

ارزیابی کارایی فرآیند سونوالکتروشیمی به منظور حذف آلاینده های زیست محیطی در بوم سازگان آبی (مطالعه موردی: حذف فرمالدئید)

امیرمحمد فرهودی^۱، امیرحسام حسنی^۲، گیتی کاشی^{۳*}، امیرحسین جاوید^۲ و نبی اله منصوری^۲

۱) دانشجوی دکتری رشته مهندسی محیط زیست گرایش آب و فاضلاب، گروه مهندسی محیط زیست، دانشکده کشاورزی، آب، غذا و فراسودمندها، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران.

۲) استاد گروه مهندسی محیط زیست، دانشکده کشاورزی، آب، غذا و فراسودمندها، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران.

۳) دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، واحد علوم پزشکی، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران. *رایانامه نویسنده مسئول مکاتبات: g.kashi@yahoo.com

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۳/۱۱/۱۲

تاریخ دریافت: ۱۴۰۳/۰۸/۰۸

چکیده

طبق تحقیقات آژانس حفاظت محیط زیست آمریکا، فرمالدئید به عنوان عامل سرطان زای گروه یک طبقه بندی گردیده است. غلظت آستانه ۱/۶۱ میلی گرم بر لیتر فرمالدئید برای حفاظت از بوم سازگان آبی پیشنهاد شده است. در نتیجه پساب های حاوی فرمالدئید باید قبل از تخلیه به محیط زیست تصفیه شوند تا از بوم سازگان آبی و سلامت انسان محافظت شود. هدف این پژوهش کاربردی، بررسی کارایی حذف فرمالدئید، از آب آشامیدنی شهری توسط فرآیند اکسیداسیون پیشرفته سونوالکتروشیمی می باشد. این تحقیق در مقیاس آزمایشگاهی و راکتور ناپیوسته تک قطبی سونوالکتروشیمی انجام گردید. مقادیر معین فرمالدئید به نمونه آب آشامیدنی شهری تهران افزوده شد. کارایی حذف با استفاده از الکترودهای روی-مس (به علت برقراری بهترین پتانسیل) در حالات مختلف متغیرهای pH (۱۱-۳)، زمان (۰-۳۲ دقیقه)، غلظت فرمالدئید (۱۱۰-۳۳۰ میلی گرم در لیتر)، چگالی جریان (۴-۸ میلی وات بر سانتی مترمربع) و توان الکتریکی (۵۰-۱۰۰ وات) مورد بررسی قرار گرفت. اندازه گیری غلظت فرمالدئید باقی مانده به وسیله دستگاه اسپکتروفتومتری در طول موج ۴۰۰ نانومتر با روش رنگ سنجی با اسید کروموتروپیک ۶۲۵۲ انجام گرفت. نتایج با مدل های سنتیک جذب و آنالیز واریانس یک طرفه مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت. تمام مراحل پژوهش طبق موازین اخلاقی اجرا گردید. بهترین شرایط حذف ۱۱۰ میلی گرم در لیتر فرمالدئید (کارایی ۱۰۰ درصد) در زمان تماس ۳۲ دقیقه، pH بهینه معادل ۳، چگالی جریان ۱۲ میلی آمپر بر سانتی مترمربع و توان الکتریکی ۱۵۰ وات به دست آمد. فرآیند از مدل سنتیکی درجه اول ($R^2=0/9994$) و آنالیز واریانس یک طرفه پیروی کرد. غلظت به عنوان مهم ترین متغیر بر اساس کارایی حذف فرمالدئید به دست آمده توسط مدل تاگوچی بود. این مطالعه بینش های جدیدی را برای مطالعه تصفیه سونوالکتروشیمی برای حذف فرمالدئید از طریق اکسیداسیون مستقیم (الکترولیز و سونولیز) و اکسیداسیون غیرمستقیم ارائه می دهد.

واژه های کلیدی: فرمالدئید، مدل سنتیکی، سونوالکتروشیمی تاگوچی، فراصوت.

کاهش منابع آب سالم در دسترس و چالش های زیست محیطی دو موضوع چالش برانگیز در جهان امروز می باشند که به توجه بیشتری برای مقابله با آنها نیاز است. فرمالدئید^۱ از سمی ترین ترکیبات آلی درجه اول می باشد که به طور گسترده در صنایع شیمیایی و آزمایشگاه آناتومی استفاده می شود. بنابراین تخلیه آن در محیط آبی اثرات زیست محیطی و بهداشتی جدی را دربردارد (Soltani et al., 2016). بر اساس پژوهش های انسانی صورت گرفته توسط آژانس فراملی تحقیقات سرطان^۲، فرمالدئید عامل سرطان زای گروه یک (احتمالی انسانی) و سمی محسوب می شود. غلظت آستانه ۱/۶۱ میلی گرم در لیتر فرمالدئید برای حفاظت از بوم سازگان آبی پیشنهاد شده است. صنایع شیمیایی، پتروشیمی، تولید نگهدارنده ها، استریل کردن، تولید رزین های مصنوعی و تولید چسب های تخته فیبر از جمله صنایع آلوده کننده محیط آبی به فرمالدئید می باشند (Zhang et al., 2024). فرآیندهای گوناگون برای حذف فرمالدئید از پساب از قبیل فرآیندهای بیولوژیکی، جذب، تبادل یونی و فناوری غشایی استفاده می شوند. هر کدام از این فرآیندها دارای اشکال های خاصی هستند. بی اثر بودن و کارایی ناکافی تجزیه بیولوژیکی فرمالدئید با استفاده از فناوری های متداول تصفیه بیولوژیکی فاضلاب برای دستیابی به پساب مطلوب، موجب نیازمندی به استفاده از تکنیک های فیزیکوشیمیایی مختلفی برای تجزیه فرمالدئید در محلول های آبی گردیده است (Soltani et al., 2015; Hosseinzadeh et al., 2021). ورود فرمالدئید به محیط زیست به آلودگی برخی منابع آب و از دسترس خارج شدن آنها منجر شده است. کمبود منابع آب تمیز و در دسترس (بدون آلودگی فرمالدئید)، موجب افزایش تقاضا جهت توسعه فناوری های سبز جدید برای بازیابی آب شده است. یکی از جایگزین های امیدوارکننده جهت تخریب ترکیبات آلی مقاوم با ویژگی تصفیه پذیری پائین از جمله فرمالدئید، استفاده از فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته^۳ است. انتقال کم جرم از جمله معایب فوتوکاتالیست با ذرات معلق محسوب می شود (Iervolino et al., 2020). وابستگی شدید به pH از جمله معایب فتنون و هزینه زیاد از جمله معایب پراکسید

هیدروژن محسوب می شود (Bello et al., 2019). در میان فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته، استفاده از فراصوت در گستره امواج با فرکانس بیش از حد شنیداری در تلفیق با روش های دیگر از جمله الکتروشیمی به عنوان روش نوین تصفیه آب و فاضلاب به دلیل ویژگی هایی مانند ایمنی زیاد، پاک بودن، عدم آلودگی ثانویه و راندمان نسبتا مطلوب در واپاشی ترکیبات آلی مورد توجه می باشد (Majd et al., 2014). عدم تولید هیچ نوع فرآورده جانبی سرطان زا، نیاز به فضای اندک جهت استقرار واحد فراصوت و انتقال جرم عالی از جمله مزایای فرآیند سونوشیمیایی به عنوان فرآیند تکمیلی، محسوب می شوند (Hu et al., 2024b). ویژگی قابل توجه فراصوت توانایی آن در ایجاد حباب های کاویتاسیون در آب است که منجر به دمای بالای موضعی و فشار ناشی از انفجار آنها همراه با افزایش کارایی می شود (Hu et al., 2024a). کاربرد همزمان تابش فرابنفش/ امواج فراصوت روی سطح کاتالیست در فرآیند سونوفوتوکاتالیز موجب افزایش سرعت واپاشی آلاینده ها می شود (Li et al., 2015).

Panahi و همکاران (۲۰۱۷) کارایی حذف پنی سیلین G توسط فرآیند اولتراسونیک/ فتنون در شرایط بهینه (pH معادل ۳، زمان تماس ۶۰ دقیقه، غلظت پراکسید هیدروژن ۴۳ میلی گرم در لیتر، غلظت کاتیون فریک ۰/۰۰۷ میلی گرم در لیتر، فرکانس ۳۵ کیلوهرتز) ۹۴/۷۴ درصد اعلام نمودند. Sheydaei و همکاران (۲۰۱۹) کارایی حذف رنگ نارنجی راکتیو ۲۹ توسط فرآیند سونوفوتوکاتالیتیکی غشایی راکتور پیوسته^۴ در شرایط بهینه (غلظت سزیم-اکسیدروی ۱۵۰۰ میلی گرم در لیتر، pH معادل ۱۰، زمان تماس ۵۰ دقیقه، فرکانس ۳۵ کیلوهرتز) را ۹۷/۸۴ درصد اعلام نمودند. Al-Marri و همکاران (۲۰۲۰) کارایی حذف نیترات توسط فرآیند فراصوت-انعقاد الکتریکی در شرایط بهینه (نیترات ۱۵۰ میلی گرم در لیتر، زمان تماس ۱۰ دقیقه، pH معادل ۶، چگالی جریان ۷/۵ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، فرکانس ۳۷ کیلوهرتز) را ۸۷/۷ درصد اعلام نمودند. بنابراین فرآیند سونوالکتروشیمی به عنوان فرآیند امیدبخش در فناوری های تصفیه آب و فاضلاب معرفی می شود.

