

بررسی فرایند سونو شیمیایی در حذف رنگ آزو اسید بلک ۱ در حضور Na_2SO_4 و CuSO_4 ، SiO_2 از محیط‌های آبی

علیرضا رحمانی^۱، زینب معصومی^۲، امیر شعبانلو^۲، سمیه اکبری^۲، حسن ذوالقدر نسب^۲، حلیمه الماسی^۳

دریافت مقاله: ۹۳/۸/۱۴ ارسال مقاله به نویسنده جهت اصلاح: ۹۳/۱۰/۲۴ دریافت اصلاحیه از نویسنده: ۹۳/۱۱/۱۵ پذیرش مقاله: ۹۳/۱۱/۲۹

چکیده

زمینه و هدف: رنگ اسید بلک ۱، به دلیل داشتن حلقه‌های بنزنی، سمیت، جهش‌زایی، سرطان‌زایی و دیر تجزیه‌پذیری، یکی از خطرات عمده برای سلامت انسان و محیط زیست به خصوص زندگی آبی به شمار می‌رود. در این پژوهش حذف رنگ آزو اسید بلک ۱ در حضور افزودنی‌های سیلیکا، سولفات مس و سولفات سدیم مورد مطالعه قرار گرفت.

مواد و روش‌ها: در این مطالعه تجربی تصفیه‌پذیری پساب‌های آلوده به رنگ اسید بلک ۱ به روش اکسیداسیون سونو شیمیایی صورت گرفت. نمونه حاوی غلظت‌های مورد نظر از رنگ (۲۰۰-۴۰۰ mg/L) در pH برابر ۱۱-۳ تهیه شد. همچنین، غلظت‌های مورد نیاز سیلیکا، سولفات مس و سولفات سدیم (۲۵-۱۰۰ mg/L) و $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ (۱-۱۰ mM/L) وارد راکتور شد. سولفات فرو با غلظت (۱-۰/۱ mM/L) استفاده شد.

یافته‌ها: نتایج نشان داد در pH=۳، غلظت پرسولفات ۷/۵ mM/L و غلظت ۳ ماده افزودنی ۱۰۰ mg/L بعد از ۴۵ دقیقه رنگ به طور کامل حذف شد و در شرایط بهینه فوق بدون حضور ذرات افزودنی ۸۹/۸۹٪ حذف رنگ مشاهده شد. همچنین، نتایج نشان داد افزایش غلظت پرسولفات بیش از ۱۰ mM/L باعث کاهش میزان حذف رنگ به میزان ۶۴/۵۶٪ شد.

نتیجه‌گیری: نتایج حاصل از مطالعه بیانگر آن بود که فرایند توام امواج اولتراسونیک و پرسولفات به همراه ذرات افزودنی در شرایط بهینه بهره‌برداری می‌تواند به عنوان یک گزینه قابل قبول در حذف رنگ در فاضلاب صنایع مختلف مورد استفاده قرار گیرد.

واژه‌های کلیدی: حذف رنگ آزو اسید بلک ۱، فرایند سونوشیمیایی، افزودنی‌ها، محلول‌های آبی

۱- استاد بهداشت محیط، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، مرکز تحقیقات علوم بهداشتی، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران

۲- کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران

۳- (نویسنده مسئول) دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران

تلفن: ۳۸۳۸۱۶۴۱ (۰۸۱)، فاکس: ۳۸۳۸۱۶۴۱ (۰۸۱)، پست الکترونیکی: h.almasi14@yahoo.com

مقدمه

توسعه سریع صنایع نساجی در چند دهه اخیر، رنگ‌های سنتتیک را به یکی از آلاینده‌های اصلی منابع آبی تبدیل کرده است [۱]. علاوه بر آن رنگ‌های سنتتیک به طور گسترده‌ای در محصولات صنایع چرم‌سازی، آرایشی-بهداشتی، چاپ و پرینت، تهیه مواد غذایی، ساخت کاغذ و پلاستیک و ساخت رنگدانه استفاده می‌شود [۲]. برآوردها حاکی از آن است که سالانه در حدود 7×10^5 تن رنگ در سرتاسر جهان تولید می‌گردد، که از این مقدار حدود ۱۰ الی ۱۵٪ بدون هیچ فرآیند تصفیه‌ای وارد محیط زیست می‌شود [۳]. علاوه بر آن، ۷۰٪ از کل رنگ‌های تولیدی در جهان، رنگ‌های گروه آزو هستند که به دلیل وجود باند آزو ($-N=N-$) و حلقه‌های آروماتیک، در محیط طبیعی به سختی تجزیه شده و دارای اثر سمیت، جهش‌زایی، سرطان‌زایی و ایجاد مشکلات زیبا شناختی در منابع آبی هستند [۴-۶]. از این رو حذف این ترکیبات مخاطره‌آمیز همواره مورد توجه مسئولین زیست محیطی بوده است. جذب روی کربن فعال، ته‌نشینی، تجزیه نوری و زیستی، انعقاد متداول و انعقاد الکتریکی از فرآیندهایی هستند که علی‌رغم جوانب مثبت و منفی به منظور تصفیه فاضلاب‌های رنگی به کار برده می‌شوند. جذب روی کربن فعال روشی گران قیمت و زمان بر است که در نهایت، بازدهی متناسب با هزینه‌های صورت گرفته نخواهد داشت. روش‌های اکسیداسیون با کلر تولید محصولات جانبی خطرناک را سبب می‌شوند. روش‌هایی مانند شناورسازی و انعقاد تنها آلاینده را از فاز مایع به فاز جامد انتقال می‌دهند و بر رنگ‌های محلول تأثیرگذار نیستند [۷-۸، ۲].

در دهه اخیر کاربرد فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته به عنوان فناوری قابل قبول با کارایی مناسب همواره مورد توجه محققان و بهره‌برداران تصفیه خانه‌های آب و فاضلاب قرار گرفته است. اساس این فرآیندها تولید گونه‌های بسیار واکنش‌پذیر مانند رادیکال هیدروکسیل بوده که طیف گسترده‌ای از آلاینده‌های آلی را به سرعت و به شکل غیر انتخابی تجزیه می‌کنند [۸-۹]. در میان روش‌های تولید رادیکال هیدروکسیل استفاده از امواج اولتراسونیک (Ultrasound) در روش‌های اکسیداسیون پیشرفته یکی از روش‌های نوین محسوب می‌شود [۱۰]. مولکول‌های آب در این روش شکسته شده و رادیکال هیدروکسیل و هیدروژن آزاد می‌شود. این پدیده شامل تشکیل و تخریب حباب‌های گازی است که در نتیجه باعث تولید فشار و دمای بسیار بالا شده که شامل تجزیه حرارتی ترکیبات آلی محلول و تولید رادیکال‌های آزاد مانند ($H^{\bullet}, OH^{\bullet}, O^{\bullet}$) یا برخی از اکسید کننده‌ها مانند پراکسید هیدروژن است که می‌تواند با ترکیبات آلی واکنش دهد [۱۱].

