

میزان تخریب رنگ آلی متیل اورانژ توسط پلاسما ولتاژ بالای اسپارک

فائزه رحیمی^{۱*}

Rahimifaezeh009@gmail.com

مهدی مومنی^۲

منصور عرب چمنگلی^۳

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۹/۱۹

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۲/۱

چکیده

زمینه و هدف: یکی از مهمترین معضلات جامعه مدرن آلودگی آب‌ها می‌باشد، از جمله این آلاینده‌ها، رنگ‌های آلی موجود در پساب کارخانه‌های صنعتی هستند که حذف آن‌ها بسیار حائز اهمیت است. هدف از این پژوهش ارائه راهکاری برای از بین بردن رنگ آلی متیل اورانژ موجود در فاضلاب‌های صنایع توسط پلاسما اسپارک می‌باشد.

روش بررسی: در این پژوهش، میزان رنگ‌زدایی و تخریب محلول متیل اورانژ با استفاده از روش تخلیه الکتریکی پلاسمایی در سطح مشترک آب-گاز در تاریخ مهر سال ۹۹ مورد بررسی قرار گرفت. دستگاه تخلیه الکتریکی استفاده شده در کار حاضر از نوع جرقه با ساختار الکترودی سوزن-صفحه، ولتاژ موثر ۱-۱۲ KV و فرکانس ثابت ۱۳ KHz می‌باشد.

یافته‌ها: نتایج نشان می‌دهد که رنگ‌زدایی و تخریب محلول رنگی متیل اورانژ در سطح مشترک آب-گاز هوا آغاز می‌شود که این می‌تواند ناشی از تابش اشعه فرا بنفش و تولید رادیکال OH و گونه بسیار واکنش‌پذیر H₂O₂ در سطح مشترک آب-گاز هوا باشد. اثرات پارامترهای دستگاه تخلیه از جمله ولتاژ اعمالی، فاصله بین الکترودها، زمان تیمار و همچنین اثرات شیمیایی محلول مانند غلظت ماده رنگی تأثیر به‌سزایی در میزان رنگ‌زدایی دارد. نتایج نشان داد که با افزایش ولتاژ و افزایش زمان تیمار میزان رنگ‌زدایی افزایش یافته، و همچنین با ثابت نگه داشتن توان الکتریکی دستگاه میزان رنگ‌زدایی با افزایش غلظت کاهش می‌یابد. با انتخاب فاصله بین الکترودها به اندازه ۲ cm ما شاهد بیش‌ترین میزان رنگ‌زدایی در محلول بودیم.

بحث و نتیجه‌گیری: نتایج حاکی از آن است که در این راکتور pH اولیه تأثیر قابل‌توجهی بر میزان رنگ‌زدایی ندارد. همچنین بیش‌ترین میزان رنگ‌زدایی به مقدار ۹۹/۸ درصد در غلظت ۳۰ ppm، ولتاژ موثر ۱۰ KV، فاصله الکترودی ۲cm، pH برابر ۳ و زمان ۳۰ دقیقه رخ داده است.

واژه‌های کلیدی: پلاسما سرد فشار اتمسفری، رنگ‌زدایی، تخلیه الکتریکی، مشخصات الکتریکی.

۱- کارشناس ارشد فیزیک پلاسما، دانشکده فیزیک و مهندسی هسته‌ای، دانشگاه صنعتی شاهرود، سمنان، ایران. * (مسئول مکاتبات)

۲- استادیار فیزیک پلاسما، دانشکده فیزیک و مهندسی هسته‌ای، دانشگاه صنعتی شاهرود، سمنان، ایران.

۳- استاد شیمی تجزیه، دانشکده شیمی، دانشگاه صنعتی شاهرود، سمنان، ایران.

Degradation rate of Methyl Orange organic dye by high voltage spark plasma

Faezeh Rahimi ^{1*}

Rahimifaezeh009@gmail.com

Mehdi Momeni ²

Mansour Arab Chamjangali ³

Admission Date: December 10, 2021

Date Received: April 21, 2021

Abstract

Background and Objective: One of the most important problems of modern society is water pollution. Among these pollutants are organic dyes pollutant in industrial factories effluent, which the removal them is very important. The purpose of this study is to provide a solution to eliminate the methyl orange organic dye in industrial factories wastewater by Spark plasma.

