون بیولوژیکی و احیای شیمیایی روش‌هایی هستند که تاکنون برای حذف نیترات از آب مورد استفاده قرار گرفته‌اند [۹]. فرایندهای اسمز معکوس و تبادل یون به صورت انتخابی در حذف نیترات عمل نمی‌کنند و نیاز به احیای مداوم محیط دارند. این دو فرایند تغییر فرم شیمیایی در نیترات ایجاد نمی‌کنند و در نهایت پساب آلوده‌ای نیز تولید می‌گردد. بنابراین رویکرد کنونی استفاده از روشهای تصفیه آب در محل برای اصلاح کیفیت آبهای آلوده شده به نیترات می‌باشد. فرایند الکتروشیمیایی یکی از این روش‌ها است که فاقد مشکلات ذکر شده می‌باشد [۹، ۱۱]. عوامل مؤثر بر روی عملکرد فرایند الکتروشیمیایی شامل: توزیع یکنواخت جریان،

میزان انتقال جرمی بالا، پایداری الکتروود و ولتاژ مورد استفاده می‌باشد [۳، ۱۲، ۱۳]. حذف انتخابی نیترات، عدم نیاز به مواد شیمیایی برای فرایند انعقاد، ارزان بودن و دوست دار محیط زیست بودن به علت استفاده از انرژی برق از جمله مزایای حذف نیترات به روش الکتروشیمیایی می‌باشد [۳، ۱۴]. همچنین نتایج تحقیقات حاکی از آن است که فرایندهای الکتروشیمیایی توانایی تبدیل آلاینده‌های آلی را به گازهای بی‌خطری مانند  $\text{CO}_2$  و  $\text{N}_2$  دارند [۱۵]. عمل اکسیداسیون و احیا در فرایند الکتروشیمیایی به ترتیب بر روی الکترودهای آند و کاتد همراه با تولید هیدروژن، آنیون هیدروکسیل و احیای نیترات به وسیله هیدروژن همراه با تولید گاز نیتروژن در کاتد، تولید اکسیژن و کلر در حضور یون کلراید در آند انجام می‌شود [۳].

از این رو مطالعه حاضر با هدف تعیین کارایی فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده در حذف یون نیترات از آب با استفاده از الکترودهای آهنی طراحی و اجرا شد. همچنین اثر pH، زمان الکتروولیز و پتانسیل الکتریکی به عنوان متغیرهای مطالعه مورد بررسی قرار گرفتند.

## روش کار

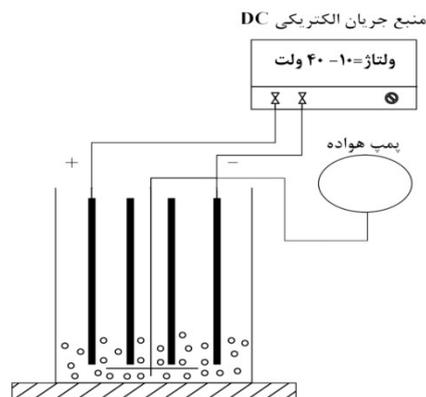
مطالعه حاضر که یک مطالعه تجربی آزمایشگاهی است به صورت طرح پایلوت در محل آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی زاهدان در سال ۱۳۸۹ انجام پذیرفت. تمامی ترکیبات شیمیایی از جمله نیترات پتاسیم، اسید سولفوریک، کلرید پتاسیم، هیدروکسید سدیم و اسید هیدروکلریک از نوع مرک مورد استفاده قرار گرفتند. محلول سنتتیک نیترات با غلظت‌های ۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر از طریق انحلال مقادیر مشخص نیترات پتاسیم با آب مقطر دو بار تقطیر تهیه شد [۱۶]. به منظور تنظیم هدایت الکتریکی تمامی نمونه‌ها در مقدار ۱۵۰۰ میکروزیمنس بر سانتیمتر از کلرید پتاسیم ۱ نرمال استفاده شد. به منظور ارزیابی تأثیر pH در فرآیند حذف نیترات، آزمایشات در pH های ۳، ۷ و ۱۰ انجام پذیرفت. به منظور تنظیم pH محلول اولیه از اسید سولفوریک و هیدروکسید سدیم ۰/۱ نرمال استفاده شد. تجهیزات مربوط به واحد الکتروشیمیایی (شکل ۱) شامل یک منبع تغذیه جهت تبدیل جریان برق شهری (AC) به جریان مستقیم (DC) و چهار عدد الکتروود (صفحات فلزی) از جنس آهن با ابعاد حدود  $۱۵ \times ۹/۵$