اگرچه فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته به تنهایی اثر بخش نیستند، ولی می‌توان فرایند اکسیداسیون سونوشیمیایی را با اضافه کردن مواد شیمیایی مانند پرسولفات (Persulfate) و ذرات نانو مقیاس و ذرات کاتالیستی انجام داد و کارایی فرایند را افزایش داد. به عنوان مثال حضور ذرات سیلیکا، کربن فعال، آلومینای فعال، اکسید مس و روی باعث افزایش اثر کاتالیستی می‌شود [۱۲]. حضور ذرات جامد در طول فرایند کاتالیستی سرعت تجزیه مولکول‌های آلی را بهبود می‌بخشد. این ذرات، هسته‌های اضافی را برای کاتالیستی فراهم می‌کند که دلیل افزایش تعداد برخوردها در

جمله این مواد می‌توان به SiO_2 , CuSO_4 , Na_2SO_4 اشاره کرد. حضور این مواد باعث تسهیل نفوذ آلاینده به داخل حباب‌های گازی و تجزیه آلاینده می‌شود [۱۶، ۱۳].

با توجه به مزایا و ویژگی‌های خاص فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته سونوشیمیایی در حذف ترکیبات آلی به خصوص ترکیبات رنگی و با توجه به نبود اطلاعات کافی در زمینه اکسیدان‌های مختلف نظیر پرسولفات فعال شده با آهن دو ظرفیتی و همچنین، تعیین اثر هم افزایی هر یک از اجزاء دخیل در فرایندهای اکسیداسیون، هدف از این مطالعه بررسی کارایی فرایند $\text{US}/\text{S}_2\text{O}_8^{2-}/\text{Fe}^{2+}$ در حضور سیلیکا، سولفات مس و سولفات سدیم در تخریب رنگ اسید بلک ۱ و تعیین میزان پارامترهای تأثیرگذار در بهره‌برداری فرایند بود.

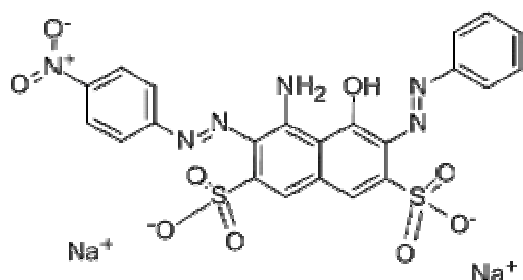
مواد و روش‌ها

در این مطالعه تجربی از مواد شیمیایی سدیم هیدروکسید، اسید سولفوریک و پتاسیم پرسولفات و سولفات فرو (ساخت شرکت مرک آلمان) استفاده شد. رنگ اسید بلک ۱ با فرمول مولکولی $\text{C}_{22}\text{H}_{14}\text{N}_6\text{Na}_2\text{O}_9\text{S}_2$ از شرکت الوان رنگ ثابت تهیه شد (شکل ۱). از دستگاه دیجیتالی تولید امواج US مدل LUC-405 (شکل ۲) و اسپکتروفوتومتر DR5000 (ساخت شرکت HACH آلمان) در این پژوهش استفاده شد.

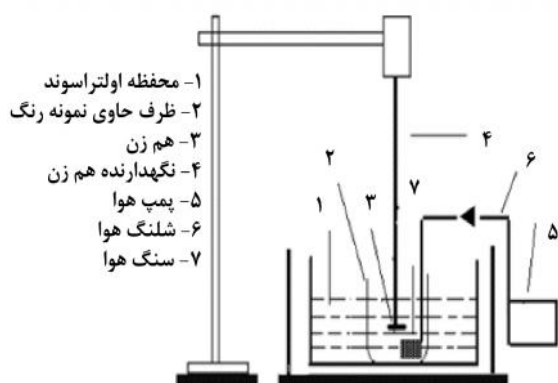
این مطالعه تجربی در یک راکتور با جریان ناپیوسته در آزمایشگاه آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی همدان به انجام رسید. راکتور مورد نظر شامل یک دستگاه اولتراسونیک دیجیتالی از جنس پلکسی گلاس به حجم ۱۲۵۰ mL حاوی ۱۰۰۰ mL نمونه در داخل حمام امواج US با توانایی ایجاد فرکانس و قدرت به ترتیب KHz

کاویتاسیون به شمار می‌رود [۱۲]. نانو ذرات با اندازه کوچکتر از حباب‌های کاویتاسیون می‌توانند به راحتی وارد منطقه بین حباب‌ها و آب شوند و به عنوان یک حامل و انتقال دهنده، آلاینده را با حباب‌ها تماس دهند، به خصوص برای آلاینده‌های آبدوست و غیر فرار این کار لازم‌تر است [۱۳].

در سال‌های اخیر رادیکال سولفات روش مؤثری برای حذف آلاینده‌های آلی به شمار می‌رود. مشابه رادیکال هیدروکسیل، رادیکال سولفات ($\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$, $E=2.01\text{v}$) پتانسیل اکسیداسیون-احیاء بالایی دارد. به علاوه رادیکال سولفات شانس بیشتری از رادیکال هیدروکسیل در اکسیداسیون ترکیبات در pH اسیدی دارد، اما در مقایسه با رادیکال هیدروکسیل، رادیکال سولفات نیمه عمر بالاتری دارد. پرسولفات می‌تواند بوسیله گرما، UV یا عناصر فلزات واسطه فعال شود [۱۴]. امواج US در فرایند $\text{US}/\text{S}_2\text{O}_8^{2-}/\text{Fe}^{2+}$ می‌تواند تولید رادیکال‌های SO_4^- را تسریع کند. Wang و همکاران از فرایند $\text{US}/\text{S}_2\text{O}_8^{2-}/\text{Fe}^0$ برای تجزیه رنگ Acid Orange 7 استفاده کرده‌اند، که pH بهینه این مطالعه در حدود ۵/۸ بدست آمده است [۱۵]. Cai و همکاران در مطالعه‌ای به بررسی تجزیه رنگ نارنجی (II) با پراکسی مونیو سولفات (HSO_5^-) فعال شده با سیلیکای SBA-15 اصلاح شده با آهن و کبالت (Fe-Co/SBA-15) در حضور امواج US پرداخت. نتایج حاکی از عدم تأثیر ویژه pH در فرآیند بود، در شرایط بهینه میزان کاهش COD و TOC بعد از ۲ ساعت از فرآیند به ترتیب برابر ۵۶ و ۳۳/۸٪ بود [۸]. علاوه بر اضافه کردن مواد شیمیایی که برای افزایش میزان تجزیه سونو شیمیایی ترکیبات غیر فرار استفاده شده است برای افزایش اثر بخشی هزینه فرایندها از نمک‌های مختلف نیز استفاده شده است که از