Material and Methodology: In this study, the decolorization and degradation of methyl orange solution were investigated by electrical discharge plasma method at the water-gas interface. The electrical discharge device used in the present work is spark type plasma with needle-plate electrode structure, with effective voltage 1-12 KV and constant frequency 13 KHz.

Findings: The results show that decolorization and degradation of methyl orange dye solution begins at the air-gas-air interface, which can be due to ultraviolet radiation and production of OH radical and highly reactive species H₂O₂ at the air-gas interface. The effects of the discharge device parameters such as the applied voltage, electrode gap, treatment time and also chemical effects of the solution such as the concentration of the dye have a significant role on decolorization. The results showed that with increasing voltage and increasing treatment time, the amount of decolorization increases, and also by keep the electrical power of the device constant, the amount of decolorization decreases with increasing concentration. Selecting a distance of 2 cm between the electrodes, the highest amounts of decolorization in solution have been observed.

Discussion and Conclusion: In this reactor, the initial pH has no significant effect on decolorization efficiency. Also, the highest decolorization rate of 99.8% occurred at a concentration of 30 ppm, effective voltage 10 KV, electrode gap of 2 cm, initial pH = 3 and in 30 minutes treatment time.

Keywords: Atmospheric pressure plasma, decoloration, electrical discharge, electrical characteristics.

1- MSc of plasma physics, faculty of physics and nuclear engineering, Shahroud University of Technology, Semnan, Iran. **(Corresponding Author)*

2- Assistant Professor of plasma physics, faculty of physics and nuclear engineering, Shahroud University of Technology, Semnan, Iran.

3- Professor of analytical chemistry, chemistry faculty, Shahroud University of Technology, Semnan, Iran.

مقدمه

یکی از معضلات مهم جهان امروز آلودگی فاضلاب‌های صنعتی، کشاورزی و شهری می‌باشد که از بین بردن و تصفیه این آلودگی‌ها و پسماندهای ناشی از آنها از اهمیت بالایی برخوردار است. رنگ‌های آلی موجود در فاضلاب‌های صنعت نساجی یکی از این آلودگی‌ها می‌باشد که به دلیل داشتن حلقه‌های آروماتیک در ساختارشان بسیار سمی، سرطان‌زا و زیست تخریب ناپذیر هستند. برای تخریب رنگ‌های محلول از روش‌های متفاوتی از جمله جذب فیزیکی، اسمز معکوس، درمان زیستی و اکسیداسیون پیشرفته می‌توان استفاده کرد (۳-۱)

اکسیداسیون پیشرفته اولین بار به‌عنوان فرآیندی که می‌تواند مقدار زیادی رادیکال هیدروکسیل برای تصفیه آب تولید کند توسط گلتر و همکاران در سال ۱۹۸۷ کشف شد. این فرآیند خود نیز شامل انواع متفاوتی است از جمله فرآیند فنتون و فوتو فنتون، ازونیزه کردن، فوتوکاتالیز، تخلیه پلاسما و یا ترکیبی از این روش‌ها می‌باشد. دلیل انتخاب تکنولوژی پلاسما سرد از میان بقیه فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته عدم نیاز آن به ترکیبات شیمیایی اضافه و بهینه بودن انرژی مورد نیاز آن است. از مهم‌ترین کاربردهای پلاسما سرد اصلاح سطوح، استریلیزاسیون، غیرفعال کردن میکرو ارگانیسم‌ها و تصفیه آب می‌باشد (۴،۵). همچنین از روشهای تولید پلاسما سرد می‌توان به تخلیه تابان، کرونا، قوس، جرقه، سد دی‌الکتریک و جت پلاسما اشاره کرد که در این بین تخلیه جرقه نسبت به بقیه روش‌های تولید پلاسما جریان عبوری بیشتری دارد که این خود باعث افزایش میزان یونیزاسیون و در نتیجه افزایش تولید گونه‌های اکسید کننده در نزدیکی آب می‌شود. مزیت دیگر این تخلیه پایایی آن می‌باشد که باعث شده تا کارایی بهتری نسبت به بقیه روش‌ها داشته باشد (۵) از میان این روش‌ها ما روش اکسیداسیون پیشرفته را برگزیدیم چون بقیه روش‌ها یا هزینه‌ی بالایی دارند یا آلاینده ثانویه تولید می‌کنند و یا بازده آنها بسیار کم است (۲،۶)