[۱۰،۷،۳] و هدایت الکتریکی (۱۵۰۰ میکروزیمنس بر سانتیمتر) به درون راکتور تزریق شدند. پس از برقراری جریان الکتریکی با ولتاژهای ۱۰، ۲۰، ۳۰ و ۴۰ ولت و راه اندازی پمپ هوا با میزان جریان هوای ۳/۵ لیتر در دقیقه، نمونه‌های ۵۰ میلی لیتری از میانه راکتور در فواصل زمانی ۱۵ دقیقه ای و در مدت زمان ۶۰ دقیقه برداشت شده، پس از عبور از صافی غشایی واتمن ۰/۴۲ میکرون، نمونه‌ها طبق روش‌های استاندارد برای آزمایشات آب و فاضلاب با استفاده از روش اسپکتروفتومتری ماوراء بنفش در طول موج ۲۲۰ nm و ۲۷۵ nm به منظور اندازه گیری غلظت یون نیترات مورد آنالیز قرار گرفتند [۱۶]. پس از انجام هر آزمایش الکترودها توسط آب مقطر به مدت ۱ دقیقه شسته شده و سپس به مدت ۳۰ دقیقه در محلول اسید هیدروکلریک (۱۵٪ wt) برای تمیز شدن سطح الکترودها قبل از توزین و استفاده مجدد قرار داده شد. داده‌های بدست آمده با استفاده از نرم افزار Excel مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت.

#### یافته‌ها

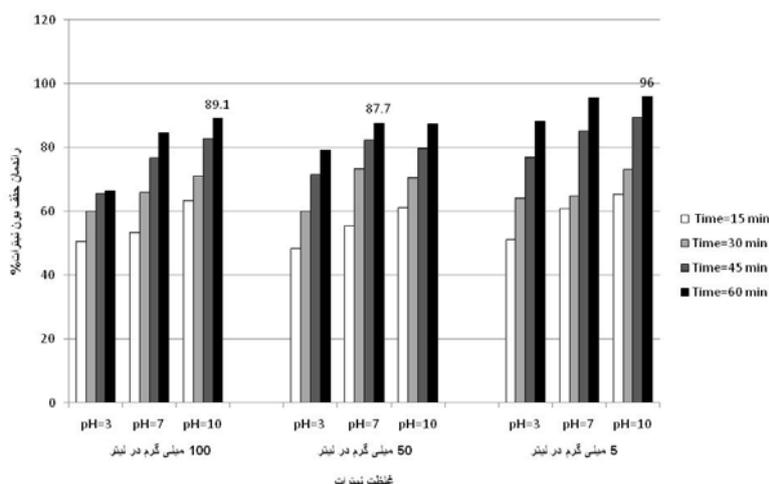
راندمان حذف یون نیترات در ولتاژ ۴۰ و در غلظت‌های مختلف (۵، ۵۰، ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر نیترات) و سه محدوده pH (۳، ۷، ۱۰)، در مدت زمان‌های ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه توسط فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده مورد بررسی قرار گرفته و در نمودار ۱ آورده شده است.

سانتیمتر به ضخامت حدود ۲ میلی‌متر و مساحت هر صفحه ۱۴۲/۵ سانتیمتر مربع با فاصله ثابت ۱/۵ سانتیمتر بود که درون یک مخزن بشکل مکعب مستطیل با ابعاد ۱۲×۱۲×۱۶ سانتیمتر (طول × عرض × ارتفاع) از جنس شیشه نشکن و مقاوم در برابر خوردگی اسید (بوکال)، ساخت کارخانه مرک آلمان با حجم مؤثر ۲ لیتر قرار داده شد. همچنین با استفاده از یک پمپ هوا فرایند هوادهی همزمان با شروع فرایند الکتروشیمیایی انجام شد.



شکل ۱: نمایی از راکتور الکتروشیمیایی با الکترودهای دو قطبی

محلول‌های سنتتیک نیترات با غلظت‌های ۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر (با رقیق سازی محلول استوک که از طریق انحلال مقادیر مشخص نیترات پتاسیم با آب مقطر دو بار تقطیر حاصل شده بود) پس از تنظیم pH



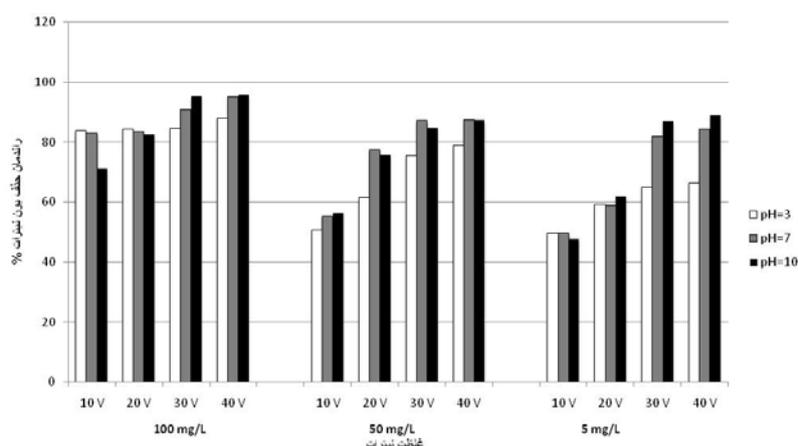
نمودار ۱: راندمان حذف یون نیترات در ولتاژ ۴۰ ولت و غلظت‌های نیترات (۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر) و pH های مختلف طی فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده [۱۰،۷،۳]

در لیتر نیترات) در زمان ۶۰ دقیقه در نمودار ۲ نشان داده شده است. بر این اساس در ولتاژ ۱۰ ولت،  $pH = 10$  و در غلظت ۵ میلی گرم در لیتر نیترات در زمان ۶۰ دقیقه راندمان حذف یون نیترات ۷۱/۴ درصد می باشد و با افزایش ولتاژ راندمان حذف نیترات افزایش یافته و به ۹۶ درصد در ولتاژ ۴۰ ولت رسیده است و در غلظت های دیگر ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر نیترات نیز با افزایش ولتاژ، راندمان حذف افزایش داشته است.