شکل ۱- فرمول شیمیایی رنگ اسید بلک ۱



شکل ۲- راکتور مورد استفاده در پژوهش

نتایج

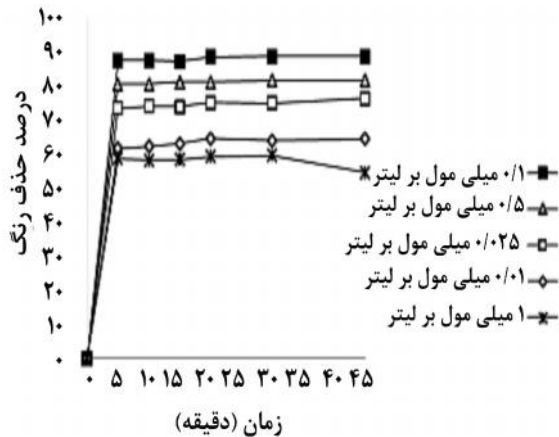
به منظور بررسی زمان تماس و pH نمونه‌های رنگ اسید بلک ۱ با غلظت ثابت ۲۰۰ میلی‌گرم برلیتر تهیه شد. در این مطالعه تأثیر تغییرات pH در دامنه ۱۱-۳ در فرایند امواج اولتراسونیک/ پرسولفات با شدت ۴۰ کیلو هرتز و دمای ۳۰ درجه سانتی‌گراد مورد مطالعه قرار گرفت که نتایج آن در نمودار ۱ نشان داده شده است. نتایج این مرحله از انجام آزمایش‌ها حاکی از آن است که بیشترین میزان حذف رنگ در فرایند مذکور در pH برابر ۳ و زمان ۴۵ دقیقه مشاهده شده است و در مقادیر کمتر و بیشتر از آن میزان حذف ماده رنگ‌زای اسید بلک ۱ کاهش یافته است. بیشترین مقدار حذف رنگ در pH برابر ۳ به میزان ۸۹/۸۹٪ در زمان ۴۵ دقیقه از انجام فرایند مشاهده شده

۴۰ و ۳۵۰ W مورد تابش قرار گرفت. در تمام آزمایشات محتویات داخل راکتور در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد و در نور محیط توسط همزن قائم با سرعت ۱۰۰ rpm هم زده شد. شماتیک راکتور مورد استفاده در این پژوهش در شکل ۲ نشان داده شده است.

برای تنظیم pH نمونه‌ها از سود و اسید سولفوریک ۱ N استفاده شد. نمونه حاوی غلظت‌های مورد نظر از با استفاده از محلول استوک (۱ گرم در ۱۰۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر) تهیه و استفاده شد. همچنین، غلظت‌های مورد نیاز از Na_2SO_4 ، CuSO_4 ، SiO_2 (۱۰۰-۲۵ میلی‌گرم برلیتر) و $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ (۱ تا ۱۰ میلی‌مول برلیتر) به صورت جریان منقطع وارد راکتور شد. سولفات فرو به عنوان منبع یون‌های Fe^{2+} با غلظت (۰/۱ تا ۱ میلی‌مول بر لیتر) استفاده شد.

مدت زمان انجام هر فرایند صفر تا ۴۵ دقیقه در نظر گرفته شد و در پایان این زمان ۵۰ میلی‌لیتر نمونه جهت آنالیز از راکتور برداشته و بعد از تنظیم pH روی مقدار ۳، قرائت صورت گرفت. در هر نمونه غلظت‌های متفاوتی از رنگ با مقادیر ۴۰۰-۲۰۰ میلی‌گرم برلیتر آماده خواهد شد و در نهایت پس از مشخص شدن مقدار غلظت بهینه رنگ، pH و غلظت‌های پرسولفات بهینه، غلظت‌های متفاوت سیلیکا، سولفات مس و سولفات سدیم در محدوده ۱۰۰-۲۵ میلی‌گرم بر لیتر به رنگ اضافه شد و در زمان‌های مختلف نمونه‌برداری انجام گرفت. بعد از نمونه‌برداری نمونه‌ها سانتریفیوژ شده (۶۰۰۰ دور، به مدت ۱۰ دقیقه) و مقادیر جذب رنگ باقی مانده در نمونه‌ها با روش نور سنجی مستقیم توسط دستگاه اسپکتروفتومتر UV-Vis در طول موج ۶۱۸ نانومتر مورد اندازه‌گیری قرار گرفت [۱۷].

کارایی حذف رنگ بعد از ۴۵ دقیقه به ۵۴/۷۸٪ رسیده است.

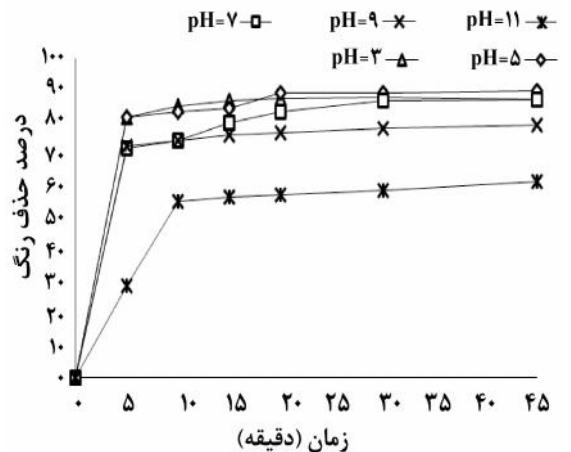


نمودار ۲- تأثیر سولفات آهن (II) بر کارایی فرایند (غلظت رنگ ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر، زمان ۴۵ دقیقه، فرکانس ۴۰ کیلو هرتز و پرسولفات ۰/۰۰۲۵ مول بر لیتر و pH بهینه ۳)

در این مرحله تأثیر غلظت‌های مختلف پرسولفات ۱۰-۱ میلی مول بر لیتر در pH بهینه ۳ و غلظت سولفات آهن حاصل از مرحله قبل و غلظت ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر رنگ اسید بلک ۱ مورد بررسی قرار گرفت. با توجه به نمودار ۳ ملاحظه می‌شود که با افزایش مقدار پرسولفات میزان حذف رنگ افزایش می‌یابد، به طوری که در عرض ۴۵ دقیقه با افزایش غلظت پرسولفات از ۱ به ۷/۵ میلی مول بر لیتر، بازده حذف از ۸۱/۸۳ به ۹۰٪ افزایش پیدا کرده است ولی افزایش غلظت پرسولفات بیش از ۱۰ میلی مول تأثیر چندانی در حذف رنگ ندارد و میزان حذف رنگ به ۶۴/۵۶٪ کاهش پیدا می‌کند.

به منظور تعیین تأثیر غلظت اولیه ماده رنگزا بر بازدهی حذف آن در فرایند اولتراسونیک/پرسولفات در شرایط بهینه بهره‌برداری از نظر pH و سولفات آهن و پرسولفات، مقادیر متفاوت رنگ در دامنه ۲۰۰-۴۰۰ میلی گرم بر لیتر مورد بررسی قرار گرفت. در این حالت همانند مراحل قبل دیگر پارامترهای بهینه شده ثابت و پارامتر مورد نظر

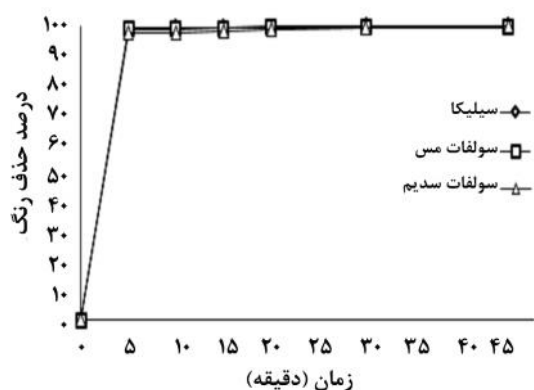
است، در حالیکه در pH برابر ۷ و pH برابر ۱۱، میزان حذف به ترتیب ۸۷/۲۵٪ و ۶۱/۳۹٪ بوده است. به عبارت دیگر با افزایش pH نمونه‌های مورد مطالعه، کارایی حذف به طور چشمگیری کاهش پیدا کرده است.