با در نظر گرفتن آلودگی منابع آب زیرزمینی و سطحی به آلاینده‌های آلی از جمله فرمالدئید و رعایت کردن استانداردهای مربوط به فناوری‌های جدید در زمینه تصفیه آب نظیر انواع فناوری‌های اکسیداسیون پیشرفته نیاز است. مطالعات کتابخانه ای انجام گرفته بر روی منابع در دسترس نشان دادند تا کنون بررسی تاثیر فراصوت بر کارایی حذف غلظت‌های مختلف فرمالدئید با روش سونوالکتروشیمی در گستره توان‌های الکتریکی مختلف همراه با چگالی جریان‌های مختلف، شناسایی سازوکار واپاشی و سنتیک واکنش انجام نگرفته است. این امر از جمله نوآوری تحقیق حاضر محسوب می‌شود. تعیین و فراهم‌آوری زمینه برای کارایی حذف آلاینده فرمالدئید توسط روش سونوالکتروشیمی به‌عنوان چارچوبی در راستای ارتقای بهداشت عمومی جامعه به واسطه کاربست نتیجه تحقیق در بخش تصفیه آلاینده فرمالدئید از محیط‌های آبی از جمله اهداف آرمانی تحقیق محسوب می‌شود. خطرات سلامتی (سرطان‌زایی احتمالی انسانی)، اثرات زیست‌محیطی (آسیب به لایه اوزون و آلودگی آب‌های زیرزمینی) و استانداردهای فراملی غلظت از جمله ایده تحقیق هستند. بنابراین با توجه به نقش فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته در واپاشی آلاینده‌های مختلف از جمله سونوالکتروشیمی از این رو هدف این پژوهش، بررسی تاثیر سونوالکتروشیمی بر کارایی حذف فرمالدئید از محیط‌های آبی می‌باشد.

مواد و روش‌ها

مواد شیمیایی: مواد مورد استفاده در تحقیق نظیر فرمالدئید، اسید سولفوریک و سود از شرکت مرک^۱ آلمان با درجه خلوص بالا تهیه شد. محلول‌های اسید سولفوریک و سود ۱ نرمال برای تنظیم pH استفاده شدند.

آماده‌سازی الکترودها: ابتدا الکترودهای روی-مس (به‌علت برقراری بهترین پتانسیل) با کاغذ سنباده صیقل، با آب شیر و مواد شوینده شسته، با آب دیونیزه شده برای زدودن هر گونه ناخالصی آب‌کشی، خشک و توزین شدند (Farhoodi et al., 2024).

مشخصات راکتور سونوالکتروشیمی ناپیوسته یک‌قطبی: ظرف ۳۶۰ میلی‌لیتر (۶۰×۶۰×۱۰۰) از جنس پیرکس می‌باشد (شکل ۱). کلیه آزمایش‌ها در دمای آزمایشگاه (۲۰ درجه سلسیوس) انجام شد. الکتروود روی-مس (امین صنعت پویا، ایران) دارای مساحت سطحی فعال ۳۶۰۰ میلی‌مترمربع (۹۰×۶۰×۱ میلی‌متر) در فاصله ۱۰ میلی‌متری از کف راکتور قرار گرفتند. منبع برق جریان مستقیم (ایران‌جهش، ساخت ایران) دارای توان الکتریکی بیشینه ۶۰ وات و انرژی الکتریکی ۱۰۰۰-۵۰۰۰ میلی‌آمپر بود. دستگاه مولد امواج فراصوت مدل SONOREX SUPER/Bandelin (ایران) دارای فرکانس ۲۰ کیلوهرتز، توان الکتریکی ۵۰-۱۵۰ وات و حداکثر ولتاژ ۲۳۰ ولت بود. حمام آب سرد مدل GBTC158550 (شرکت طراحی مهندسی گروک، ایران) برای کنترل دما در ۲۰ درجه سلسیوس بود. بر اساس مدل تاگوچی ۳ سطح کارایی حذف به‌علت فیزیکی، کاهش خطا، افزایش دقت، افزایش کارایی، برای ۵ متغیر عملیاتی براساس تحقیق‌های انجام‌شده قبلی انتخاب گردید. نمونه‌ها با فراصوت توان‌های الکتریکی (۵۰، ۱۰۰ و ۱۵۰ وات) با استفاده از الکترودهای روی-مس با چگالی جریان‌های ۴، ۸ و ۱۲ میلی‌وات بر سانتی‌مترمربع، زمان‌های ۸، ۱۶ و ۳۲ دقیقه، pHهای ۳، ۷ و ۱۱ تصفیه شدند. هدف ارزیابی تاثیر امواج فراصوت و چگالی جریان بر واپاشی غلظت‌های فرمالدئید (۱۱۰، ۲۲۰ و ۳۳۰ میلی‌گرم در لیتر)، به‌عنوان آلاینده مدل بود. همزن مغناطیسی Aika (آلمان) برای یکنواخت‌نمودن نمونه‌های آب استفاده شد.

روش‌های آزمایشگاهی: هر آزمون سه بار برای تعیین مقادیر متوسط داده‌ها اجرا شد. اندازه‌گیری غلظت فرمالدئید باقی‌مانده پس از صاف‌کردن توسط صافی غشایی واتمن (انگلستان) با اندازه ۰/۴۵ میکرون به وسیله دستگاه اسپکتروفتومتر مدل Unico UV-2100 (آلمان) در طول موج ۴۰۰ نانومتر طبق دستورالعمل‌های موجود در کتاب روش‌های استاندارد جهت انجام آزمایش‌های آب و فاضلاب (۶۲۵۲) انجام گرفت (Association, 1926). اندازه‌گیری pH و ORP توسط دستگاه‌های ORP متر مدل CG (مالزی) و pH متر مدل Hack (آمریکا) بعد از فرآیند سونوالکتروشیمی طبق دستورالعمل‌های

موجود در کتاب روش های استاندارد جهت انجام آزمایش های آب و فاضلاب انجام گرفت. برای تنظیم pH از دستگاه pH متر و محلول اسیدسولفوریک و سود ۱ نرمال استفاده شد. کارایی حذف فرمالدئید در این پژوهش تجربی در مقیاس آزمایشگاهی توسط رابطه (۱) محاسبه شد (Kashi & Hydarian, 2015):

$$\text{Removal (\%)} = \left(1 - \frac{C_t}{C_{t0}}\right) \times 100 \quad (1)$$

که: C_t و C_{t0} به ترتیب غلظت فرمالدئید پس از سونوشیمیایی در زمان t و غلظت فرمالدئید اولیه در زمان ۰ است. مدل های سنتیک واکنش با استفاده از روابط (۲) و (۳) محاسبه شدند (Yousefi *et al.*, 2019; Yousefi *et al.*, 2024):

$$\ln C_t = \ln C_0 - K_1 t \quad (2)$$

$$\frac{1}{C_t} = K_2 t + \frac{1}{C_0} \quad (3)$$

رابطه بین سه سطح کارایی حذف به عنوان آرایه و ۵ متغیر عملیاتی توسط مدل تاگوچی نشان داده شد. سطوح انتخاب هر یک از پارامترهای مورد مطالعه به عنوان داده های تاگوچی در جدول (۱) آرایه شده است.

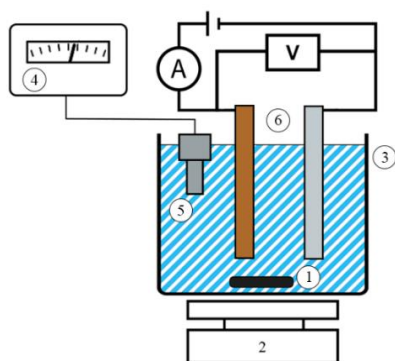
تهیه نمونه آب: نمونه های آب مورد استفاده در آزمایش های سونوالکتروشیمی از شبکه آب تهران واقع در آزمایشگاه دانشگاه آزاد اسلامی علوم پزشکی تهران تهیه شد. صنایع شیمیایی، پتروشیمی، تولید نگهدارنده ها، استریل کردن، تولید رزین های مصنوعی و تولید چسب های تخته فیبر از جمله صنایع آلوده کننده محیط آبی به فرمالدئید می باشند. به علت

حضور عوامل مداخله کننده از جمله مواد معلق و کدورت ساز از پساب حاوی فرمالدئید جهت تهیه نمونه استفاده نشده است. ویژگی های فیزیکوشیمیایی اولیه نمونه ها مورد بررسی قرار گرفتند و متوسط آنها گزارش گردیدند (جدول ۲). محلول سنتتیک فرمالدئید ۱۰۰۰ میلی گرم در لیتر از طریق انحلال ۲/۷ میلی لیتر فرمالدئید در ۱۰۰۰ میلی لیتر آب مقطر دوبار تقطیر تهیه شد. با انجام رقیق سازی (با نسبت ۱ به ۹/۰۹، ۴/۵۴ و ۳/۰۳) غلظت فرمالدئید ۱۱۰، ۲۲۰ و ۳۳۰ میلی گرم بر لیتر آب حاصل شد. فرمالدئید به روش رنگ سنجی با اسید کروموتروپیک اندازه گیری شد (Association, 1926; Nowshad *et al.*, 2018). کارایی حذف با انتخاب و آنالیز آب راکتور در پایان هر دور فرآیند ارزیابی شد. تعداد نمونه ها با توجه به روش فاکتوریل و طراحی آزمایش ها به ترتیب ۷۲۹ و ۱۵ مورد به دست آمد. موازین اخلاقی در تمام مراحل پژوهش، رعایت و هیچگونه دخل و تصرفی از طرف محقق در مراحل انجام پژوهش صورت نگرفته است.

روش تاگوچی: شامل شناسایی عوامل کنترلی مناسب برای به دست آوردن نتایج بهینه فرآیند است (Korake & Jadha, 2021). آرایه های متعامد برای انجام مجموعه ای از آزمایش ها استفاده می شود. ارتباط میان سه سطح کارایی حذف به عنوان آرایه و ۵ متغیر عملیاتی توسط مدل تاگوچی نشان داده شد. سطوح انتخاب هر یک از پارامترهای مورد بررسی به عنوان داده های تاگوچی در جدول (۲) آورده شده است.