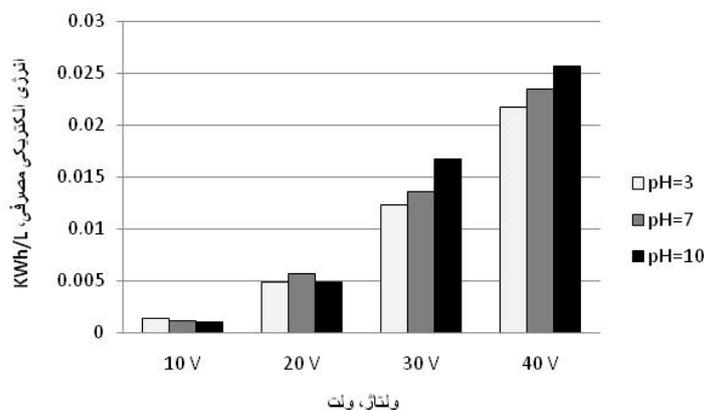
همچنین نمودار ۳ ارتباط بین انرژی الکتریکی مصرفی و ولتاژ در فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده در غلظت ۵ میلی گرم در لیتر نیترات و در سه محدوده  $pH [3, 7, 10]$  را نشان می دهد. بر این اساس انرژی الکتریکی مصرفی در غلظت ۵ میلی گرم در لیتر نیترات و در ولتاژ ۴۰ ولت در  $pH$  های ۳، ۷ و ۱۰ به ترتیب ۰/۰۲۱۸، ۰/۰۲۳۵ و ۰/۰۲۵۷ کیلو وات ساعت در لیتر تعیین شد.

بر همین اساس و با توجه به نمودار ۱ مشاهده می شود که بالاترین راندمان حذف یون نیترات توسط فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده در غلظت ۵ میلی گرم در لیتر نیترات و  $pH = 10$  برابر با ۹۶ درصد می باشد و بالاترین میزان حذف یون نیترات در غلظت های ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر نیترات به ترتیب ۸۷/۷ و ۸۹/۱ درصد تعیین شد. همچنین در هر یک از غلظت های (۵، ۵۰، ۱۰۰ میلی گرم در لیتر) نیترات و  $pH$  های مختلف  $[3, 7, 10]$ ، با افزایش زمان واکنش، راندمان حذف نیترات افزایش یافت. همچنین در هر یک از غلظت های ۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر نیترات مشاهده گردید که با افزایش  $pH$  راندمان حذف نیترات نیز افزایش داشته است.

از طرفی تأثیر ولتاژ بر روی راندمان حذف یون نیترات توسط فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده در سه محدوده  $pH [3, 7, 10]$  و در سه غلظت (۵، ۵۰، ۱۰۰ میلی گرم



نمودار ۲: تأثیر ولتاژ بر روی راندمان حذف یون نیترات توسط فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده در سه محدوده  $pH (3, 7, 10)$  و در غلظت های  $(100, 50, 5)$  میلی گرم در لیتر (نیترات در زمان ۶۰ دقیقه)



نمودار ۳: ارتباط بین انرژی الکتریکی مصرفی و ولتاژ در فرایند الکتروشیمیایی هوادهی شده در غلظت ۵ میلی گرم در لیتر نیترات و در سه محدوده  $pH (3, 7, 10)$

در این مطالعه میزان الکتروود مصرفی در فرآیند الکتروشیمیایی هوادهی شده محاسبه و مقادیر آن در جدول ۱ نشان داده شده است.

جدول ۱: مقدار الکتروود آهن مصرفی در طی فرآیند الکتروشیمیایی هوادهی شده (g/L)

ولتاژ (V)	غلظت نیترات، ۵ mg/L			غلظت نیترات، ۵۰ mg/L			غلظت نیترات، ۱۰۰ mg/L		
	pH	pH	pH	pH	pH	pH	pH	pH	
	۱۰	۷	۳	۱۰	۷	۳	۱۰	۷	۳
۱۰	۰/۵۶	۰/۵۳	۰/۵۶	۰/۶۹	۰/۶۶	۰/۶۱	۰/۸۹	۰/۷۶	۰/۶۳
۲۰	۰/۷۶	۰/۶۸	۰/۷۴	۰/۷۸	۰/۸۴	۰/۷۴	۰/۹۷	۰/۹۳	۰/۸۸
۳۰	۰/۹۱	۰/۸۵	۰/۸۵	۰/۸۱	۰/۹۲	۰/۸۵	۱/۰۷	۱/۰۰	۰/۹۳
۴۰	۱/۱۲	۰/۹۴	۱/۰۰	۱/۱۴	۱/۳۳	۱/۲۴	۱/۳۴	۱/۲۶	۱/۱۸