نمودار ۱- تأثیر pH محیط در حذف رنگ از اسید بلک ۱ در سیستم US/S₂O₈ (غلظت رنگ ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر، فرکانس ۴۰ کیلو هرتز و پرسولفات ۰/۰۰۲۵ مول بر لیتر)

در این مرحله تأثیر غلظت‌های مختلف سولفات آهن (II) در حذف رنگ اسید بلک ۱ از آب، در حضور مقادیر مشخص از آهن (II) در محدوده ۰/۱ تا ۱ میلی مول بر لیتر که به محلول حاوی رنگ افزوده گردید، بررسی شد. نتایج تحقیق حاضر نشان می‌دهد بازده حذف رنگ با افزایش غلظت سولفات آهن به صورت خطی افزایش می‌یابد. با توجه به نمودار ۲ بازده حذف رنگ با افزایش غلظت سولفات آهن از ۰/۱ به ۰/۱ میلی مول در مدت زمان ۴۵ دقیقه از ۶۴/۶۱٪ به ۸۸/۹۹٪ افزایش پیدا کرده است. در این شرایط افزایش غلظت عامل اکسید کننده تا حد معینی سرعت واکنش را افزایش داده و با افزایش غلظت پرسولفات به ۰/۵ میلی مول بر لیتر روند معکوسی در حذف رنگ‌زا مشاهده شد. به گونه‌ای که با افزایش غلظت ماده اکسید کننده به بیش از ۱ میلی مول بر لیتر

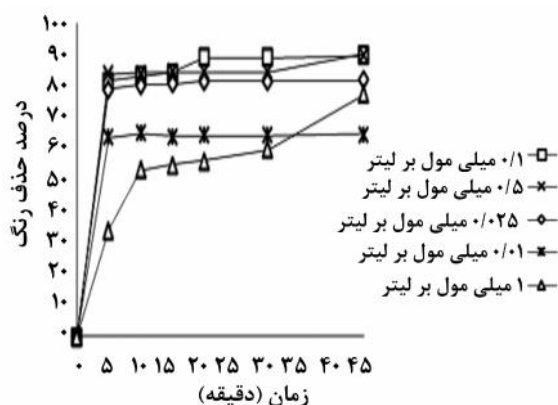
میلی مول در تماس با غلظت های ۱۰۰-۲۵ میلی گرم برلیتر سه ماده فوق الذکر قرار داده شد. نتایج حاصل از تأثیر میزان ذرات در حذف رنگ در شرایط بهینه بهره برداری در نمودار ۵ نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می شود حضور این مواد باعث افزایش بازده حذف گردیده است. به گونه ای که حداکثر راندمان حذف رنگ در این مطالعه برای ذره سیلیکا، سولفات مس و سولفات سدیم با غلظت های ۱۰۰ میلی گرم برلیتر به ترتیب ۱۰۰، ۹۹/۵۶ و ۹۹/۴۳٪ بوده است.



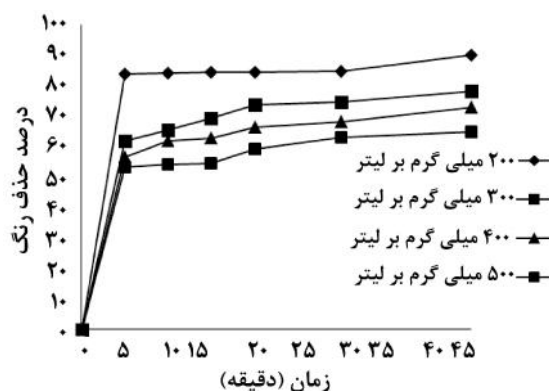
نمودار ۵- تأثیر ذرات سیلیکا، سولفات مس و سولفات سدیم در کارایی فرایند در شرایط بهینه (غلظت رنگ ۳۰۰ میلی گرم برلیتر، فرکانس ۴۰ کیلو هرتز، زمان ۴۵ دقیقه و پرسولفات ۷/۵ میلی مول برلیتر و pH بهینه ۳)

به منظور تعیین نقش هر یک از پارامترهای بهره برداری در میزان حذف رنگ در زمان ۴۵ دقیقه از انجام آزمایشات نمونه برداری انجام و میزان حذف رنگ مورد بررسی قرار گرفت که نتایج در نمودار ۶ نشان داده شده است. سولفات آهن (II)، امواج US و $S_2O_8^{2-}$ در کاربرد مجزا به ترتیب دارای ۳/۳۴، ۱۶، ۲۲/۳۷٪ کارایی در حذف رنگ بوده اند. در حالی که کاربرد توأم زمانی که آهن (II) و پرسولفات راندمان حذف را تا حدود ۷۵/۳۶ افزایش می دهد. همراه کردن امواج US در فرایندهای (US/PS/Fe²⁺) کارایی را افزایش و به حدود ۸۹/۸۹٪ می رساند. این در حالی است

متغییر انتخاب شد که نتایج آن در نمودار ۴ نشان داده شده است. نتایج این مرحله از انجام آزمایشات حاکی از آن است که در سیستم مذکور با افزایش میزان رنگ کارایی فرایند حذف کاهش یافته است. در غلظت های اولیه ۲۰۰، ۳۰۰، ۴۰۰ و ۵۰۰ میلی گرم برلیتر در مدت زمان ۴۵ دقیقه بازده حذف به ترتیب ۹۰، ۷۸/۳، ۷۳ و ۶۵٪ بدست آمده است.



نمودار ۳- تأثیر پرسولفات بر کارایی فرایند (غلظت رنگ ۲۰۰ میلی گرم برلیتر، فرکانس ۴۰ کیلو هرتز، زمان ۴۵ دقیقه و پرسولفات ۱۰ میلی مول برلیتر و pH بهینه ۳)

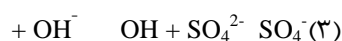
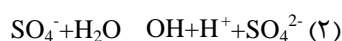


نمودار ۴- اثر غلظت های متفاوت رنگ در کارایی در شرایط بهینه (زمان ۴۵ دقیقه، غلظت پرسولفات ۷/۵ میلی مول برلیتر، فرکانس ۴۰ کیلو هرتز و pH برابر ۳)

جهت بررسی تأثیر میزان ترکیبات سیلیکا، سولفات مس و سولفات سدیم بر کارایی حذف، محلول رنگ با غلظت ۳۰۰ میلی گرم برلیتر، pH برابر ۳ و غلظت پرسولفات ۷/۵

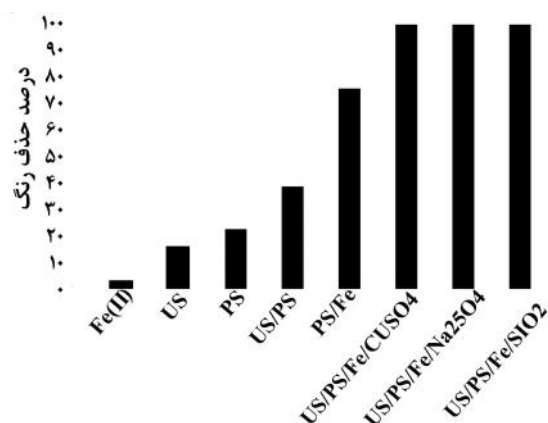
قلیایی عملکرد بهتری دارند که نتایج بدست آمده در این مطالعه با پژوهش انجام شده توسط zarrabi و همکاران همخوانی دارد [۴].