جدول ۱. پارامترها و سطوح انتخاب شده در تحقیق

متغیرهای موثر	واحد	سطوح		
		۱	۲	۳
توان الکتریکی	وات	۵۰	۱۰۰	۱۵۰
چگالی جریان	میلی وات بر سانتی متر مربع	۴	۸	۱۲
غلظت فرمالدئید	میلی گرم در لیتر	۱۱۰	۲۲۰	۳۳۰
زمان	دقیقه	۸	۱۶	۳۲
pH	-	۳	۷	۱۱



شکل ۱. رآکتور ناپیوسته سونوالکتروشیمی

(۱- میله مغناطیسی؛ ۲- همزن مغناطیسی؛ ۳- حمام آب سرد؛ ۴- مولد فراصوت؛ ۵- منتقل کننده امواج فراصوت و ۶- الکترودها)

نتایج

ویژگی های آب: جدول (۲) میانگین و انحراف معیار

ویژگی های نمونه های آب شبکه توزیع آب آشامیدنی تهران را قبل از ورود به رآکتور ناپیوسته نشان می دهد.

جدول ۲. مقادیر متوسط غلظت ویژگی های فیزیکوشیمیایی آب شهری

مقدار		واحد ها	متغیر ها
انحراف معیار	میانگین		
۰/۰۷	۲۷۵	mV	پتانسیل اکسایش و کاهش
۰/۲۲	۲۰	°C	دما
۰/۵	۸/۰۸	mg/l	اکسیژن محلول
۰/۵	۹/۲	mg/l	نترات
۰/۳۱	۷/۱۳	-	pH
۰/۶۳	۱۲۰	mg/l as CaCO ₃	قلیائیت
۰/۴۵	۹۴/۳	mg/l	سولفات
۰/۱۶	۱۶۰	mg/l as CaCO ₃	کلسیم
۰	۰	mg/l	فرمالدئید

۱/۵ سانتی متر، چگالی جریان ۱۲ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، زمان ۳۲ دقیقه) در غلظت ۱۱۰ میلی گرم در لیتر (۶۶ درصد) بیش از غلظت های فرمالدئید ۲۲۰ میلی گرم در لیتر (۵۴/۵ درصد) و ۳۳۰ میلی گرم در لیتر (۴۴ درصد) است. کارایی فرآیند حذف در شرایط بهینه الکتروشیمیایی (فاصله ۱/۵ سانتی متر، غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی گرم در لیتر، چگالی جریان ۱۲ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، زمان ۳۲ دقیقه) با افزایش pH از ۳ به ۱۱ افزایش می یابد (از ۵۲/۵ به ۶۶ درصد).

تاثیر الکتروشیمی بر حذف فرمالدئید: جدول (۳) اثر متغیرهای زمان، چگالی جریان و pH بر میزان حذف غلظت های مختلف فرمالدئید به روش الکتروشیمی را نشان می دهد. همانطوری که در جدول مشاهده می شود کارایی فرآیند حذف در شرایط بهینه الکتروشیمیایی (۱۱ pH، فاصله ۱/۵ سانتی متر، غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی گرم در لیتر) با افزایش چگالی جریان از ۴ به ۱۲ میلی آمپر بر سانتی متر مربع و مدت زمان از ۸ به ۳۲ دقیقه افزایش می یابد (از ۴۷ به ۶۶ درصد). کارایی فرآیند حذف فرمالدئید در شرایط بهینه الکتروشیمیایی (۱۱ pH، فاصله

جدول ۳. نتایج اثر الکتروشیمی در حذف فرمالدئید از آب آلوده ۱۱۰، ۲۲۰ و ۳۳۰ میلی گرم در لیتر pH،

زمان الکترولیز و چگالی جریان های مختلف

pH	چگالی جریان (mA/cm ²)	فاصله الکترودها (cm)	درصد حذف ۱۱۰ میلی گرم در لیتر			درصد حذف ۲۲۰ میلی گرم			درصد حذف ۳۳۰ میلی گرم		
			زمان (min)			زمان (min)			زمان (min)		
			۸	۱۶	۳۲	۸	۱۶	۳۲	۸	۱۶	۳۲
	۴	۱/۵	۴۷	۵۲	۵۵	۳۶/۵	۴۱/۵	۴۴/۵	۲۶/۵	۳۱/۵	۳۴
۱۱	۸	۱/۵	۵۳/۵	۵۷	۶۰	۴۲/۵	۴۶/۵	۴۹/۵	۳۲	۳۶/۵	۳۹
	۱۲	۱/۵	۵۸	۶۳	۶۶	۴۷/۵	۵۲/۵	۵۴/۵	۳۷	۴۲	۴۴
	۴	۱/۵	۴۰	۴۵	۴۸	۳۰	۳۵	۳۸/۵	۲۰	۲۵	۲۸
۷	۸	۱/۵	۴۶	۵۰	۵۳	۳۶	۴۱	۴۳	۲۶	۳۰	۳۳
	۱۲	۱/۵	۵۱	۵۶	۵۹	۴۱	۴۶	۴۸	۳۱	۳۶	۳۸
	۴	۱/۵	۳۴/۵	۳۹/۵	۴۲	۲۴/۵	۲۹/۵	۳۲/۵	۱۴/۵	۱۹/۵	۲۲/۵
۳	۸	۱/۵	۴۰/۵	۴۴/۵	۴۷/۷	۳۰/۵	۳۴/۵	۳۷/۵	۲۰/۵	۲۴/۵	۲۷/۵
	۱۲	۱/۵	۴۵/۷	۵۰/۵	۵۲/۵	۳۵/۵	۴۰/۵	۴۲/۵	۲۵/۵	۳۰/۵	۳۲/۵

تاثیر فراصوت بر حذف فرمالدئید: جدول (۴) اثر متغیرهای زمان، توان الکتریکی و pH بر میزان حذف غلظت های مختلف فرمالدئید به روش فراصوت را نشان می دهد. همانطوری که در جدول مشاهده می شود کارایی فرآیند حذف در شرایط بهینه فراصوت (۳ pH، غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی گرم در لیتر) با افزایش توان الکتریکی از ۵۰ به ۱۵۰ وات و مدت زمان از ۸ به ۳۲ دقیقه افزایش می یابد (از ۱۴ به ۲۰ درصد). کارایی فرآیند حذف فرمالدئید در شرایط بهینه فراصوت (۳ pH، فاصله ۱/۵ سانتی متر، توان الکتریکی ۱۵۰ وات، زمان ۳۲ دقیقه) در غلظت ۱۱۰ میلی گرم در لیتر (۲۰ درصد) بیش از غلظت های فرمالدئید ۲۲۰ میلی گرم در لیتر (۱۳/۵ درصد) و ۳۳۰ میلی گرم در لیتر (۸ درصد) است. کارایی فرآیند حذف در شرایط بهینه فراصوت (غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی گرم در لیتر، توان الکتریکی ۱۵۰ وات، زمان ۳۲ دقیقه) با افزایش pH از ۳ به ۱۱ کاهش می یابد (از ۸ به ۲۰ درصد).

تاثیر سونوالکتروشیمی بر حذف فرمالدئید: جدول (۵) اثر متغیرهای چگالی جریان، زمان، توان الکتریکی و pH بر میزان حذف غلظت های مختلف فرمالدئید به روش سونوالکتروشیمی را نشان می دهد. همانطوری که در جدول مشاهده می شود کارایی فرآیند حذف در شرایط بهینه سونوالکتروشیمی (۳ pH، غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی گرم در لیتر، چگالی جریان ۱۲

میلی وات بر سانتی مترمربع) با افزایش توان الکتریکی از ۵۰ به ۱۵۰ وات و مدت زمان از ۸ به ۳۲ دقیقه افزایش می یابد (از ۸۱/۵ به ۱۰۰ درصد). کارایی فرآیند حذف فرمالدئید در شرایط بهینه سونوالکتروشیمی (۳ pH، فاصله ۱/۵ سانتی متر، توان الکتریکی ۱۵۰ وات، چگالی جریان ۱۲ میلی وات بر سانتی مترمربع، زمان ۳۲ دقیقه) در غلظت ۱۱۰ میلی گرم در لیتر (۱۰۰ درصد) بیش از غلظت های فرمالدئید ۲۲۰ میلی گرم در لیتر (۷۷/۴۵ درصد) و ۳۳۰ میلی گرم در لیتر (۵۷/۶ درصد) است. کارایی فرآیند حذف در شرایط بهینه سونوالکتروشیمی (غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی گرم در لیتر، توان الکتریکی ۱۵۰ وات، چگالی جریان ۱۲ میلی وات بر سانتی مترمربع، زمان ۳۲ دقیقه) با افزایش pH از ۳ به ۱۱ کاهش می یابد (از ۱۰۰ به ۸۶/۵ درصد).

سنتیک واکنش و بهینه سازی حذف فرمالدئید: شکل (۲) (الف و ب) مدل سنتیک واکنش های درجه اول (الف) و دوم (ب) برای حذف فرمالدئید توسط سونوالکتروشیمی را نشان می دهد. نتایج مطالعه سنتیک حذف فرمالدئید توسط راکتور ناپیوسته سونوالکتروشیمی نشان داد حذف فرمالدئید از سنتیک درجه اول ($R^2=0/9994$) پیروی می کند. مقادیر بهینه برای متغیرهای عامل با استفاده از مدل تاگوچی مشخص شد (جدول ۶). پارامترهای موثر در تجزیه سونوالکتروشیمی فرمالدئید در شکل

سونوالکتروشیمی را نشان می‌دهد. درجه آزادی نشانه معنی‌داری رآکتور سونوالکتروشیمی در حذف فرمالدئید است. غلظت ($p\text{-value}=0/001$ و ضریب همبستگی $0/995$) بیش‌ترین تاثیر برخوردار است که به‌خوبی بر داده‌های آزمایش منطبق است.

(۳) نشان داده شده است. با توجه به شکل (۳) مشاهده می‌شود که درصد عوامل موثر به ترتیب عبارتند از غلظت، pH، چگالی جریان، توان الکتریکی و زمان تابش. انحراف استاندارد نسبی یا ضریب تغییرات $0/51$ نشانه تکرارپذیری بالای داده‌های به‌دست آمده در طول آزمایش‌ها بود.