روش تکنولوژی پلاسما سرد به‌عنوان روشی که می‌تواند ساختارهای زیست تخریب ناپذیر رنگ‌های آلی را از بین ببرد و قدرت اکسید کنندگی بسار بالایی دارد معرفی شده است (۵). در طی این فرایند مولکول‌های بخار آب یونیزه شده در نزدیکی آند با یکدیگر برخورد کرده و از طریق واکنش انتقال بار شکسته می‌شوند و رادیکال OH و گاه‌ا تم H را تولید می‌کنند. از سوی دیگر در سطح مشترک مایع و گاز، H_2O^+ گازی که در اطراف آند تولید می‌شود با بمباران کردن مولکول H_2O موجب تبدیل آن به H_2 ، H_2O_2 و O_2 می‌شود. این رادیکالها و گونه‌ها، اشعه ماورا بنفش، امواج ضربه و الکترون‌های پرانرژی تولید شده مولکول‌های O_3 و H_2O_2 که اکسنده بسیار قوی هستند را تولید می‌کنند این مولکول‌ها به ساختار رنگ حمله کرده و آن را تخریب می‌کنند (۷). هرکدام از این فرآیندها می‌تواند طی یک تخلیه الکتریکی فشار اتمسفری اتفاق بیافتد که در تخلیه جرقه همه این فرآیندها به طور همزمان رخ می‌دهند که از دلایل انتخاب این نوع نوع تخلیه الکتریکی در این مقاله نیز می‌باشد. از مهم‌ترین خصوصیات اکسیداسیون پیشرفته نداشتن آلاینده ثانویه است بطوری که در این تکنولوژی با تبدیل آلاینده‌های رنگی به H_2O و CO_2 به‌عنوان یک تکنولوژی سبز و سازگار با محیط زیست شناخته می‌شود (۸).

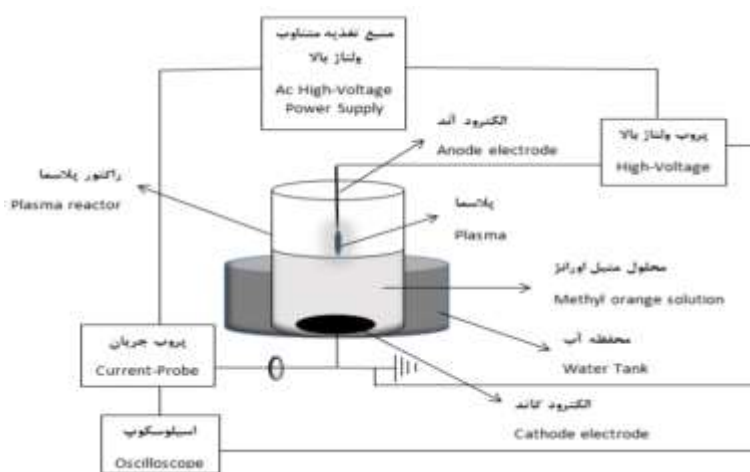
راکتوری که برای تولید پلاسما طراحی کردیم از دو الکترود سوزن - صفحه تشکیل شده است که الکترود صفحه ای در داخل آب و الکترود سوزنی در بالا و نزدیک سطح آب قرار دارد. از دلایل مهم انتخاب این هندسه ایجاد میدان الکتریکی در اطراف الکترود سوزنی می‌باشد که ولتاژ شکست را کاهش داده و در نتیجه در ولتاژهای پایین تر تخلیه شکل می‌گیرد (۸). همچنین به دلیل وجود رادیکال‌ها با طول عمر بسیار کوتاه فاصله آند تا سطح آب در محدوده چند میلی‌متر در نظر گرفته می‌شود تا بتوانند وارد آب شده و با مولکول‌های آب و ترکیبات آلی واکنش دهند (۹). علاوه بر این اگر آند داخل آب قرار می‌گرفت بخاطر مقاومت زیاد آب ولتاژ شکست افزایش می‌یافت، همچنین طبق گزارش‌های تأیید شده (۵، ۱۰)، میزان

حذف این آلاینده از جمله زمان تیمار توسط پلاسما، غلظت و pH اولیه، ولتاژ موثر و فاصله بین الکترودها نیز مطالعه شد.