در فرایند $S_2O_8^{2-}/Fe^{2+}$ (معادله ۲) واکنش‌های مربوط به تغییر گونه و حالت آهن صادق است [۱۸]، در این شرایط نیز با افزایش بیشتر pH به بالای ۹، گونه‌های اوکسی هیدروکسیدهای فریک ($Fe(OH)^+$ ، $Fe(OH)_2$ ، $Fe(OH)_3$ و $Fe_2(OH)_3^{4+}$) تولید می‌گردد که این گونه از آهن توانایی بسیار ناچیزی در فعال‌سازی $S_2O_8^{2-}$ دارند [۱۹]. محصول فعال‌سازی $S_2O_8^{2-}$ با Fe^{2+} که به تولید رادیکال $SO_4^{\cdot -}$ منجر می‌شود می‌تواند با تغییر pH تا حدودی تغییر کرده و واکنش را به سمت تولید OH سوق دهد که این واکنش‌ها در شرایط قلیایی بیشتر اتفاق می‌افتد (معادله ۲ و ۳). لذا عامل اصلی تعیین رادیکال غالب در فرایند $S_2O_8^{2-}/Fe^{2+}$ ، کاملاً به pH مرتبط بوده و در pH های زیر ۷ به خصوص ۲ تا ۴ برتری با رادیکال $SO_4^{\cdot -}$ است (معادله ۱). در pH بین ۷ تا ۹ حضور هر دو رادیکال را می‌توان مشاهده کرد (معادله ۲) و در شرایط بسیار قلیایی به خصوص pH های بالای ۱۲ رادیکال OH برتری دارد (معادله ۳) و از آنجایی که در شرایط قلیایی پتانسیل اکسیداسیون OH به شدت کاهش پیدا می‌کند کارایی فرایند حتی در حضور غالب این رادیکال کاهش یافته و از جنبه میزان پایداری رادیکال در محیط آبی، پایداری رادیکال‌های $SO_4^{\cdot -}$ از OH بسیار بیشتر است [۲۰].



نتایج Rao و همکاران نشان داد pH برابر ۳ به عنوان شرایط بهینه به منظور تجزیه کاربامازپین در فرایند

که اضافه نمودن هر یک از ترکیبات در شرایط بهینه و با فرایند ذکر شده و کارایی حذف در فرایند $US/PS/Fe^{2+}/SiO_2$ ، $US/PS/Fe^{2+}/CUSO_4$ و $US/PS/Fe^{2+}/Na_2SO_4$ ۹۹/۵۶٪ و ۹۹/۴۳٪ افزایش یافته است.



نمودار ۶- مقایسه کارایی فرایندهای مورد مطالعه و اثر هم افزایی ترکیبات مورد استفاده در حذف رنگ اسید بلک ۱

بحث

pH اولیه محلول یکی از پارامترهای مهم در فرایندهای شیمیایی است. نتایج مشابه نشان می‌دهد که میزان حذف رنگ به طور چشمگیری با افزایش pH کاهش می‌یابد [۳]. این روند را می‌توان با این واقعیت توضیح داد که در محدوده pH اسیدی کم، رنگ با حداکثر یونیزاسیون مولکولی مواجه است که ناشی از افزایش جاذبه الکترواستاتیکی بین گونه‌های آنیونی و کاتیونی است. علاوه بر این در محدوده pH های بالا یون‌های هیدروکسیل باعث شکل‌گیری ترکیبات محلول به شکل آب شده و در نتیجه باعث تأخیر در میزان جذب رنگ می‌شود [۳]. به علاوه به دلیل این که تولید رادیکال هیدروکسیل در محیط اسیدی کمی بیشتر از محیط قلیایی است و همچنین، پایداری آنها نیز بیشتر است، بنابراین فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته در محیط اسیدی نسبت به محیط

یون‌های Fe^{2+} بیش از حد بهینه درصد حذف کاهش یافته است، به این دلیل که این ماده در غلظت‌های بالاتر به عنوان رایبند رادیکال سولفات عمل کرده و باعث کاهش حذف رنگ شده است [۲۴].

در مطالعه‌ای که xu و همکاران در حذف دی-n-بوتیل فتالات با استفاده از فرایند sono-photo-Fenton انجام دادند در فرایند US/Fe^{2+} غلظت بهینه Fe^{2+} برابر ۱ mM به دست آمد و مشخص شد افزایش غلظت Fe^{2+} از این مقدار نه تنها کارایی را افزایش نمی دهد، بلکه سبب کاهش کارایی می‌گردد [۲۵]. در مطالعه‌ای که Ghauch و همکاران در حذف سولفامتازول با استفاده از فرایند $PS/micrometric Fe^0$ انجام دادند در این مطالعه از ذرات مقیاس میکرو Fe^0 برای تولید Fe^{2+} استفاده شد، غلظت بهینه Fe^0 برابر ۲/۲۳ mM بدست آمد، افزایش غلظت Fe^0 به ۴/۴۶، ۸/۹۲ و ۱۸/۸۵ mM سبب کاهش کارایی فرآیند گردید [۲۶].

پرسولفات یکی از عامل‌های اکسیدکننده دو الکترونی است که دارای پتانسیل اکسیداسیون-احیاء ۲/۰۱ ولت است که برای افزایش بازدهی حذف رنگ در صنایع نساجی استفاده می‌شود. هنگامی که پرسولفات با تولید رادیکال SO_4^- فعال می‌شود پتانسیل اکسیداسیون-احیاء آن به ۲/۶ ولت می‌رسد، که می‌تواند بیشتر ترکیبات آلی درون آب را اکسید کند [۱۸]. همچنین، پرسولفات در اکسیداسیون مواد شیمیایی به دلیل حلالیت بالا و هزینه نسبتاً کم به وفور مورد استفاده قرار می‌گیرد.

پرسولفات می‌تواند به وسیله گرما یا به صورت شیمیایی فعال شود. طبق معادله ۵ فعال‌سازی معمولاً بوسیله فلزات دو ظرفیتی از جمله آهن صورت می‌گیرد. در این فرایندها اگر آهن به عنوان فعال‌کننده استفاده شود، ذرات آهن

$S_2O_8^{2-}/Fe^{2+}$ می‌باشد [۲۱]. جدول ۱ نتایج مطالعات مشابه در زمینه تأثیر pH در فرآیندهای سونو شیمیایی را نشان می‌دهد. در واقع افزایش pH به دلیل تشکیل رسوب هیدروکسید آهن افزایش می‌یابد که روی سطح فلزات باعث تشکیل لایه‌ای شده که از فعالیت آن جلوگیری می‌کند، بنابراین باعث کاهش بازدهی حذف رنگ می‌شود [۱۸].