### بحث

یافته‌های این پژوهش نشان می‌دهد که بالاترین راندمان حذف یون نیترات توسط فرآیند الکتروشیمیایی هوادهی شده در غلظت ۵ میلی‌گرم در لیتر نیترات و  $\text{pH}=10$  برابر با ۹۶ درصد می‌باشد. همچنین بالاترین میزان حذف یون نیترات در غلظت‌های ۵۰ و ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر نیترات به ترتیب ۸۷/۷ و ۸۹/۱ درصد تعیین شد، ضمن آنکه مشاهده گردید افزایش زمان واکنش بطور مستقیم در افزایش راندمان حذف نیترات تأثیر دارد (نمودار ۱)، بطوری‌که بالاترین راندمان‌های حذف در زمان واکنش ۶۰ دقیقه حاصل شد. همچنین مشاهده شد که برای یک زمان واکنش معین، با افزایش ولتاژ برق اعمال شده در فرآیند، راندمان حذف نیز بطور قابل ملاحظه‌ای افزایش می‌یابد، به طوری‌که به عنوان مثال در غلظت ۵ میلی‌گرم در لیتر نیترات و زمان واکنش ۶۰ دقیقه و در شرایط قلیایی ( $\text{pH}=10$ )، با افزایش ولتاژ از ۱۰ ولت به ۴۰ ولت، به ترتیب راندمان حذف نیترات از ۷۱/۴ درصد به ۹۶ درصد افزایش یافته است (نمودار ۲). اثر شدت جریان الکتروسیسته (ولتاژ برق اعمال شده) در فرآیند الکتروکواگولاسیون بخوبی مشخص شده است به نحوی که نه تنها تعیین کننده نرخ دوز کواگولانت تزریقی به محلول است، بلکه بر روی نرخ تولید حباب‌ها و اندازه و رشد فلوک‌های تولیدی نیز مؤثر است، که می‌تواند راندمان تصفیه فرآیند الکتروکواگولاسیون را تحت تأثیر قرار دهد [۱۷، ۱۸]. دلیل افزایش راندمان حذف یون

نیترات با افزایش ولتاژ را می‌توان با مکانیسم‌هایی که در حین استفاده از الکتروود آهنی در آند و کاتد بوقوع می‌پیوندد تفسیر نمود [۱۹، ۲۰]. به طور کلی دو مکانیسم برای واکنش‌هایی که در طی فرآیند الکتروشیمیایی با استفاده از الکتروود آهنی در آند و کاتد بوقوع می‌پیوندد و منجر به تولید منعقد کننده‌ها می‌شود قابل بیان است. محصولات اصلی واکنش‌های کاتدیک گاز هیدروژن و یون هیدروکسیل و محصولات اصلی واکنش‌های آندیک یون‌های  $\text{Fe}^{2+}$ ،  $\text{Fe}^{3+}$  و  $\text{H}^+$  می‌باشد. یون‌های هیدروکسیل تولید شده در طی احیاء آب در کاتد در واکنش با یون‌های آهن تولیدی در آند، تولید سوسپانسیون ژلاتینی هیدروکسید آهن  $\text{Fe}(\text{OH})_n$  می‌کنند که می‌تواند از طریق مکانیسم‌های کمپلکس‌سازی سطحی و جذب الکترواستاتیک یون‌های نیترات در محلول را به دام انداخته و یا حین ترسیب لخته‌های سنگین هیدروکسید آهن، یون نیترات توسط مکانیسم‌های فیزیکی جاروب کردن حذف شود. لخته‌های سبک نیز در اثر اتصال به حباب‌های گاز هیدروژن تولیدی در کاتد به سطح پساب آمده و حذف می‌گردند [۲۰].

در مطالعه‌ای که توسط دکا<sup>۱</sup> و همکاران در سال ۲۰۰۲ بر روی کاهش الکتروشیمیایی نیترات در محلول الکتروشیمیایی رسانا، که یکی از آنها حاوی آند فلزی محلول و دیگری نامحلول بود انجام گرفت، مشخص شد که میزان حذف یون نیترات تابعی از مدت زمان تصفیه،