مواد و روش

۱- چیدمان آزمایشگاهی

تجهیزات آزمایشگاهی استفاده شده در این تحقیق برای تخریب و رنگ زدایی محلول متیل اورانژ در شکل ۱ نمایش داده شده است.



شکل ۱- ستاپ آزمایشگاهی

Figure1. Experimental setup

کردیم. همه آزمایشات در فشار اتمسفر و با کاری هوا انجام شده است.

در هر مرتبه نمونه برداری سطح محلول به میزان $1/1$ mm پایین می‌آید که برای ثابت نگه داشتن توان سیستم و پارامترهای الکتریکی ناگزیر فاصله بین الکترود سوزنی و صفحه‌ای به همان مقدار کاهش می‌یابد. پارامترهای الکتریکی از جمله ولتاژ با اتصال پروب ولتاژ بالا (Tektronix P6015A) به‌طور موازی در مدار اندازه‌گیری می‌شود. همچنین با قرار دادن پروب جریان مدل (PINTEX PA-677) در مسیر الکترود زمین به‌طوری که سیم الکترود از میان حلقه عبور کند جریان تخلیه الکتریکی اندازه گرفته شد، به اینگونه که با عبور جریان از یک هادی میدان شار الکترومغناطیسی در اطراف آن ایجاد می‌شود. پروب های جریان نسبت به شدت میدان حساس

بازده انرژی به فازی که در آن تخلیه صورت می‌گیرد بستگی دارد و بنابراین اگر گونه های واکنشی در فاز گازی تشکیل و سپس وارد مایع شوند بازده انرژی سیستم می‌تواند بیشتر شود. در پژوهش حاضر تلاش کردیم با انتخاب نوع کارآمد تر و بهینه تری از تخلیه الکتریکی و هندسه الکترود به حذف و تخریب این رنگ بپردازیم.

در این مقاله میزان حذف و تخریب ماده آلی متیل اورنژ به عنوان آلاینده رنگی توسط تخلیه الکتریکی جرقه مورد بحث و بررسی قرار گرفت و در همین راستا پارامترهای موثر بر میزان

محلول مورد نظر در یک ظرفی از جنس پیرکس به قطر 66 mm نگه‌داری می‌شود. برای خنک نگه داشتن محلول و جلوگیری از افزایش دمای ظرف پیرکس از یک مخزن آب سرد پلاستیکی که در درون ظرف پیرکس قرار دارد استفاده شده است. راکتور از دو الکترود تشکیل شده است که الکترود صفحه ای از جنس مس به ضخامت 5 mm و قطر 43 mm در پایین ظرف تعبیه شده و دیگری الکترود سوزنی از جنس مس با شعاع انحنای 0.2 mm که در بالای راکتور و در فاصله ثابت 10 mm از سطح محلول و 20 mm از الکترود صفحه‌ای قرار داده شد. ظرف حاوی محلول، الکترود صفحه ای (کاتد) و الکترود سوزنی (آند) هر سه هم مرکز می‌باشند. همچنین به منظور تولید پلاسما از منبع تغذیه ولتاژ بالا AC با ولتاژ موثر قابل تغییر بین 12 KV - 1 و فرکانس ثابت 13 KHz استفاده

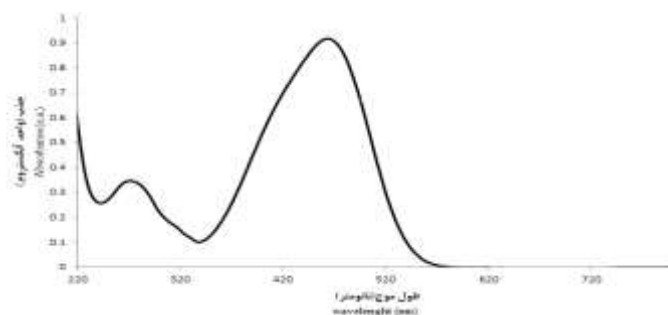
Methrome استفاده کردیم. همه مواد شیمیایی مورد استفاده در این مقاله از شرکت مرک تهیه شده اند.