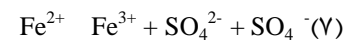
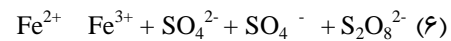
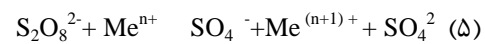
نتایج khan و همکاران در حذف اترازین با استفاده از فرایندهای $UV/H_2O_2/Fe^{2+}$ $UV/S_2O_8^{2-}/Fe^{2+}$ $UV/HSO_5^-/Fe^{2+}$ انجام دادند. در این مطالعه مقایسه‌ای pH بهینه برای اکسیداسیون اترازین ۳ بدست آمد. و بهترین شرایط برای تولید رادیکال شرایط اسیدی مشاهده شد [۲۲]. در مطالعه‌ای که weng و همکاران در حذف رنگ راکتیو بلک ۵ با استفاده از فرایند $US/H_2O_2/Fe^0$ انجام دادند در این مطالعه از آهن صفر ظرفیتی برای فعال‌سازی H_2O_2 استفاده شد، pH بهینه برای فرآیند ۳ بدست آمد [۲۳].

Fe^{2+} یکی از پارامترهای مهم در فرایند است که می‌تواند به عنوان کاتالیزور برای تولید رادیکال سولفات عمل کند که حضور آن نرخ تجزیه رنگ را تحت تأثیر قرار می‌دهد. همانطور که در نمودار ۲ مشاهده می‌شود با افزایش مقدار Fe^{2+} ، میزان حذف رنگ افزایش می‌یابد، به دلیل اینکه در غلظت‌های بالاتر Fe^{2+} به عنوان فعال‌کننده پرسولفات عمل کرده و باعث تولید رادیکال هیدروکسیل بیشتری شده که نرخ تجزیه رنگ را تحت تأثیر قرار داده و باعث افزایش راندمان حذف می‌شود ولی افزایش یون‌های بیش از حد بهینه میزان حذف رنگ کاهش یافته است. این موضوع بدین شکل قابل توجیه است که با افزایش مقدار Fe^{2+} مقدار رادیکال‌های هیدروکسیل افزایش می‌یابد، در نتیجه میزان حذف رنگ نیز افزایش می‌یابد ولی با افزایش

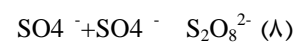
سولفادپازین با استفاده از فرایند US/Fe⁰/PS انجام دادند نتایج نشان داد با افزایش نیت PS به Fe⁰ از نسبت ۱ به ۰/۱ تا ۱ به ۱ کارایی حذف آنتی‌بیوتیک افزایش داشت، همچنین حداکثر کارایی در pH برابر ۳ بدست آمد [۲۸]. از تأثیر غلظت اولیه رنگ بر روی کارایی حذف مشاهده شده است که غلظت آلاینده یکی از پارامترهای مهم در حذف رنگ‌زا است [۹]. در غالب مطالعات مربوط به اکسیداسیون ترکیبات آلی افزایش غلظت آلاینده مورد مطالعه با کاهش کارایی فرایند همراه بوده است [۸]. چون در تمامی محلول‌ها مقدار پرسولفات، آهن و pH مقدار ثابتی است، در نتیجه تعداد رادیکال‌های هیدروکسیل تولید شده در تمامی نمونه‌ها یکسان است در نتیجه سرعت تجزیه در نمونه ای با غلظت کم آلاینده بیشتر خواهد بود [۲۹]. در مطالعه‌ای که Zarrabi و همکاران در حذف رنگ اسید نارنجی ۷ انجام دادند. نتایج نشان داد با افزایش غلظت رنگ میزان کارایی حذف کاهش یافته است [۴].

مطالعات نشان داده‌اند تجزیه سونو شیمیایی در حضور ذرات کاتالیستی باعث تجزیه ترکیبات آلی به صورت مستقیم یا غیر مستقیم شده که منجر به تولید رادیکال هیدروکسیل می‌شود. همچنین، گزارش شده است که در ترکیب فرایند سونولیز و مواد افزودنی، تخریب ذرات افزودنی باعث کاهش اندازه ذرات و افزایش مساحت سطح شده، در نتیجه بازدهی تجزیه به طور مستقیم در حضور ذرات افزودنی افزایش پیدا می‌کند. یکی دیگر از ذرات افزودنی اکسید مس می‌باشد. اکسید مس به عنوان یک کاتالیزور اکسید کننده موثر شناخته شده است که می‌تواند تشکیل رادیکال‌های فعال برای تجزیه ترکیبات آلی و تبدیل شدن این مواد به CO₂ و H₂O را بهبود ببخشد [۳۰].

می‌تواند به عنوان منبع یون‌های فرو عمل کند. به طور کلی واکنش‌های بین آهن و پرسولفات طبق معادله ۶ و ۷ صورت می‌گیرد:



بنابراین فعال‌سازی پرسولفات با Fe²⁺ باعث می‌شود عملکرد SO₄⁻ به عنوان رایبند رادیکال به دلیل وجود مقدار آهن اضافی در واکنش محدود شود [۱۸]. زمانی که غلظت یون پرسولفات افزایش پیدا می‌کند، رادیکال‌های سولفات و هیدروکسیل بیشتری قادر به حمله به ترکیب آلی هستند، بنابراین بازده حذف افزایش می‌یابد. افزایش غلظت ماده اکسید کننده به بیش از حد بهینه، منجر به تولید آنیون‌های پرسولفاتی می‌شود که بدون رادیکال SO₄⁻ فعال هستند. همچنین، طبق معادله ۸ و ۹ واکنش‌های رادیکال-رادیکال، قبل از واکنش‌های رادیکال-ترکیبات آلی رخ می‌دهد و SO₄²⁻ بوسیله یون پرسولفات نقش رایبند رادیکال را دارد که مانع تولید OH⁻ شده بنابراین باعث کاهش بازدهی فرایند می‌شود [۱۸]. جدول ۱ مقایسه نتایج مرتبط با تأثیر تغییر غلظت S₂O₈²⁻ سایر مطالعات همسو با مطالعه حاضر را نشان می‌دهد



در مطالعه‌ای که wang و همکاران در حذف اسید هیومیک با استفاده از فرایند US/PS انجام دادند. در این مطالعه pH بهینه ۳ بدست آمد و با افزایش غلظت PS از ۱۰ تا ۱۰۰ mM کارایی حذف اسید هیومیک را افزایش داد. برای حذف ۹۹٪ اسید هیومیک به ۲ ساعت زمان نیاز بود [۲۷]. در مطالعه‌ای که zou در حذف آنتی‌بیوتیک

حذف رنگ شده است [۳۰]. معمولاً به منظور شرکت رادیکال‌های هیدروکسیل در مکانیسم واکنش‌های سونولیز، افزایش مواد شیمیایی به بیش از حد بهینه، باعث عملکرد این مواد به عنوان رباینده رادیکال‌ها شده که میزان تجزیه سونولیز آلاینده‌های آلی را کاهش داده و باعث کاهش کارایی فرایند حذف می‌گردد [۳۰].