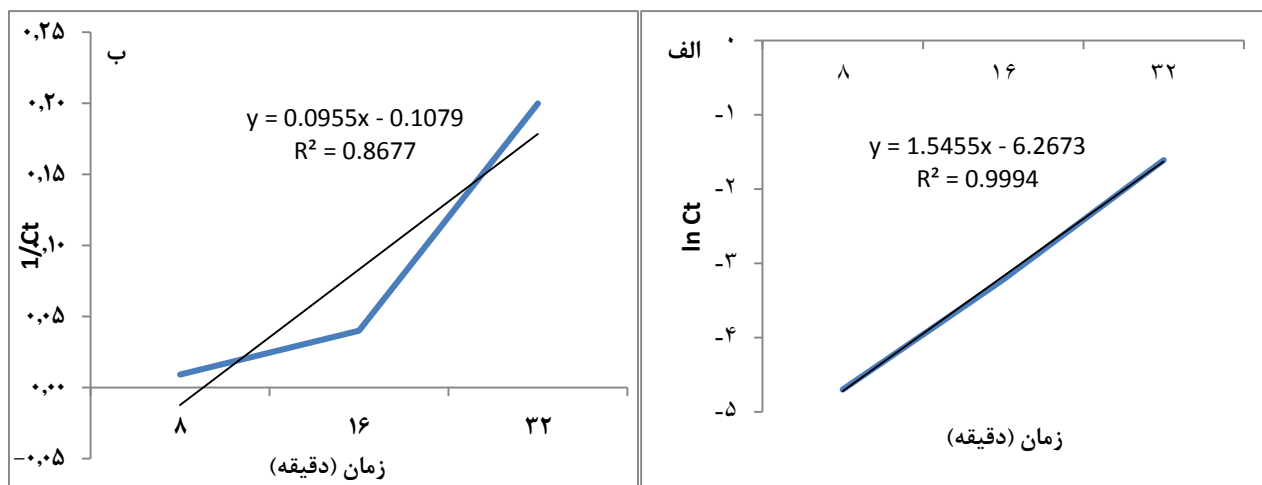
آنالیز واریانس یک‌طرفه سونوالکتروشیمی حذف فرمالدئید:

جدول (۷) آنالیز واریانس یک‌طرفه حذف فرمالدئید با

جدول ۴. نتایج اثر فراصوت در حذف فرمالدئید از آب آلوده ۱۱۰، ۲۲۰ و ۳۳۰ میلی‌گرم در لیتر pH، زمان

و توان‌های الکتریکی مختلف

pH	توان الکتریکی (W)	درصد کارایی حذف ۱۱۰			درصد کارایی حذف ۲۲۰			درصد کارایی حذف ۳۳۰		
		میلی‌گرم در لیتر			میلی‌گرم در لیتر			میلی‌گرم در لیتر		
		زمان (min)			زمان (min)			زمان (min)		
۳	۵۰	۱۴	۱۵	۱۶	۸/۵	۹/۵	۱۰/۵	۲	۳	۴
	۱۰۰	۱۵/۵	۱۶/۵	۱۷/۵	۱۰	۱۱	۱۲	۳/۵	۴/۵	۵/۵
	۱۵۰	۱۸	۱۹	۲۰	۱۱/۵	۱۲/۵	۱۳/۵	۶	۷	۸
۷	۵۰	۱۳	۱۴	۱۵	۸	۹	۱۰/۲	۱	۲	۳
	۱۰۰	۱۴/۵	۱۵/۵	۱۶	۹/۸	۱۰/۸	۱۱/۸	۳/۴	۴/۴	۵/۴
	۱۵۰	۱۷	۱۷/۶	۱۸/۵	۱۱/۳	۱۲/۳	۱۳/۳	۵	۶/۵	۷/۵
۱۱	۵۰	۱۰/۴	۱۱/۴	۱۲/۴	۵/۲	۶	۷/۱	۰/۲	۰/۴	۰/۹
	۱۰۰	۱۳	۱۳/۹	۱۴/۹	۶/۲	۷/۲	۸/۱	۰/۵	۱/۵	۲/۵
	۱۵۰	۱۳/۶	۱۴/۶	۱۵/۶	۷/۶	۸/۶	۹/۴	۲/۳	۳/۳	۴/۹



شکل ۲. نمودارهای مدل سنتیک واکنش درجه اول (الف) و دوم (ب) حذف فرمالدئید در راکتور ناپوسته سونوالکتروشیمی (شرایط آزمایشگاهی: دما ۲۰ درجه سلسیوس، pH ۳، زمان ۸-۳۲ دقیقه، توان الکتریکی ۱۵۰ وات، چگالی جریان ۱۲ وات بر سانی مترمربع، غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی‌گرم در لیتر).

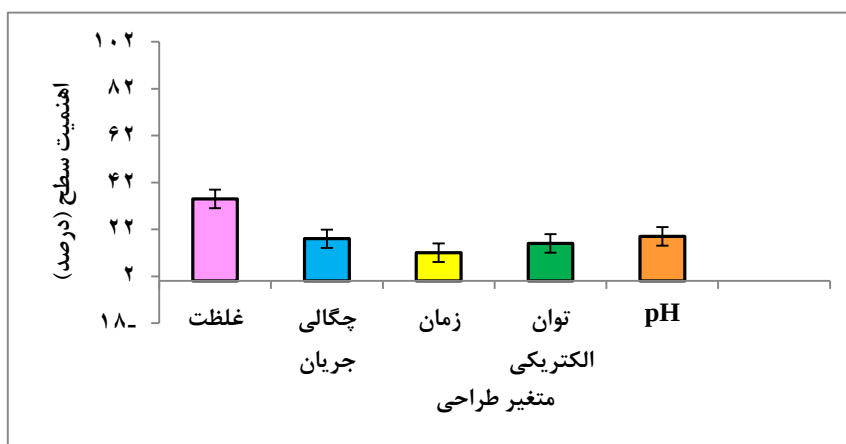
جدول ۵. نتایج اثر سونوالکتروشیمی در حذف فرمالدئید از آب آلوده ۱۱۰، ۲۲۰ و ۳۳۰ میلی گرم در لیتر، pH، زمان الکترولیز، توان های

الکتریکی و چگالی جریان های مختلف

pH	توان الکتریکی (W)	چگالی جریان (mA/cm ²)	فاصله الکترودها (cm)	درصد حذف ۱۱۰ میلی گرم در لیتر			درصد حذف ۲۲۰ میلی گرم در لیتر			درصد حذف ۳۳۰ میلی گرم در لیتر		
				زمان (min)			زمان (min)			زمان (min)		
				۸	۱۶	۳۲	۸	۱۶	۳۲	۸	۱۶	۳۲
۳	۵۰	۴	۱/۵	۷۱	۷۷/۵	۸۸/۲	۵۰/۹۵	۵۷/۶۵	۶۲/۳۵	۲۹/۹	۳۶/۶	۴۰/۸
				۷۷	۸۲/۵	۸۷/۲	۵۶/۹۵	۶۲/۶۵	۶۷/۳۵	۳۶/۴	۴۱/۶	۴۵/۸
				۸۱/۵	۸۸/۵	۹۳/۲	۶۱/۹۵	۶۸/۶۵	۷۲/۳۵	۴۰/۴	۴۷/۱	۵۰/۸
۳	۱۰۰	۴	۱/۵	۷۳/۳۵	۸۰/۰۵	۸۴/۷۵	۵۳/۵	۶۰/۲	۶۴/۹	۳۲/۴۵	۳۹/۱۵	۴۳/۳۵
				۷۹/۸۵	۸۵/۰۵	۸۹/۷۵	۵۹/۵	۶۵/۲	۶۹/۹	۳۷/۹۵	۴۴/۱۵	۴۸/۳۵
				۸۴/۳۵	۹۱/۰۵	۹۶	۶۴/۵	۷۱/۲	۷۴/۹	۴۲/۹۵	۴۹/۶۵	۵۳/۳۵
۳	۱۵۰	۴	۱/۵	۷۷/۶	۸۴/۳	۸۹	۵۶/۰۵	۶۲/۷۵	۶۷/۴۵	۳۶/۷	۴۳/۴	۴۷/۶
				۸۴/۱	۸۹/۳	۹۴	۶۲/۰۵	۶۷/۷۵	۷۲/۴۵	۴۲/۲	۴۸/۴	۵۲/۶
				۸۸/۶	۹۵/۳	۱۰۰	۶۷/۰۵	۷۳/۷۵	۷۷/۴۵	۴۷/۲	۵۳/۹	۵۷/۶
۷	۵۰	۴	۱/۵	۶۳/۵	۷۰/۵	۷۵/۲	۴۴/۴۵	۵۱/۱۵	۵۶/۳۵	۲۳/۴	۳۰/۱	۳۴/۸
				۶۹/۵	۷۵/۵	۸۰/۲	۵۰/۴۵	۵۷/۱۵	۶۰/۸۵	۲۹/۴	۳۵/۱	۳۹/۸
				۷۴/۵	۸۱/۵	۸۶/۲	۵۵/۴۵	۶۲/۱۵	۶۵/۸۵	۳۴/۴	۴۱/۱	۴۴/۸
۷	۱۰۰	۴	۱/۵	۶۶/۳۵	۷۳/۰۵	۷۷/۷۵	۴۷	۵۳/۷	۵۸/۹	۲۵/۹۵	۳۲/۶۵	۳۷/۳۵
				۶۶/۳۵	۷۸/۰۵	۸۲/۷۵	۵۴	۵۹/۷	۶۳/۷	۳۱/۹۵	۳۷/۶۵	۴۲/۳۵
				۷۷/۳۵	۸۴/۰۵	۸۸/۷۵	۵۸	۶۴/۷	۶۸/۴	۳۶/۹۵	۴۳/۶۵	۴۷/۳۵
۷	۱۵۰	۴	۱/۵	۷۰/۶	۷۷/۳	۸۲	۴۹/۵۵	۵۶/۲۵	۶۱/۴۵	۳۰/۲	۳۶/۹	۴۱/۶
				۷۶/۶	۸۲/۳	۸۷	۵۵/۵۵	۶۲/۲۵	۶۵/۹۵	۳۶/۲	۴۱/۹	۴۶/۶
				۸۱/۶	۸۸/۳	۹۳	۶۰/۵۵	۶۷/۲۵	۷۰/۹۵	۴۱/۲	۴۷/۹	۵۱/۶
۱۱	۵۰	۴	۱/۵	۵۸	۶۵	۶۹/۲	۳۸/۹۵	۴۵/۶۵	۵۰/۳۵	۱۷/۹	۲۴/۶	۲۹/۳
				۶۴	۷۰	۷۴/۹	۴۴/۹۵	۵۰/۶۵	۵۵/۳۵	۲۳/۹	۲۹/۶	۳۴/۳
				۶۹/۲	۷۶	۷۹/۷	۴۹/۹۵	۵۶/۶۵	۶۰/۳۵	۲۸/۹	۳۵/۶	۳۹/۳
۱۱	۱۰۰	۴	۱/۵	۶۰/۸۵	۶۷/۵۵	۷۱/۷۵	۴۱/۵	۴۸/۲	۵۲/۹	۲۰/۴۵	۲۷/۱۵	۳۱/۸۵
				۶۶/۸۵	۷۲/۵۵	۷۷/۴۵	۴۷/۵	۵۳/۲	۵۷/۹	۲۶/۴۵	۳۲/۱۵	۳۶/۸۵
				۷۲/۰۵	۷۸/۵۵	۸۲/۲۵	۵۲/۵	۵۹/۲	۶۲/۹	۳۱/۴۵	۳۸/۱۵	۴۱/۸۵
۱۱	۱۵۰	۴	۱/۵	۶۵/۱	۷۱/۸	۷۶	۴۴/۰۵	۵۰/۷۵	۵۵/۴۵	۲۴/۷	۲۲/۹	۳۶/۱
				۷۱/۱	۷۶/۸	۸۱/۷	۵۰/۰۵	۵۵/۷۵	۶۰/۴۵	۳۰/۷	۳۶/۴	۴۱/۱
				۷۶/۳	۸۲/۸	۸۶/۵	۵۵/۰۵	۶۱/۷۵	۶۵/۴۵	۳۵/۷	۴۲/۴	۴۶/۱