۳- آنالیزها

نمونه برداری هنگام انجام آزمایش در زمان های مختلف انجام شده است و توسط اسپکتروفوتومتر فرابنفش-مرئی Shimadzu uv-1800 مورد آنالیز قرار گرفتند. طبق قانون بیر-لامبرت میزان جذب طول موج ماکسیمم هر ماده با غلظت آن رابطه مستقیم دارد، بیشینه طول موج متیل اورانژ استفاده شده برابر با ۴۶۰nm می باشد که در شکل ۲ نشان داده شده است و برای به دست آوردن میزان رنگ زدایی از رابطه زیر استفاده کردیم:

$$Decoloration\% = \left(\frac{A_0 - A}{A_0} \right) \times 100$$

که A_0 میزان جذب اولیه و A میزان جذب بعد از تیمار پلاسما می باشد (۱۱).



شکل ۲- طیف جذبی فرابنفش-مرئی متیل اورانژ قبل از درمان پلاسما

Figure 2. UV-vis absorption spectra of methyl orange before plasma treatment

نتایج و بحث

۱- مشخصات ولتاژ-جریان منبع تولید پلاسما

شکل موج ولتاژ-جریان تخلیه الکتریکی در حین انجام آزمایشات در شکل ۳ آمده است. در ساختار صفحه-سوزن با اعمال ولتاژ به سیستم میدان الکتریکی اطراف الکترود سوزنی شکل می گیرد و با افزایش ولتاژ پلاسمای شکل گرفته به سمت الکترود صفحه ای پیش می رود. زمانی که فاز شکست اتفاق می افتد یک بار غیر خطی اضافی به مدار پلاسما وارد می شود، بعد از فاز شکست تخلیه الکتریکی اتفاق می افتد، مشاهده شد

بوده و آن را به ولتاژ تبدیل می کنند که می توان مقدار آن را بر روی اسپلوسکوپ مشاهده کرد. دستگاه مورد استفاده قادر است با دو دقت 5.0 mV/A و 50.0 mV/A جریان را اندازه گیری کند که در این پژوهش با توجه به محدوده جریان از دقت 5.0 mV/A استفاده شده است. برای مشاهده و ضبط داده های جریان و ولتاژ از اسپلوسکوپ دیجیتال (Tektronix SDS1204CFL) استفاده شد.

۲- مواد و محلول

محلول مورد نظر با حل کردن مقدار لازم متیل اورانژ با آب دوبار تقطیر آماده شد که غلظت اولیه و pH محلول به ترتیب 50 ppm ، 3 می باشد. برای تنظیم pH از NaOH و HCl با غلظت 0.1 مولار استفاده شد. همچنین برای تنظیم رسانندگی محلول KCl 0.1 مولار مورد استفاده قرار گرفت. حجم محلول در هر آزمایش 50 mL می باشد و برای داشتن محلول یکنواخت ماده مورد نظر حین تیمار پلاسما مرتباً همزده شد، همچنین برای اندازه گیری میزان pH نیز از pH متر

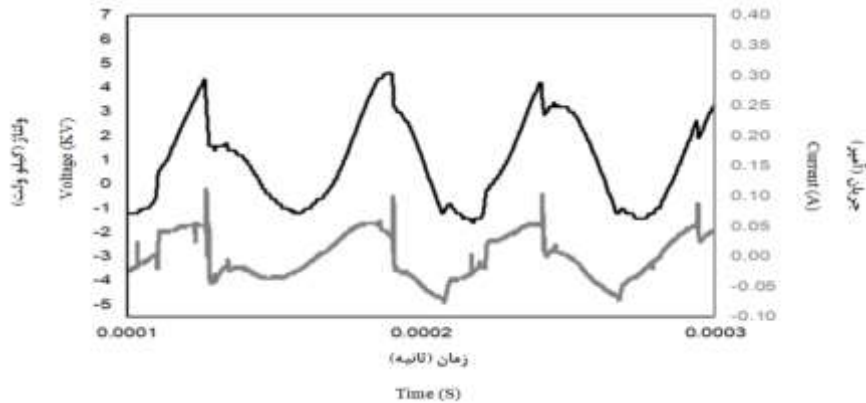
و برای بدست آوردن میزان تخریب این ماده از رابطه زیر استفاده کردیم:

$$Degradation\% = \left(\frac{TOC_0 - TOC}{TOC_0} \right) \times 100$$

که TOC_0 میزان ترکیبات آلی موجود در محلول اولیه و TOC مقدار ترکیبات آلی موجود در محلول پس از تیمار پلاسما است.