نتیجه‌گیری

نتایج حاصل از این مطالعه نشان داد فعال نمودن پرسولفات با امواج التراسونیک با در نظر گرفتن عوامل محیطی از جمله pH محیط، غلظت ماده اکسیدان و غلظت اولیه رنگ می‌تواند باعث افزایش کارایی حذف رنگ اسید بلک ۱ شود. در میان پارامترهای مورد بررسی توجه به غلظت پرسولفات و سولفات آهن از اهمیت بیشتری برخوردار می‌باشد به این دلیل که افزایش غلظت این ترکیبات تا حد بهینه، کارایی را افزایش داده اما در غلظت‌های بالاتر باعث کاهش راندمان حذف خواهد شد. همچنین، همراه نمودن سه ترکیب مورد استفاده در تحقیق با اکسیداسیون شیمیایی باعث حذف کامل رنگ شده است. بنابراین با توجه به نتایج بدست آمده از این پژوهش استفاده از این فرایند در مطالعات حذف رنگ پیشنهاد می‌گردد.

تشکر و قدردانی

این مقاله حاصل بخشی از طرح تحقیقاتی با عنوان بررسی کارایی فرایند اکسیداسیون سونو شیمیایی در حذف رنگ آزو اسید بلک ۱ در حضور افزودنی‌های Na_2SO_4 , CuSO_4 , SiO_2 از محیط‌های آبی مصوب معاونت تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی، درمانی همدان در سال ۹۳ با کد ۹۳۰۴۰۳۱۵۶۵ است، که با حمایت معاونت تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی، درمانی همدان اجرا شده است.

در فرایند اولتراسونیک به دلیل فروپاشی حفره‌ها، ذره سیلیکا شکسته شده که منجر به افزایش مساحت سطح شده و باعث تشکیل مناطق واکنش‌پذیری شده که اختلاط مناسب را فراهم می‌کند که به نوبه خود باعث افزایش میزان تجزیه رنگ شده است. در این مطالعه دیده شده است که با افزایش مقدار سولفات مس و سیلیکا به بازدهی حذف افزوده می‌شود اما بعد از رسیدن به یک مقدار بیشینه با افزایش بیشتر سولفات مس و سیلیکا بازده بدون تغییر چشمگیری ثابت می‌ماند. دلیل این امر آن است که با افزایش میزان این ذرات، میزان تولید عوامل اکساینده هیدروکسیل و در نتیجه بازدهی حذف رنگ افزایش می‌یابد. در ادامه با افزایش بیشتر این ذرات بازدهی حذف رنگ افزایش چندانی نداشت که دلیل این مسأله قرارگیری ذرات سولفات مس و سیلیکا بر روی یکدیگر می‌باشد که در عمل کارایی در حذف رنگ ندارد. به طور کلی حضور نمک‌هایی مانند سدیم کلرید، کلسیم کلرید و سولفات سدیم می‌تواند توزیع فاز آلاینده‌های آلی و آبی را با تغییر در ضریب توزیع شان تغییر دهد [۳۰].

زمانی که غلظت نمک سولفات سدیم افزایش پیدا می‌کند باعث تغییر در توزیع (محل قرارگیری آلاینده‌های آلی در فصل مشترک گاز-مایع) و غلظت آلاینده‌های آلی در فصل مشترک گاز-مایع شده که منجر به افزایش میزان تجزیه می‌شود [۳۰]. همچنین، اضافه کردن نمک باعث کاهش فشار بخار آب شده، اما کشش سطحی آلاینده‌های آلی آبدوست و قدرت یونی فاز آبی را افزایش می‌دهد. در نتیجه نمک می‌تواند ترکیبات آلی را از فاز مایع به سمت منطقه فصل مشترک گاز-مایع بکشاند، که باعث افزایش احتمال حمله رادیکال‌های هیدروکسیل و فروپاشی حباب‌های گازی شده و این سری واکنش‌ها به نوبه خود باعث افزایش انتشار متعدد حباب‌ها و افزایش کارایی

References

- [1] Asgari G, Rahmani AR, Barjasteh Askari F, Godini K. Catalytic ozonation of phenol using copper coated pumice and zeolite as catalysts *J Res Health Sci* 2012; 12(2): 93-7. [Farsi]
- [2] Ghodsian M, Ayati B, Ganjidoust H. Determination of Optimum Amounts of Effective Parameters in Reactive Dyes Removal Using Photocatalytic Reactions by Immobilized TiO₂ Nano Particles on Concrete Surface." *J Water Waste* 2011; 3(1): 45-53. [Farsi]
- [3] McKay G, Hadi M, Samadi MT, Rahmani AR, Aminabad MS, Nazemi F. Adsorption of reactive dye from aqueous solutions by compost. *Desalin water treat* 2011; 28(3): 164-73.
- [4] Zarrabi M, Rahmani AR, Samarghandi MR, Barjasteh Askary F. Investigation the Zero-Valent Iron (ZVI) Performance in the Presence of UV light and Hydrogen Peroxide on Removal of Azo Dyes Acid Orange 7 and Reactive Black 5 from Aquatic Solutions. *Iranian J Health Environ* 2013; 5(4): 469-78. [Farsi]
- [5] Ghoneim MM, El-Desoky HS, Zidan NM. Electro-Fenton oxidation of Sunset Yellow FCF azo-dye in aqueous solutions. *Desalination* 2011; 274(1): 22-30.
- [6] Krishnakumar B, Swaminathan M. Solar photocatalytic degradation of Acid Black 1 with ZnO. *Indian J Chem* 2010; 49(1): 1035-40.
- [7] Balla W, Essadki A, Gourich B, Dassaa A, Chenik H, Azzi M. Electrocoagulation/electroflotation of reactive, disperse and mixture dyes in an external-loop airlift reactor. *J Hazard Mater* 2010; 184(1): 710-6.
- [8] Cai C, Zhang H, Zhong X, Hou L. Ultrasound enhanced heterogeneous activation of peroxymonosulfate by a bimetallic Fe-Co/SBA-15 catalyst for the degradation of Orange II in water." *J Hazard Mater* 2015; 283(1): 70-9.
- [9] Rahmani A, Zarrabi M, Samarghandi M, Afkhami A, Ghaffari H. Degradation of Azo Dye Reactive Black 5 and acid orange 7 by Fenton-like mechanism. *Iranian J Chem Eng* 2010; 7(1): 87-94.
- [10] Shokohi R, Mahvi AH, Bonyadi Z. Comparison efficiency of both sonochemical and sonochemical/hydrogen peroxide processes for cyanide removal from aqueous solutions. *J Mazandaran Univ Med Sci* 2009; 19(73): 59-67. [Farsi]
- [11] Ghodbane H, Hamdaoui O. Degradation of Acid Blue 25 in aqueous media using 1700kHz ultrasonic irradiation: ultrasound/Fe (II) and ultrasound/H₂O₂ combinations. *Ultrason sonochem* 2009; 16(5): 593-8.
- [12] Ghodke S, Sonawane S, Gaikawad R, Mohite K. TiO₂/Nanoclay nanocomposite for phenol degradation in sonophotocatalytic reactor. *Can J Chem Eng* 2012; 90(5): 1153-9.