جدول ۶. ماتریکس مدل تاگوچی برای حذف فرمالدئید

مرحله	pH	چگالی جریان	غلظت فرمالدئید	زمان	توان الکتریکی	میزان حذف (درصد)	S/N
۱	۳	۱۲	۱۱۰	۳۲	۵۰	۹۳/۲	۳۹
۲	۷	۸	۲۲۰	۸	۱۰۰	۵۴	۳۴/۶
۳	۱۱	۴	۳۳۰	۱۶	۱۵۰	۲۳/۴	۲۷/۴
۴	۳	۱۲	۱۱۰	۳۲	۱۰۰	۹۶	۳۹/۶
۵	۷	۸	۲۲۰	۸	۱۵۰	۵۵/۵۵	۳۴/۹
۶	۱۱	۴	۳۳۰	۱۶	۵۰	۲۴/۶	۲۷/۸
۷	۳	۱۲	۱۱۰	۳۲	۱۵۰	۱۰۰	۴۰
۸	۷	۸	۲۲۰	۱۶	۱۰۰	۵۳	۳۴/۵
۹	۱۱	۴	۳۳۰	۸	۵۰	۱۷/۹	۲۵
۱۰	۳	۱۲	۱۱۰	۳۲	۱۰۰	۹۵/۷۵	۳۹/۶
۱۱	۷	۸	۲۲۰	۸	۵۰	۵۰/۴۵	۳۴
۱۲	۱۱	۴	۳۳۰	۱۶	۱۵۰	۲۲/۹	۲۷/۲
۱۳	۷	۱۲	۱۱۰	۳۲	۵۰	۸۶/۲	۳۸/۷
۱۴	۳	۸	۲۲۰	۸	۱۵۰	۶۲/۰۵	۳۵/۸
۱۵	۱۱	۴	۳۳۰	۱۶	۱۰۰	۲۷/۱۵	۲۸/۶



شکل ۳. مدل تاگوچی (شرایط آرایشگاهی: غلظت فرمالدئید ۳۳۰-۱۱۰ میلی گرم در لیتر، pH ۱۱-۳، زمان ۸-۳۲ دقیقه، توان الکتریکی ۵۰-۱۵۰ وات، چگالی جریان ۴-۱۲ وات بر سانی مترمربع)

جدول ۷. مقایسه آماری کارایی حذف فرمالدئید با متغیرهای مورد بررسی

متغیر	R ²	ANOVA[P-Value]	F
غلظت فرمالدئید	۰/۹۹۵	[*S] ۰/۰۰۱	۵۰/۴
چگالی جریان	۰/۸۰۵	[*S] ۰/۰۰۳	۹/۵
زمان	۰/۷۶۱	[*S] ۰/۰۰۵	۷/۵
توان الکتریکی	۰/۷۹۹	[*S] ۰/۰۰۴	۹/۱
pH	۰/۸۱۳	[*S] ۰/۰۰۲	۲۳/۵

بحث و نتیجه گیری

تأثیر الکتروشیمی بر حذف فرمالدئید: عامل pH در فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته از جمله روش الکتروشیمی به علت اثر بر ساختار فرمالدئید و میزان تولید عامل اکسیدکننده از قبیل

رادیکال هیدروکسیل و آب اکسیژنه نقش مهم دارد. گستره pH فرمالدئید ۳-۳/۵ است و فرمالدئید ماهیت اسیدی دارد. پروتونه شدن و پروتون زدایی فرمالدئید به pH بستگی دارد. شرایط

هیدروکسیل تولیدشده، توسط چگالی جریان اعمال شده کنترل می شود. تولید اکسیژن در الکتروود آند سهم زیادی در تخریب بیشتر فرمالدئید دارد. با افزایش چگالی جریان، زمان لازم برای واکنش کاهش می یابد که باعث افزایش کارایی حذف می شود. Shojaei و همکاران (۲۰۲۴) افزایش کارایی حذف فرمالدئید با افزایش پتانسیل الکتریکی را توسط فرایند الکترووشیمی اعلام نمودند.

تاثیر فراصوت بر حذف فرمالدئید: تغییرات pH در فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته از طریق تولید عامل اکسیدکننده از قبیل رادیکال هیدروکسیل بر واپاشی مواد آلیاز قبیل فرمالدئید تاثیر می گذارد (Rahmani et al., 2015). افزایش کارایی فرآیند فراصوت در pH بهینه ۳ را می توان به تولید رادیکال پرهیدروکسیل ناشی از ترکیب شدن رادیکال سوپراکساید با یون هیدروژن نسبت داد. رادیکال پرهیدروکسیلاز توانایی تولید پراکسید هیدروژن تبدیل شونده به رادیکال هیدروکسیل را دارد. سونولیز فرمالدئید در pH بهینه ۳ به علت افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل افزایش می یابد. Huang و همکاران (۲۰۱۷) pH بهینه حذف دیکلوفناک با فرآیند فراصوت در حضور روی عنصری را کم تر و مساوی ۲ اعلام نمودند. Almasi و همکاران (۲۰۱۷) pH بهینه حذف فنل با فرآیند فراصوت/پراکسید هیدروژن را ۳ اعلام نمودند. افزایش غلظت فرمالدئید اثر منفی بر کارایی حذف به علت کاهش میزان واپاشی فرمالدئید داشت. Choi و همکاران (۲۰۲۰) غلظت بهینه حذف رنگ ائوزین با فرآیند فراصوت را ۵ میلی گرم در لیتر اعلام نمودند. دلیل افزایش کارایی حذف با گذشت زمان، افزایش سطح مقطع جذب به علت افزایش انحلال الکتروود آند است. واپاشی سونولیز غلظت های مختلف فرمالدئید در ۸ دقیقه اول شدیدتر بوده و سپس واپاشی به آرامی پیش رفت. Tran و همکاران (۲۰۱۳) زمان بهینه حذف کارابامازیبین با فرآیند فراصوت ۱۱۶ دقیقه اعلام نمودند. اثر فراصوت در اکسایش فرمالدئید عمدتاً از طریق واکنش با رادیکال های هیدروکسیل تولیدشده هنگام کاویتاسیون آب انجام می شود. افزایش توان الکتریکی به همراه افزایش سرعت واکنش های رادیکال های هیدروکسیل برای تجزیه فرمالدئید است. توان الکتریکی کم تر به میزان تولید رادیکال هیدروکسیل کم تر و امکان خروج کم تر رادیکال ها از