بین دو موج ولتاژ و جریان نشانه وابستگی رسانندگی محلول به دمای آن و ماهیت خازنی سیستم می‌باشد. تصویر پلاسمای شکل گرفته در سطح مشترک گاز-مایع حاصل از این تخلیه در شکل ۴ آمده است.

که شکل موج جریان پلازما در هر نیم سیکل یک قله تیز دارد که نشانه همگن بودن پلازما و وجود تخلیه تابان در فشار اتمسفری بین دو الکتروود است. علاوه بر این یکسری موجک‌های کوچک نیز در موج جریان دیده شد که نشانه حضور تخلیه های فیلمانی در سیستم می‌باشد. اختلاف فاز ایجاد شده



شکل ۳- نمودار ولتاژ و جریان

Figure 3. voltage and current waveforms



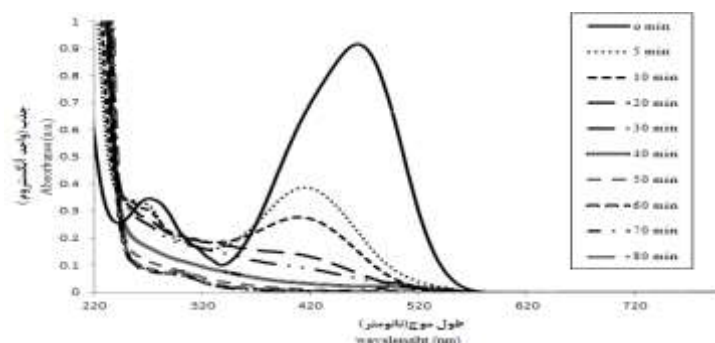
شکل ۴- پلاسمای شکل گرفته در سطح مشترک گاز_مایع

Figure 4. formed plasma at gas-liquid interface

تبدیل می‌شود. با توجه به شکل هندسی الکتروود و جریان ثبت شده می‌توان نتیجه گرفت پلاسمای تشکیل شده از نوع اسپارک است با افزایش دما اگر محلول نتواند گرمای تولید شده را از بین ببرد رسانندگی آن افزایش می‌یابد و اختلاف فاز بین دو موج ولتاژ و جریان شکل می‌گیرد که باعث می‌شود استریمرها با یک تاخیر زمانی نسبت به زمان اعمال ولتاژ شکل گیرند. مشخصات

می‌توان گفت تخلیه اسپارک نوع خاصی از کرونا می‌باشد و زمانی اتفاق می‌افتد که میدان در نزدیکی یک الکتروود از میدان در فاصله بین دو الکتروود قوی‌تر باشد که انحنای زیاد یک الکتروود گردادیان پتانسیل لازم برای تولید پلازما را ایجاد می‌کند. تخلیه اسپارک به‌ازای فواصل الکتروودی کم‌تر یا ولتاژ بالاتر رخ می‌دهد. رنج جریان عبوری از تخلیه کرونا در حدود 10^{-6} آمپر می‌باشد که با افزایش آن پلازما از کرونا به اسپارک

۶KV انتخاب گردید و از ۰ تا ۸۰ دقیقه، هر ۱۰ دقیقه نمونه برداری صورت گرفت، همچنین میزان جذب محلول توسط طیف سنجی مرئی-فرابنفش در محدوده طول موج بین ۲۰۰ تا ۸۰۰ آشکار سازی شد. در شکل ۵ مشاهده می شود که با گذشت زمان ارتفاع هر دو قله طیفی متیل اورانژ کاهش می یابد و با گذشت ۵۰ دقیقه از تابش پلاسما محلول به صورت تقریباً بی رنگ در می آید.