<sup>۱</sup> - Duca

برخوردار بوده و مقدار آن در طی انجام فرآیند تغییر می‌کند. دامنه تغییرات pH به جنس الکترودهای مورد استفاده و مقدار pH اولیه محلول مورد نظر بستگی دارد [۲۳-۲۵]. در ولتاژهای بالا میزان مصرف انرژی در طول زمان بیشتر بوده و در نتیجه این افزایش مصرف انرژی، فعالیت‌های آندیک و کاتدیک افزایش یافته و میزان احیاء مولکول آب در کاتد به شدت افزایش می‌یابد و باعث می‌شود مقدار یون‌های هیدروکسیل در محیط به شدت افزایش یابد و در عین حال سرعت خروج یون‌های هیدروژن از محیط به صورت گاز  $H_2$  افزایش یافته و در نتیجه این امر به افزایش pH منجر می‌شود [۲۶]. نتایج حاصل از مطالعه حاضر با پژوهش‌های قبلی از جمله مطالعه کوبیا<sup>۱</sup> و همکاران [۲۵] منطبق بوده و این نکته را متذکر می‌شود که فرآیند الکتروشیمیایی هوادهی شده می‌تواند به عنوان یک تنظیم کننده pH عمل نماید. با توجه به نتایج این مطالعه مشخص شد که بهترین نتایج حذف در غلظت‌ها و اختلاف پتانسیل‌های مختلف در pH برابر ۱۰ حاصل شد.

ملاحظات ناشی از تغییرات ولتاژ و مدت زمان الکترولیز بیانگر این نکته است که کارایی حذف نیترات در سه pH ۳، ۷ و ۱۰ ارتباط مستقیم با ولتاژ و مدت زمان الکترولیز دارد به این معنی که با افزایش ولتاژ و مدت زمان الکترولیز راندمان حذف نیترات نیز افزایش می‌یابد. افزایش ولتاژ و مدت زمان الکترولیز به علت تولید سریعتر فرآورده ناشی از الکترولیز نظیر هیدروژن در کاتد و افزایش شرایط احیاء کنندگی به افزایش کارایی حذف منجر می‌شود [۲۷، ۲۸]. همچنین میزان حداکثر تغییر شیمیایی در واحد سطح الکتروده (چگالی جریان) در الکترولیز متناسب با غلظت نیترات در نمونه آب می‌باشد. این یافته تحقیق با مطالعه انجام شده توسط پلتچر<sup>۲</sup> در سال ۱۹۹۹ مطابقت دارد [۱۴]. همچنین در مطالعه حاضر کاهش شدت جریان الکتریکی با افزایش مدت زمان الکترولیز مشاهده شد که می‌توان استدلال نمود این امر ناشی از جذب سطحی- واجذب واکنشگرها و بلوکه شدن جریان باشد. نتایج یافته‌های تحقیق حاضر در این بخش با نتایج مطالعه انجام شده توسط والش<sup>۳</sup> در سال ۲۰۰۱

غلظت نیترات، شدت جریان و نوع الکترودهاست. در این آزمایش ثابت شد که میزان کاهش یون نیترات به مدت زمان تصفیه الکتروشیمیایی و غلظت اولیه یون‌های نیترات بستگی دارد [۲۱]. همانگونه که در نمودار ۱ ملاحظه می‌شود در ۱۵ دقیقه اول واکنش و در غلظت‌های مختلف نیترات ( ۵۰، ۵ و ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر نیترات) و  $pH=10$  راندمان حذف نیترات به ترتیب  $65/3$ ،  $61/1$  و  $63/3$  درصد است و در واقع بیشترین کاهش نیترات در ۱۵ دقیقه ابتدایی به وقوع پیوسته است. از سوی دیگر با گذشت زمان راندمان حذف به تدریج افزایش یافته و در زمان ۶۰ دقیقه به بالاترین مقدار خود برای تمام نمونه‌ها و pHها رسیده است. همچنین از نمودار ۱ چنین برداشت می‌شود که بالاترین راندمان حذف یون نیترات در بین سه غلظت مورد بررسی در این تحقیق (۵، ۵۰ و ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر نیترات) مربوط به غلظت ۵ میلی‌گرم در لیتر نیترات می‌باشد. یافته‌های تحقیق حاضر با مطالعه انجام شده توسط دکا و همکاران مطابقت دارد که بالاترین راندمان حذف را در مقدار حداقل غلظت نمونه مورد آزمایش مشاهده نمودند [۲۱].

نکته حائز اهمیت دیگر آنکه راندمان حذف یون نیترات به مقدار آهن تولید شده در محلول بستگی دارد. از آنجا که مقدار آهن تولیدی نیز به زمان واکنش و ولتاژ اعمال شده بستگی دارد، بنابراین زمانی که یکی از این دو پارامتر افزایش می‌یابد تولید مواد منعقد کننده نیز افزایش یافته و حذف آلاینده‌ها کامل تر می‌شود. بدین ترتیب با توجه به مطالب ذکر شده می‌توان افزایش راندمان حذف یون نیترات را در ولتاژها و زمان‌های واکنش بالاتر توجیه نمود [۲۲].

همچنین با توجه به نمودار ۱ مشخص می‌شود که مقدار pH در فرایند حذف یون نیترات از آب آشامیدنی تأثیر دارد به طوری که با افزایش pH درصد حذف نیترات افزایش می‌یابد و حداکثر حذف در pH معادل ۱۰، ولتاژ ۴۰ ولت و غلظت اولیه ۵ میلی‌گرم در لیتر نیترات به میزان ۹۶ درصد حاصل شد. البته لازم به ذکر است که با توجه به نتایج این مطالعه مشخص گردید که تأثیر pH در راندمان حذف نیترات در غلظت‌های بالاتر نیترات مشهودتر می‌باشد.