قلیائی محیط راکتور الکترووشیمی به همراه افزایش تجزیه فرمالدئید به علت تولید رادیکال هیدروکسیل و آب اکسیژنه است. مطابق آنالیز آماری، pH بهینه حذف فرمالدئید ۱۱ تعیین شد (۱۰۰ درصد حذف فرمالدئید)، زیرا تولید رادیکال هیدروکسیل در شرایط pH قلیایی افزایش می یابد. Kashi (۲۰۱۷) pH بهینه حذف فنانترون با راکتور الکترووشیمی را در شرایط قلیائی اعلام نمود. Khodabakhshi و همکاران (۲۰۲۳) pH بهینه حذف فرمالدئید با روش فرابفش/پرسولفات/کاتیون فرو را در شرایط قلیائی اعلام نمودند. نتایج نشان داد کارایی تجزیه فرمالدئید با افزایش زمان به علت افزایش وقوع واکنش ها در سطح الکتروودهای آند و کاتد در جهت تولید رادیکال هیدروکسیل که بر روی سرعت واکنش تاثیر می گذارد، است. انتقال جرم از طریق مهاجرت الکتریکی فرمالدئید به سمت الکتروود با گذشت زمان تسریع می شود. کارایی حذف فرمالدئید در نتیجه افزایش زمان افزایش می یابد. ul Nisa و همکاران (۲۰۲۳) زمان واکنش بهینه حذف اوره-فرمالدئید و ملامین فرمالدئید با روش الکترووشیمی را ۱۵۰ دقیقه اعلام نمودند. Hashemzadeh و Borghe (۲۰۱۹) کاهش کارایی حذف با افزایش غلظت آلاینده ها را توسط فرآیند الکتروکواگولاسیون اعلام نمودند. Kashi و Khoshab (۲۰۱۵) کاهش کارایی حذف با افزایش غلظت آلاینده را توسط فرآیند پراکسی الکترووشیمی اعلام نمودند. میزان وقوع واکنش ها در سطح الکتروودهای آند و کاتد در جهت تولید رادیکال هیدروکسیل که بر روی سرعت واکنش تاثیر می گذارد تحت چگالی جریان عبوری در راکتور الکترووشیمی است. افزایش چگالی جریان به همراه افزایش دمای سیستم است. واکنش های الکترواکسیداسیون مستقیم/غیرمستقیم آند توسط میدان الکتریکی خارجی در چگالی جریان بالاتر ارتقا می یابد. تعداد رادیکال های هیدروکسیل متناسب با سطح الکتروودها است و کارایی واپاشی با سطح الکتروودها ارتباط دارد. شدت وقوع واکنش ها در سطح الکتروودها تابع چگالی جریان است و با افزایش چگالی جریان تخریب فرمالدئید با سرعت بیشتری انجام می شود. افزایش چگالی جریان به تولید سریع فرآورده های الکترولیز مسئول تجزیه فرمالدئید از قبیل آنیون هیدروکسید در الکتروود کاتد کمک می کند. کارایی جذب فرمالدئید توسط الکتروود مثبت آند روی متناسب با افزایش چگالی جریان است. مقدار رادیکال های

داخل حباب‌های کاویتاسیون منجر می‌شود. فعالیت کاویتاسیون مرتبط با تولید رادیکال هیدروکسیل به صورت خطی با توان الکتریکی افزایش یافته است. اثر توان الکتریکی در حذف فرمالدئید هنگام ثابت نگه داشتن زمان (۳۲ دقیقه) بیش از زمان است. اندازه، تعداد، طول عمر و شدت فروپاشی حباب‌های تولیدشده از جمله عوامل مهم در واپاشی سونولیز محسوب می‌شوند که به نوبه خود به فرکانس و توان فراصوت بستگی دارند. جهش حباب با سرعت کم در فرکانس پایین‌تر اتفاق می‌افتد و طول عمر حباب حفره دار باید بیشتر باشد. بنابراین، شانس ترکیب مجدد رادیکال‌های هیدروکسیل در سطح مشترک افزایش می‌یابد. افزایش فرکانس امکان دسترسی به پخش بیشتر و ناحیه پراکنده حباب‌های کاویتاسیون را فراهم می‌کند. بنابراین، حتی اگر اندازه حفره در فرکانس بالاتر کاهش یابد، دسترسی به جایگاه واکنش و تعداد رویدادهای حفره‌ای بیشتر می‌شود و تولید رادیکال‌های هیدروکسیل نیز بیشتر می‌شود. افزایش توان الکتریکی به افزایش تولید رادیکال‌های هیدروکسیل به علت افزایش تعداد نوسان‌ها و طول عمر حباب‌ها منجر می‌شود. Rayaroth و همکاران (۲۰۱۵) فرکانس و چگالی الکتریکی بهینه حذف برلیان بلو کوماسی با فرآیند سونوشیمی را به ترتیب ۳۵۰ کیلوهرتز و ۱۹/۶ وات بر میلی‌لیتر اعلام نمودند. Villaroel و همکاران (۲۰۱۴) توان الکتریکی بهینه حذف استامینوفن با فرآیند سونوشیمی را ۶۰ وات اعلام نمودند.

تاثیر سونوالکتروشیمی بر حذف فرمالدئید: ترکیب
الکتروشیمی و فراصوت به بهبود و افزایش گستره کارایی حذف فرمالدئید ۳۴-۳/۴ درصد به ترتیب برای بهترین حالت حذف (غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی‌گرم در لیتر، pH ۳، زمان ۳۲ دقیقه، توان الکتریکی ۵۰ وات، چگالی جریان ۱۲ وات بر سانی مترمربع) و بدترین حالت حذف (غلظت فرمالدئید ۳۳۰ میلی‌گرم در لیتر، pH ۱۱، زمان ۸ دقیقه، توان الکتریکی ۵۰ وات، چگالی جریان ۴ وات بر سانی مترمربع) است. افزایش حذف فرمالدئید در ترکیب الکتروشیمی و فراصوت را می‌توان به واپاشی آن به علت افزایش (۳۴-۳/۴ درصد) رادیکال‌های هیدروکسیل نسبت داد. کاربرد ترکیب الکتروشیمی و فراصوت بر شرایط مطلوب برای تصفیه آب آلوده به فرمالدئید جهت

برقراری استاندارد آب آشامیدنی (۱۰ میکروگرم بر لیتر) تاکید می‌کند. کارایی بالای فرآیند ترکیبی نشانه توانایی عالی آن به عنوان فرآیند کارآمد سبز دوست‌دار محیط زیست برای تصفیه آب آلوده به فرمالدئید است. pH نقش مهمی در تعیین میزان واپاشی فرمالدئید دارد. میزان تغییرات تولید رادیکال‌های هیدروکسیل تابع تغییرات pH است. سونوالکتروشیمی فرمالدئید در pH بهینه ۳ به علت هم‌افزایی افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل افزایش می‌یابد. محیط اسیدی فرآیند سونوالکتروشیمی، شرایط مناسب‌تری برای تولید الکتریکی رادیکال‌های هیدروکسیل است. Jawale و Gogate (۲۰۱۸) pH بهینه حذف تریازوفوس را ۳/۲ اعلام نمودند. Jawale و همکاران (۲۰۱۴) pH بهینه حذف فروسیانید پتاسیم را pH ۲ اعلام نمودند. افزایش غلظت آلاینده در راکتور به همراه افزایش مصرف عوامل اکسیدکننده از قبیل رادیکال هیدروکسیل، اکسیداسیون مستقیم توسط سونولیز و الکترولیز است. کاهش کارایی فرآیند با افزایش غلظت آلاینده را می‌توان به ثابت بودن تولید عامل اکسیدکننده از قبیل رادیکال هیدروکسیل و آب اکسیژنه، چگالی الکتریکی، توان الکتریکی و زمان واکنش به ازای غلظت‌های زیاد فرمالدئید نسبت داد. بنابراین تجزیه کامل فرمالدئید در غلظت‌های بالا امکان‌پذیر نیست. به عبارت دیگر افزایش غلظت اولیه فرمالدئید به زمان واپاشی بیشتری نیاز دارد. غلظت کم‌تر فرمالدئید به حذف سریع‌تر آن منجر می‌شود. فرمالدئیدزدایی سریع‌تر محلول رقیق‌تر به تحرک مولکول‌های فرمالدئید در محلول رقیق نسبت داده می‌شود. Licht و همکاران (۲۰۲۳) غلظت بهینه حذف سلنیوم و استرانسیوم با فرآیند سونوالکتروشیمی را ۱ میلی‌گرم در لیتر اعلام نمودند. Olya و همکاران (۲۰۱۳) غلظت بهینه حذف رنگ اسید قرمز ۸۸ با فرآیند سونوالکتروشیمی را ۳۰ میلی‌گرم در لیتر اعلام نمودند. زمان عملیات متغیر مهم عملکرد در فرآیند سونوالکتروشیمی است، زیرا زمان عملیاتی بالاتر به همراه نیاز به انرژی بیشتر و سرعت تصفیه کم‌تر است و در نتیجه باید برای تصفیه هزینه- اثربخش بهینه شود. روند حذف فرمالدئید دارای شیب تند پس از ۸ دقیقه است. کاربرد فراصوت با الکتروشیمی به کاهش زمان برای رسیدن به حذف ۱۰۰ درصد فرمالدئید منجر می‌شود. سونوالکتروشیمی در مقایسه با فراصوت به زمان کم‌تری برای تجزیه کامل فرمالدئید نیاز دارد.

نمودند. تجزیه فرمالدئید به دو سازوکار اصلی اکسیداسیون مستقیم (لکترولیز و سونولیز) و اکسیداسیون غیرمستقیم انجام می شود. مجموعه سازوکارهای اکسیداسیون مستقیم دخیل در تجزیه فرمالدئید به همراه تشکیل پراکسید هیدروژن و رادیکال هیدروکسیل هستند.

آنالیز واریانس یک طرفه سونوالکتروشیمی حذف فرمالدئید:

پیش بینی پذیری مدل در سطح اطمینان ۹۵ درصد بر اساس آنالیز واریانس یک طرفه تایید شد. گستره ضریب همبستگی (۷۶۱/۹۹۵-۰/۰) نشانه تناسب قوی است. گستره مقدار F معنی داری بالای تصفیه را برجسته می کند. مقدار F ، ۵۰/۴، نشانه معنی داری فرآیند است. گستره مقادیر P کم تر از ۰/۰۵ برای هر متغیری بر تاثیر قابل توجه متغیرهای مستقل بر متغیرهای وابسته تاکید می کند. بنابراین می توان نتیجه گیری نمود که غلظت متغیر مهم برای بیشینه کارایی حذف فرمالدئید است. Çokay و همکاران (۲۰۲۴) مقدار F ، ۱۲/۱۸، نشانه معنی داری فرآیند فراصوت اعلام نمودند. نتایج مدل طراحی آزمایشات با روش تاگوچی با نتایج آنالیز آماری^۱ مطابقت دارند. بررسی تاثیر فراصوت بر کارایی حذف غلظت های مختلف فرمالدئید با استفاده از روش سونوالکتروشیمی در گستره توان های الکتریکی مختلف همراه با چگالی جریان های مختلف، شناسایی سازوکار واپاشی، شناسایی سطح اهمیت متغیرهای تاثیرگذار بر کارایی حذف، مقایسه سنتیک های واکنش و مقایسه نتایج تاگوچی با آنالیز واریانس یک طرفه از جمله نقطه قوت تحقیق محسوب می شود.