- [13] Pang YL, Abdullah AZ, Bhatia S. Review on sonochemical methods in the presence of catalysts and chemical additives for treatment of organic pollutants in wastewater. *Desalination* 2011; 277(1): 1-14.
- [14] Chowdhury P, Viraraghavan T. Sonochemical degradation of chlorinated organic compounds, phenolic compounds and organic dyes—a review. *Sci total environ* 2009; 407(8): 2474-92.
- [15] Wang X, Wang L, Li J, Qiu J, Cai C, Zhang H. Degradation of Acid Orange 7 by persulfate activated with zero valent iron in the presence of ultrasonic irradiation." *Sep Purif Technol* 2014; 122(1): 41-6.
- [16] Zhen G, Lu X, Zhao Y, Chai X, Niu D. Enhanced dewaterability of sewage sludge in the presence of Fe (II)-activated persulfate oxidation. *Bioresource technol* 2012; 116(1): 259-65.
- [17] Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater – APHA. 20th ed, American Public Health Association/American Water Works Association/Water Environment Federation, Washington DC, 1998;
- [18] Xu X-R, Li X-Z. Degradation of azo dye Orange G in aqueous solutions by persulfate with ferrous ion. *Sep Purif Technol* 2010; 72(1): 105-11.
- [19] Zhou L, Zheng W, Ji Y, Zhang J, Zeng C, Zhang Y. Ferrous-activated persulfate oxidation of arsenic (III) and diuron in aquatic system. *J Hazard Mater* 2013; 263(1): 422-30.
- [20] Romero A, Santos A, Vicente F, González C. Diuron abatement using activated persulphate: effect of pH, Fe (II) and oxidant dosage. *Chem Eng* 2010; 162(1): 257-65.
- [21] Rao Y, Qu L, Yang H, Chu W. Degradation of carbamazepine by Fe (II)-activated persulfate process. *J Hazard Mater* 2014;268(1):23-32.
- [22] Khan JA, He X, Khan HM, Shah NS, Dionysiou DD. Oxidative degradation of atrazine in aqueous solution by UV/H₂O₂/Fe²⁺, UV//Fe²⁺ and UV//Fe²⁺ processes: A comparative study." *Chem Eng J* 2013; 218(1): 376-83.
- [23] Weng C-H, Lin Y-T, Yuan H-M. Rapid decoloration of Reactive Black 5 by an advanced Fenton process in conjunction with ultrasound." *Sep Puri Technol* 2013; 117(1): 75-82.
- [24] Anipsitakis G P, Dionysiou D D. Radical generation by the interaction of transition metals with common oxidants. *Environmental science & technology* 2004; 38(13): 3705-12.
- [25] Xu L J, Chu W, Graham N. Degradation of di-n-butyl phthalate by a homogeneous sono-photo-Fenton process with in situ generated hydrogen peroxide. *Chem Engin J* 2014; 240(1): 541-7.
- [26] Ghauch A, Ayoub G, Naim S. Degradation of sulfamethoxazole by persulfate assisted micrometric Fe⁰ in aqueous solution." *Chem Eng J* 2013; 228(1): 1168-81.
- [27] Wang S, Zhou N, Wu S, Zhang Q, Yang Z. Modeling the oxidation kinetics of sono-activated persulfate's process on the degradation of humic acid." *Ultra Sonochem* 2014.

- [28] Zou X, Zhou T, Mao J, Wu X. Synergistic degradation of antibiotic sulfadiazine in a heterogeneous ultrasound-enhanced Fe^0 /persulfate Fenton-like system." *Chemical Engineering J* 2014; 257(1): 36-44.
- [29] Hou L, Zhang H, Xue X. Ultrasound enhanced heterogeneous activation of peroxydisulfate by magnetite catalyst for the degradation of tetracycline in water. *Sep Purif Technol* 2012; 84(1): 147-52.
- [30] Pang Y L, Abdullah A Z, Bhatia S. Review on sonochemical methods in the presence of catalysts and chemical additives for treatment of organic pollutants in wastewater. *Desalination* 2011; 277(1): 1-14.

Investigation of Sonochemical Oxidation Process in the Presence of SiO₂, CuSO₄ and Na₂SO₄ in Removal of Acid Black1 Azo Dye from Aqueous Solution

A.R. Rahmani¹, Z. Masoumi², A. Shabanlo², S. Akbari², H. Zolghadr nasab², H. Almasi³

Received: 05/11/2014 Sent for Revision: 04/01/2015 Received Revised Manuscript: 04/02/2015 Accepted: 18/02/2015

Background and Objective: Acid Black 1 dye due to the presence of benzene ring, toxicity, mutagenicity, carcinogenicity and non-degradability is one of the major dangers for human health and environment especially aquatic life. Hence, the removal of these compounds from polluted water and wastewater has been considered. This study has been investigated the removal of acid black1 azo dye from aqueous solution in the presence of SiO₂, CuSO₄ and Na₂SO₄.

Materials and Methods: In this experimental study the treatability of effluent polluted with reactive acid black 1 dye was investigated by using sonochemical oxidation in a reactor. The sample with the desired concentrations of dye (200-400 mg/L) in pH= 3-11 was prepared, also the required concentrations of silica, copper sulfate and sodium sulfate (25 to 100 mg/L) and S₂O₈²⁻ (1 to 10 mM/L) were flowed into the reactor intermittently. Ferrous sulfate as a source of ion (1 to 10 mM/L) was used.

Results: The results have showed that 100% of the dye after 45 min at pH 3, 7.5 mM/L persulfate and concentration of 100 mg/ L in presence of 3 additives was removed. The dye removal in above condition decreased to 89.89% without the presence of additives. Also, the results showed that increasing the concentration of persulfate more than 10 mM/L no effect of removal of efficiency and the removal of the 64.56 percent decline.

Conclusion: The findings showed the combined process of ultrasonic and persulfate with the presence of 3 additives in optimal conditions of operation can be used as an acceptable option in the removal of dye in various industrial wastewater.

Key words: Removal of acid black 1 dye, Sonochemical process, Additive, Aqueous solution

Funding: This research was funded by Hamadan University of Medical Sciences.

Conflict of Interest: None declared.

Ethical approval: The Ethics Committee of Hamadan University of Medical Sciences approved the study.

How to cite this article: Rahmani AR, Masoumi Z, Shabanlo A, Akbari S, Zolghadr nasab H, Almasi H. Investigation of Sonochemical Oxidation Process in the Presence of SiO₂, CuSO₄ and Na₂SO₄ in Removal of Acid Black1 Azo Dye from Aqueous Solution. *J Rafsanjan Univ Med Sci* 2015; 13(10): 1115-28. [Farsi]

1- Prof., Dept. of Environmental Health Engineering, Faculty of Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

2- MSc in Environmental Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. Research Committee (SRC)

3- MSc Student of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

(Corresponding Author), Tel: (081) 38381641, Fax: (081) 38381641, E-mail: h.almasi14@yahoo.com