این نکته در مطالعات قبلی به اثبات رسیده است که pH از اثر قابل توجهی بر کارایی فرایند الکتروکواگولاسیون

1 -Koby  
2 - Pletcher  
3 - Walsh

رابطه مستقیم وجود دارد، به این مفهوم که با افزایش ولتاژ برق، مقدار مصرف الکتروود نیز افزایش یافته به نحویکه بیشترین کاهش وزنی الکتروودها در ولتاژ ۴۰ ولت و کمترین کاهش وزنی در ولتاژ ۱۰ ولت ( برای تمامی غلظت ها ) مشاهده شد. بر این اساس در pH برابر ۱۰ ( غلظت نیترا ت معادل ۵ میلی گرم در لیتر ) مقدار مصرف الکتروود آهنی در اختلاف پتانسیل ( ولتاژ ) ۱۰ ولت برابر ۰/۵۶ گرم در لیتر و در ولتاژ ۴۰ ولت برابر ۱/۰ گرم در لیتر حاصل گردید.

نتایج مطالعه ادهوم<sup>۹</sup> و همکاران در بررسی حذف ترکیبات فنلی از فاضلاب با استفاده از فرایند الکتروکواگولاسیون بیانگر آن است که با افزایش ولتاژ، اگرچه راندمان حذف افزایش می‌یابد، اما در عین حال مصرف الکتروود و انرژی نیز افزایش می‌یابد [۳۵]. در عین حال مطابق نتایج موجود، در محلول‌های غلیظ ( mg/L ۱۰۰ نیترا ت )، نرخ مصرف الکتروود افزایش نمی‌یابد اما فرآیند فوق با همان راندمان قبلی بوقوع می‌پیوندد. علت این امر را شاید بتوان به تشکیل زیاد فلوک ها و کمک آنها به جذب نیترا ت بیشتر نسبت داد که در نهایت نیاز به مصرف بیشتر الکتروود را کاهش می‌دهد. این مهم در مطالعه نوری و همکاران (۲۰۱۰) و نیز مطالعه بذرافشان و همکاران (۲۰۱۱) بررسی شده که با نتایج یافته‌های حاضر مطابقت دارد [۳۳،۳۶]. از طرفی بر اساس آنچه از نمودار ۳ برداشت می‌شود با افزایش ولتاژ برق اعمال شده مصرف انرژی الکتریکی نیز افزایش می‌یابد لکن این امر با افزایش راندمان حذف آنیون نیترا ت همراه است که تا حدودی اعمال ولتاژهای بالاتر را برای حذف آلاینده‌ها توجیه می‌نماید.

### نتیجه گیری

در پایان بر اساس نتایج حاصل از تجربیات ارائه شده در فوق چنین نتیجه گیری می‌شود که راندمان حذف آنیون نیترا ت با افزایش ولتاژ برق اعمال شده افزایش یافته به نحویکه با افزایش ولتاژ از ۱۰ به ۴۰ ولت راندمان حذف در غلظت‌های مختلف نیترا ت افزایش و بالاترین راندمان حذف در ولتاژ ۴۰ ولت حاصل گردید. از طرفی بر اساس نتایج پژوهش حاضر راندمان حذف آنیون نیترا ت با گذشت زمان افزایش می‌یابد، بدین ترتیب که پائین ترین راندمان حذف در زمان واکنش ۱۵ دقیقه و حداکثر

مطابقت دارد [۱۳]. تن<sup>۱</sup> و همکاران در سال ۲۰۰۶ تحقیقی در خصوص سیستم تلفیقی از سیستم الکتروود دارای الکتروود فیبر کربن فعال کاتد و الکتروود گرافیت آند و باکتری‌های دنیتریفایری تثبیت شده توسط آلژینات سدیم بر روی کاتد انجام دادند و نتیجه‌گیری نمودند که هیدروژن تولید شده در اثر الکتروود آب در کاتد توسط باکتری‌های دنیتریفایر جذب می‌شود [۲۹]. همچنین می‌توان نتیجه گرفت که کارایی حذف نیترا ت عمدتاً وابسته به شدت جریان (ولتاژ) الکتریکی مورد استفاده است.