با توجه به نتایج تحلیل های آماری مطالعه حاضر، مقدار بهینه زمان، چگالی جریان، توان الکتریکی، غلظت فرمالدئید و pH برای دستیابی به بیشینه حذف فرمالدئید در فرآیند سونوالکتروشیمی به ترتیب ۳۲ دقیقه، ۱۲ میلی وات بر سانتی متر مربع، ۱۵۰ وات، ۱۱۰ میلی گرم در لیتر و ۳ را نشان دادند. نتایج این پژوهش بیان کننده آن است که کارایی حذف فرآیند سونوالکتروشیمی عمدتاً وابسته به متغیرهای بهره برداری از قبیل pH، چگالی جریان، زمان، توان الکتریکی و غلظت فرمالدئید است. حذف فرمالدئید از سنتیک درجه اول ($R^2=0/9994$) پیروی می کند و غلظت به عنوان مهم ترین متغیر

Shestakova و همکاران (۲۰۱۶) زمان بهینه حذف اسید فرمیک با فرآیند سونوالکتروشیمی را ۱۲۰ دقیقه اعلام نمودند. Ren و همکاران (۲۰۱۴) زمان بهینه حذف تری کلوزان با فرآیند سونوالکتروشیمی را ۱۵ دقیقه اعلام نمودند. دلیل افزایش کارایی فرآیند سونوالکتروشیمی با افزایش چگالی جریان را می توان به افزایش تولید عامل اکسیدکننده از قبیل رادیکال هیدروکسیل و آب اکسیژنه در الکترودها نسبت داد. افزایش چگالی جریان سرعت واکنش ها را تسریع می کند. کاهش چگالی جریان به همراه زمان بیشتر واپاشی است. اعمال چگالی جریان از طریق الکترودها دو اثر متمایز دارد: ۱) انتقال جرم از طریق مهاجرت الکتریکی فرمالدئید به سمت الکترودها را تسریع می کند و گونه های اکسیداتیو اضافی تولید می کند؛ ۲) اعمال پتانسیل مثبت بر روی الکترودها ممکن است جذب فرمالدئید را افزایش دهد که کارایی فرمالدئیدزایی را تا حدی افزایش می دهد. Tran و همکاران (۲۰۱۷) کارایی حذف دارو کاربامازپین با فرآیند سونوالکتروشیمی (جریان الکتریکی ۱ آمپر و توان الکتریکی ۴۰ وات) را ۹۹/۵ درصد اعلام نمودند.

سنتیک واکنش، بهینه سازی و سازوکار حذف فرمالدئید:

سرعت واکنش با میزان مواد واکنش دهنده (غلظت فرمالدئید) در سنتیک درجه اول رابطه مستقیم و خطی دارد. ثابت سرعت و نیمه عمر سنتیک واکنش درجه اول به ترتیب ۰/۲۲ بر دقیقه و ۳/۱۵ دقیقه اندازه گیری شد. Raschitor و همکاران (۲۰۲۰) سنتیک حذف زائادات آلوده کلوئیدی با فراصوت/ انعقاد الکتریکی را درجه اول اعلام نمودند (۴۵). Mehralipour و Kermani (۲۰۱۹) سنتیک حذف سم ۲ و ۴ دی کلرو فونوکسی استیک اسید با فرآیند سونوالکتروپراکسون را درجه اول اعلام نمودند. تاگوچی با استفاده از روش های آماری از بین ۷۲۹ آزمایش، ۱۵ آزمایش که بیشترین تاثیر را از ۴ عامل مرتبط داشتند، شناسایی کرد. غلظت به عنوان مهم ترین متغیر بر اساس کارایی حذف فرمالدئید به دست آمده توسط مدل تاگوچی است. Salman (۲۰۱۹) زمان را به عنوان مهم ترین متغیر بر اساس کارایی حذف به دست آمده توسط مدل تاگوچی اعلام نمود. Abbas و Abbas (۲۰۲۲) زمان را به عنوان مهم ترین متغیر بر اساس کارایی حذف به دست آمده توسط مدل تاگوچی اعلام

- Choi, Y., Lee, D., Hong, S., Khan, S., Darya, B., Lee, J.-Y., Chung, J. and Cho, S.-H. (2020) Investigation of the synergistic effect of sonolysis and photocatalysis of titanium dioxide for organic dye degradation. *Catalysts*, 10: 500-500.
- Çokay, E., Eker, S., & Taşkın, E. (2024). Treatment of table olive processing wastewater with US/UV processes. *Heliyon*, 10(17)
- Farhoodi, A.M., Hassani, A.H., Kashi, G., Javid, A.H. and Mansouri, N. (2024) Optimization of the electro-photocatalytic process for the removal of formaldehyde from water using the Taguchi model. *Heliyon*, 10(19): e38442.
- Hashemzadeh, F. and Borghei, S.M. (2021) Study on application of electrocoagulation process to remove heavy metals lead. Cadmium and Chromium from Water, 23(4107): 213-224.
- Hosseinizadeh, A., Najafpoor, A.A., Navaei, A.A., Zhou, J.L., Altaee, A., Ramezani, N., Dehghan, A., Bao, T. and Yazdani, M. (2021) Improving formaldehyde removal from water and wastewater by fenton, photo-fenton and ozonation/fenton processes through optimization and modeling. *Water*, 13(19): 2754. Retrieved from <https://doi.org/10.3390/w13192754/>
- Hu, D., Liu, S., Qi, L., Liang, J. and Zhang, G. (2024). A critical review on ultrasound-assisted adsorption and desorption technology: mechanisms, influencing factors, applications, and prospects. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 12(6): 114307. Retrieved from <https://doi.org/10.1016/j.jece.2024.114307/>
- Hu, D., Liu, S. and Zhang, G. (2024b) Sonochemical treatment for removal of aqueous organic pollutants: Principles, overview and prospects. *Separation and Purification Technology*, 353(Part A): 128264. Retrieved from <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2024.128264/>
- Huang, T., Zhang, G., Chong, S., Liu, Y., Zhang, N., Fang, S. and Zhu, J. (2017) Effects and mechanism of diclofenac degradation in aqueous solution by US/ZnO. *Ultrasonics Sonochemistry*, 37: 676-685.
- Iervolino, G., Zammit, I., Vaiano, V. and Rizzo, L. (2020) Limitations and prospects for wastewater treatment by UV and visible-light-active heterogeneous photocatalysis: A critical review. *Heterogeneous photocatalysis: Recent advances*, pp. 225-264.
- Jawale, R.H. and Gogate, P.R. (2018) Combined treatment approaches based on ultrasound for removal of triazophos from wastewater. *Ultrasonics sonochemistry*, 40: 89-96.
- Jawale, R.H., Gogate, P.R. and Pandit, A.B. (2014) Treatment of cyanide containing wastewater using cavitation based approach. *Ultrasonics Sonochemistry*, 21: 1392-1399.
- Kashi, G. (2017) Optimization of electrochemical process for phenanthrene removal from aqueous medium by Taguchi. *Toxicological & Environmental Chemistry*, 99: 772-782.
- بر اساس کارایی حذف فرمالدئید به دست آمده توسط مدل تاگوچی است. اکسیداسیون مستقیم موثر در تجزیه فرمالدئید به همراه تشکیل پراکسید هیدروژن و رادیکال هیدروکسیل هستند. با توجه به نتایج این مطالعه بینش‌های جدیدی را برای مطالعه تصفیه سونوالکتروشیمی جهت حذف فرمالدئید از طریق اکسیداسیون مستقیم (الکترولیز و سونولیز) و اکسیداسیون غیرمستقیم ارائه می‌دهد. شرایط بهینه حذف فرمالدئید عبارت هستند از: زمان ۳۲ دقیقه، چگالی جریان ۱۲ میلی‌وات بر سانتی‌مترمربع، توان الکتریکی ۱۵۰ وات، غلظت فرمالدئید ۱۱۰ میلی‌گرم در لیتر و pH ۳. روش سونوالکتروشیمی برای حذف فرمالدئید در غلظت بالا از کارایی زیاد برخوردار است و کاربرد آن در تصفیه آب و فاضلاب پیشنهاد می‌شود. بررسی اثر تشدیدکنندگی راکتور سونوالکتروشیمی ناپیوسته با انواع الکترودهای دیگر بری مطالعات آینده پیشنهاد می‌شود. عدم بررسی کارایی حذف فرآیند سونوالکتروشیمی در حضور متغیرهای شیمیایی دیگر کیفیت آب از قبیل مواد آلی و آنیون کربنات، عدم بررسی متغیر عملیاتی و بهینه‌سازی فشار، عدم برآورد هزینه، عدم بررسی فرآورده‌های جانبی احتمالی و عدم بررسی کارایی سیستم در مقیاس واقعی از جمله محدودیت‌های تحقیق محسوب می‌شوند.

منابع

- Abbas, R.N. and Abbas, A.S. (2022) The Taguchi approach in studying and optimizing the electro-fenton oxidation to reduce organic contaminants in refinery wastewater using novel electrodes. *Engineering, Technology & Applied Science Research*, 12(4): 8928-8935.
- Al-Marri, S., AlQuzweeni, S.S., Hashim, K.S., AlKhaddar, R., Kot, P., AlKizwini, R.S., Zubaidi, S.L. and Al-Khafaji, Z.S. (2020) Ultrasonic-Electrocoagulation method for nitrate removal from water. In *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*: 012073, IOP Publishing.
- Almasi, H., Asgari, G., Leili, M., Sharifi, Z. and Seid-Mohammadi, A. (2017) The study of phenol removal from aqueous solutions using oxidizing agents of peroxide hydrogen, persulfate and periodate activated by ultrasound. *Journal of Rafsanjan University of Medical Sciences*, 15(9): 835-848.
- Bello, M.M., Raman, A.A.A. and Asghar, A. (2019) A review on approaches for addressing the limitations of Fenton oxidation for recalcitrant wastewater treatment. *Process Safety and Environmental Protection*, 126: 119-140.