این یافته تحقیق نیز با مطالعه انجام گرفته توسط روکا<sup>۲</sup> و همکاران در سال ۲۰۰۷، مطالعه جارا<sup>۳</sup> و همکاران در سال ۲۰۰۹، مطالعه لکاسا<sup>۴</sup> و همکاران در سال ۲۰۱۱ و مطالعه گوئل<sup>۵</sup>، کومار<sup>۶</sup> در سال ۲۰۱۰ در خصوص حذف نیترا ت با استفاده از فرآیند انعقاد الکتریکی مطابقت دارد [۳،۳۰،۳۱،۳۲]. همچنین بذرافشان و همکاران در مطالعه ای در خصوص حذف مس و روی از محیط‌های آبی نتیجه گیری نمودند که راندمان حذف با افزایش ولتاژ برق اعمال شده افزایش می‌یابد به نحویکه حداکثر راندمان در بالاترین ولتاژ حاصل شد [۳۳]. مطالعه کوپارال<sup>۷</sup> و اگوت ورن<sup>۸</sup> در خصوص حذف آنیون نیترا ت از آب نیز بیانگر آن است که راندمان حذف با افزایش ولتاژ برق مصرفی افزایش می‌یابد بنحویکه حداکثر راندمان حذف در ولتاژ ۸۰ ولت حاصل گردید [۲۸]. در تایید نتایج این پژوهش، مطالعه لکاسا و همکاران نیز بیانگر افزایش راندمان حذف آنیون نیترا ت یا افزایش دانسیته جریان ( ولتاژ برق مصرفی ) است [۳۴].

با توجه به اینکه یکی از مهمترین معیارها در انتخاب یک فرآیند مناسب جهت حذف آلاینده‌ها جنبه اقتصادی بودن فرآیند می‌باشد پس از هر سری آزمایش الکتروودهای آهنی مورد استفاده توزین و بدین ترتیب کمیت الکتروود مصرفی تحت شرایط مختلف تعیین مقدار می‌شد (جدول ۱). از داده‌های موجود در جدول ۱ چنین استنباط می‌شود که بین ولتاژ برق اعمال شده و مقدار الکتروود مصرفی

- 1 -Tan
- 2 - Rocca
- 3 - Jara
- 4 - Lacasa
- 5 -Goel
- 6- Kumar
- 7-Koparal
- 8-Ogutveren

9-Adhoum

راندمان حذف در زمان واکنش ۶۰ دقیقه حاصل شد. در عین حال با افزایش ولتاژ و زمان واکنش میزان الکتروود مصرفی افزایش می‌یابد. همچنین نتایج مطالعه حاضر ارتباط مستقیم راندمان حذف با مشخصه pH را نشان داد که با افزایش pH راندمان حذف افزایش می‌یابد. در مجموع یافته‌های مطالعه حاضر بیانگر کارایی مطلوب این روش در کاهش غلظت آنیون نیترات به مقادیر پائین تر از حد استاندارد توصیه شده ( برای آب شرب معادل ۵۰ میلی گرم در لیتر ) می‌باشد.

### تشکر و قدردانی

نویسندگان این مقاله مراتب سپاسگزاری خود را از معاونت محترم تحقیقات و فن‌آوری دانشگاه علوم پزشکی زاهدان جهت حمایت مالی ( شماره طرح ۲۰۳۶-۸۸ ) و کارشناسان آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی زاهدان به خاطر کمک‌های بی دریغشان اعلام می‌دارند.

### References

- 1- Sumino T, Isaka K, Ikuta H, Saiki Y, Yokot T, Nitrogen removal from wastewater using simultaneous nitrate reduction and anaerobic ammonium oxidation in single reactor, *Journal of Bioscience and Bioengineering* 2006; 102(4):346-351.
- 2- Zaied KA, Abd E-Mageed HN, Fayzalla EA, Sharief AE, Zehry AA, Enhancement assimilation of nitrite and nitrate containing factory effluents via recombinants induced in Yeast and Bacteria, *Australian Journal of Basic and Applied Sciences* 2009;3(1):17-27.
- 3- Jara CC, Martínez-Huitle CA, Torres-Palma RA, Distribution of Nitrogen Ions Generated in the Electrochemical Oxidation of Nitrogen Containing Organic Compounds, *Portugaliae Electrochimica Acta* 2009; 27(3):203-213.
- 4- Mahvi AH, Health Aspects and Aesthetical Quality of Water, Tehran: Bal Gostar Publication 1994.
- 5- USEPA, Health effects of nitrates in water, US Environmental Protection Agency (USEPA), 600/1-77-030; 1997.p. 23-30.
- 6- Terblanche APS, Health hazards of nitrate in drinking water and possible means of denitrification, *Water SA* 1991; 17:77-83.
- 7- WHO, Nitrate and nitrite in drinking-water, Background document for development of WHO Guidelines for drinking-water quality, Geneva, World Health Organization (WHO/SDE/WSH/07.01/16) 2007 . p . 417- 420.
- 8- Drinking water-physical and chemical specifications, Institute of Standards and Industrial Research of Iran, 5<sup>th</sup> Edition 2010.
- 9- Ghafari S, Hasan M, Aroua MK, Bio-electrochemical removal of nitrate from water and wastewater- a review, *Bioresource Technology* 2008; 99:3965-3974.
- 10- Nair RR, Dhamole PB, Lele SS, D'Souza SF, Biological denitrification of high strength nitrate waste using preadapted denitrifying sludge, *Chemosphere* 2007; 67:1612.
- 11- Jia YH, Tran HT, Kim DH, Oh SJ, Park DH, Zhang RH " et al", Simultaneous organics removal and bio-electrochemical denitrification in microbial fuel cells, *Bioprocess Biosyst Eng* 2008; 31:315-321.
- 12- Sumaya C, Gideon T, Saayman I, In situ denitrification potential for South African groundwater, *Water Programme, Environmentek, CSIR* 2004.
- 13- Walsh FC, Electrochemical technology for environmental treatment and clean energy conversion, *Pure and Applied Chemistry* 2001; 73(12):1819-1837.
- 14- Pletcher D, Guide to electrochemical technology for synthesis, separation and pollution control, *Electrosynthesis Company Inc* 1999.
- 15- Feng C, Sugiura N, Shimada S, Maekawa T, Development of a high performance electrochemical wastewater treatment system, *Journal of Hazardous Materials* 2003; B103:65-78.
- 16- Eaton AD, Clesceri LS, Rice EW, Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater. 21<sup>st</sup> ed, Washington DC: American Water Works Association (AWWA) 2005.
- 17- Letterman, R., Amirtharajah, A , and O'Melia, C, "A Handbook of Community Water Supplies", Fifth ed , AWWA, Mc Graw-Hill, New York 1999.
- 18- Holt P , Barton G , Wark M., and Mitchell A , A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation, *Colloids Surf. A: Physicochem. Eng. Aspects* 2002; 211: 233-248.
- 19- Aleboye A, Daneshvar N, Kasiri MB, Optimization of C.I. Acid Red 14 azo dye removal by electrocoagulation batch process with response surface methodology, *Chemical Engineering and Processing* 2008; 47:827-832.

- 20- Mollah M, Pathak S, Patil P, Vayuvegula M, Treatment of orange II azo-dye by electrocoagulation (EC) technique in a continuous flow cell using sacrificial iron electrodes, *Journal of Hazardous Materials* 2004; B109:165-171.
- 21- Duca G, Gonta M, The mechanism of nitrate transformation on the processes of electrochemical treatment of natural waters, *Environmental Eng. And management* 2002;1(12):341-346.
- 22- Zaroual Z, Azzi M, Saib N, Chainet E, Contribution to the study of electrocoagulation mechanism in basic textile effluent, *Journal of Hazardous Materials* 2006; B131:73-78.
- 23- Vik E, Carlson D, Eikum A, Gjessing ET, Electrocoagulation of potable water, *Water Research* 1984; 18:1355-1360.
- 24- Chen X, Chen G, Po L, Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation, *Sep, Purif, Technol* 2000; 19:65-76.
- 25- Kobya M, Taner Can O, Bayramoglu M, Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation using iron and aluminum electrodes, *Journal of Hazardous Materials* 2003; B100:163-178.
- 26- Liou YH, Lo SL, Lin CJ, Hui Kuan WH, Weng SC, Chemical reduction of an unbuffered nitrate solution using catalyzed and uncatalyzed nanoscale iron particles, *Journal of Hazardous Materials* 2005; B127:102-110.
- 27- Martínez SS, Bahenab CL, Chlorbromuron urea herbicide removal by electro-Fenton reaction in aqueous effluents, *Water Research* 2009; 43:33-40.
- 28- Koparal AS, Ogutveren UB, Removal of nitrate from water by electroreduction and electrocoagulation, *Journal of Hazardous Materials* 2002; B89:83-94.
- 29- Tan YM, Liu YQ, Su F, Wang L, Luo QF, Experimental study on denitrification using coated electrode of immobilized denitrifying bacteria, *Biomedical and Environmental Sciences* 2006; 19:47-52.
- 30- Della Rocca C, Belgiorio V, Meric S, Overview of in-stiu applicable nitrate removal processes, *Desalination* 2007; 204:46-62.
- 31- Lacasa E, Canizares P, Sáez C, Fernández F.J., Rodrigo M A, Removal of nitrates from groundwater by Electrocoagulation, *Chemical Engineering Journal* 2011; 171, 1012- 1017.
- 32- Kumar N.S. and Goel S, Factors influencing arsenic and nitrate removal from drinking water in a continuous flow electrocoagulation (EC) process, *Journal of Hazardous Materials* 2010; 173, 528-533.
- 33- Bazrafshan E, Mahvi AH, Zazouli MA, Removal of zinc and copper from aqueous Solutions by electrocoagulation technology using iron electrodes, *Asian Journal of Chemistry* 2011; 23(12): 5506-5510.
- 34- Lacasa E, Canizares P, Sáez C, Fernández J.F, Rodrigo M.A, Removal of nitrates from groundwater by Electrocoagulation, *Chemical Engineering Journal* 2011; 171: 1012- 1017.
- 35- Adhoum N, Monser L, Decolourization and removal of phenolic compounds from olive mill wastewater by electrocoagulation, *Chemical Engineering and Processing* 2004; 43:1281-1287.
- 36- Nouri J, Mahvi AH, Bazrafshan E, Application of electrocoagulation process in removal of zinc and copper from aqueous solutions by aluminum electrodes. *Int. J. Environ. Res* 2010; 4(2): 201-208[Persian].