- Raschitor, A., Llanos, J., Cañizares, P. and Rodrigo, M.A. (2020) Improved electrolysis of colloid-polluted wastes using ultrasounds and electrocoagulation. *Separation and Purification Technology*, 231: 115926.
- Rayaroth, M.P., Aravind, U.K. and Aravindakumar, C.T. (2015) Sonochemical degradation of Coomassie Brilliant Blue: Effect of frequency, power density, pH and various additives. *Chemosphere*, 119: 848-855.
- Ren, Y-Z., Franke, M., Anschuetz, F., Ondruschka, B., Ignaszak, A. and Braeutigam, P. (2014) Sonoelectrochemical degradation of triclosan in water. *Ultrasonics Sonochemistry*, 21: 2020-2025.
- Salman, R.H. (2019) Removal of manganese ions (Mn^{2+}) from a simulated wastewater by electrocoagulation/electroflotation technologies with stainless steel mesh electrodes: Process optimization based on Taguchi approach. *Iraqi Journal of Chemical and Petroleum Engineering*, 20: 39-48.
- Shestakova, M., Vinatoru, M., Mason, T.J., Iakovleva, E. and Sillanpää, M. (2016) Sonoelectrochemical degradation of formic acid using Ti/Ta₂O₅-SnO₂ electrodes. *Journal of Molecular Liquids*, 223: 388-394.
- Sheydaei, M., Fattahi, M., Ghalamchi, L. and Vatanpour, V. (2019) Systematic comparison of sono-synthesized Ce-, La-and Ho-doped ZnO nanoparticles and using the optimum catalyst in a visible light assisted continuous sono-photocatalytic membrane reactor. *Ultrasonics Sonochemistry*, 56: 361-371.
- Shojaei, A., Moeinian, K. and Rostami, R. (2024) Removal of formaldehyde from the air flow in an electrochemical process. *Process Safety and Environmental Protection*, 190: 1040-1051.
- Soltani, R.D.C., Khataee, A., Mashayekhi, M. and Safari, M. (2016) Photocatalysis of formaldehyde in the aqueous phase over ZnO/diatomite nanocomposite. *Turkish Journal of Chemistry*, 40: 402-411.
- Soltani, R.D.C., Rezaee, A., Safari, M., Khataee, A. and Karimi, B. (2015) Photocatalytic degradation of formaldehyde in aqueous solution using ZnO nanoparticles immobilized on glass plates. *Desalination and Water Treatment*, 53: 1613-1620.
- Tran, N., Drogui, P., Brar, S.K. and De Coninck, A. (2017) Synergistic effects of ultrasounds in the sonoelectrochemical oxidation of pharmaceutical carbamazepine pollutant. *Ultrasonics Sonochemistry*, 34: 380-388.
- Tran, N., Drogui, P., Zaviska, F. and Brar, S.K. (2013) Sonochemical degradation of the persistent pharmaceutical carbamazepine. *Journal of Environmental Management*, 131: 25-32.
- ul Nisa, T., Khokhar, W.A., Imran, U., Khokhar, S.A. and Soomro, N. (2023) Electrochemical treatment of wastewater containing urea-
- Kashi, G. and Hydarian, N. (2015). Optimization electrophotocatalytic removal of sulfanilamide from aqueous water by taguchi model. *Journal of Mathematics*, 2015: 86-98.
- Kashi, G. and Khoshab, F. (2015) Proxy electrochemical process for Acid humic. *Ciência e Natura* 37, 41-48.
- Khodabakhshi, A., Hatami, V., Hemati, S. and Sadeghi, M. (2020) Removal of formaldehyde from aqueous solutions by advanced oxidation processes: UV/S: 2: O: 8: 2-:/Fe: 2+: and UV/S: 2: O: 8: 2. *International Journal of Environmental Health Engineering*, 9(1): 20-20.
- Korake, S.R. and Jadhao, P.D. (2021). Investigation of Taguchi optimization, equilibrium isotherms, and kinetic modeling for cadmium adsorption onto deposited silt. *Heliyon*, 7(1): e05755.
- Li, H., Sang, Y., Chang, S., Huang, X., Zhang, Y., Yang, R., Jiang, H., Liu, H. and Wang, Z.L. (2015) Enhanced ferroelectric-nanocrystal-based hybrid photocatalysis by ultrasonic-wave-generated piezophototronic effect. *Nano letters*, 15: 2372-2379.
- Licht, K., Halkijevic, I., Posavcic, H. and Kosar, V. (2023) Study of ultrasound, initial concentration and electrode material on the electrochemical removal of selenium and strontium. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 191: 109457.
- Majd, M.H., Rajaei, A., Bashi, D.S., Mortazavi, S.A. and Bolourian, S. (2014) Optimization of ultrasonic-assisted extraction of phenolic compounds from bovine pennyroyal (*Phlomischema parviflorum*) leaves using response surface methodology. *Industrial Crops and Products*, 57: 195-202.
- Mehralipour, J. and Kermani, M. (2019) Optimization of the ultrasonic-electroproxone process via graphene-titanium electrodes in removal of 2, 4 D from synthetic wastewater by RSM. [Journal of Environmental Health Engineering](#), 7(1): 11-28.
- Nowshad, F., Islam, M.N. and Khan, M.S. (2018) Concentration and formation behavior of naturally occurring formaldehyde in foods. *Agriculture and Food Security*, 7: 1-8.
- Olya, M., Pirkarami, A., Soleimani, M. and Yousefi Limaee, N. (2013) Decolorization of acid dye using sono-based processes: Sonoelectrochemical, sonophotoelectrochemical and sonophotoelectrocatalysis. *Progress in Color, Colorants and Coatings*, 7: 105-120.
- Panahi, A., Kamani, H., Sancholi, F. and Havangi, M. (2017) Efficiency evaluation ultrasonic/Fenton process in removal of antibiotic Penicillin G from aquatic solution by response surface methodology, Pe83-Pe98.
- Rahmani, A.R., Shabanloo, A., Mehralipour, J., Fazlzadeh, M. and Poureshgh, Y. (2015) Degradation of phenol in aqueous solutions using electro-fenton process. *Research Journal of Environmental Sciences*, 9: 332.

- Yousefi, M., Nabizadeh, R., Alimohammadi, M., Mohammadi, A.A. and Mahvi, A.H. (2019) Removal of phosphate from aqueous solutions using granular ferric hydroxide process optimization by response surface methodology. *Desalin Water Treat*, 158: 290-300.
- Zhang, Y., Wang, M., San, X., Zhang, L., Wang, N., Wang, G., Meng, D. and Shen, Y. (2024) Highly selective gas sensors for formaldehyde detection based on ZnO@ ZIF-8 core-shell heterostructures. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 398: 134689.
- formaldehyde and melamine-formaldehyde. *Chemosphere*, 338: 139587.
- Villaroel, E., Silva-Agredo, J., Petrier, C., Taborda, G. and Torres-Palma, R.A. (2014) Ultrasonic degradation of acetaminophen in water: Effect of sonochemical parameters and water matrix. *Ultrasonics Sonochemistry*, 21: 1763-1769.
- Yousefi, M., Akbari, H., Adibzadeh, A., Mohammadi, A.A., Baziar, M., Farajzadeh, M.A. and Akbari, H. (2024) Adsorption of diazinon from aqueous solution using metal organic framework and functionalized graphene: Comparison of BBD, ANN models. *Chemosphere*, 351: 141222.

Evaluation of the efficiency of the sono-electrochemical process for the removal of environmental pollutants in aquatic ecosystems (Case study: formaldehyde removal)

Amir Mohammad Farhoodi¹, Amir Hessam Hassani², Giti Kashi^{3*}, Amir Hossein Javid², and Nabiollah Mansouri²

- 1) 1) PhD Student, Department of Environmental Engineering, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran
- 2) Professor, Department of Environmental Engineering, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran
- 3) Associate Professor, Department of Environmental Health Engineering, Medical Sciences Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran. *Corresponding Author Email Address: g.kashi@yahoo.com

Date of Submission: 2024/10/29

Date of Acceptance: 2025/01/31

Abstract

According to the US Environmental Protection Agency, formaldehyde is classified as a Group 1 carcinogen. A threshold concentration of 1.61 mg/L of formaldehyde has been proposed to protect aquatic ecosystems. As a result, wastewater containing formaldehyde should be treated before discharge to the environment to protect aquatic ecosystems and human health. The aim of this applied research is to investigate the efficiency of formaldehyde removal from urban drinking water by the advanced sono-electrochemical oxidation process. This research was conducted on a laboratory scale and in a single-pole sono-electrochemical batch reactor. Certain amounts of formaldehyde were added to a sample of urban drinking water in Tehran. The removal efficiency was investigated using zinc-copper electrodes (due to the establishment of the best potential) in different conditions of pH (11-3), time (0-32 minutes), formaldehyde concentration (110-330 mg/L), current density (4-8 mW/cm²) and electric power (50-100 W). The measurement of the residual formaldehyde concentration was carried out by spectrophotometry at a wavelength of 400 nm using the colorimetric method with chromotropic acid 6252. The results were analyzed with absorption kinetic models and one-way analysis of variance. All stages of the research were carried out in accordance with ethical standards. The best removal conditions of 110 mg/L formaldehyde (100% efficiency) were obtained at a contact time of 32 min, an optimum pH of 3, a current density of 12 mA/cm² and an electrical power of 150 W. The process followed a first-order kinetic model ($R^2 = 0.9994$) and one-way analysis of variance. Concentration was the most important variable based on the formaldehyde removal efficiency obtained by the Taguchi model. This study provides new insights into the study of sono-electrochemical treatment for formaldehyde removal via direct oxidation (electrolysis and sonolysis) and indirect oxidation.

Keywords: Formaldehyde, Kinetick model, Sono-electrochemistry, Taguchi, Ultrasound.