شکل ۴- طیف مرئی-فرابنفش متیل اورانژ قبل و بعد از درمان پلاسما در زمان های ۵ تا ۸۰ دقیقه

Figure 5. UV-vis spectra of methyl orange, treated and untreated in plasma for 5 to 80 min

افزایش زمان تخلیه کاهش می یابد. اکثر ترکیبات آلی تخریب شده به گاز CO_2 تبدیل می شود که از محلول آبی خارج می شود. برای اندازه گیری مقدار کل ترکیبات آلی در محلول از آنالیز TOC استفاده شد که نتایج آن در شکل ۷ آمده است. مشاهده شد که بعد از گذشت ۸۰ دقیقه از زمان تیمار پلاسما میزان تخریب به ۸۳/۵۵ درصد رسیده است.

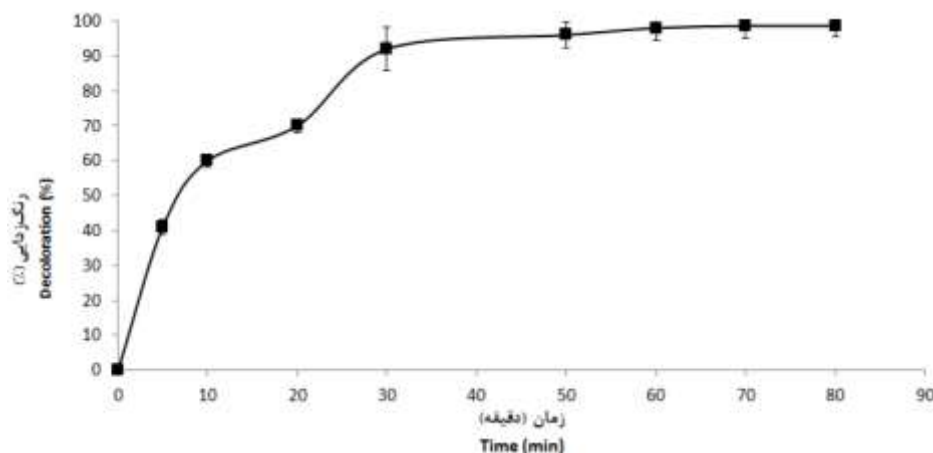
الکتریکی تخلیه به پارامترهایی از جمله ولتاژ و فرکانس تخلیه و فاصله بین الکترودها وابسته است. تخلیه الکتریکی پایا در ولتاژ موثر ۶ KV و فاصله بین الکترود ۲cm در این سیستم مشاهده شد.

۲- اثر پلاسمای جرقه بر روی محلول متیل اورانژ

۵۰ میلی لیتر از محلول متیل اورانژ با غلظت ۵۰ppm در pH برابر ۳ و رسانندگی $700 \mu S/cm$ به عنوان نمونه ای از فاضلاب صنعتی رنگی آماده شد. ولتاژ موثر اعمالی بر روی (۱±KV)

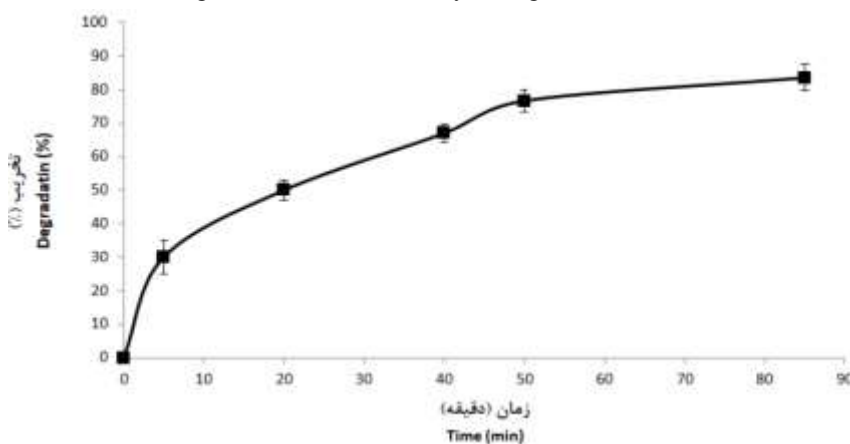
شکل ۶ میزان رنگ زدایی محلول متیل اورانژ در زمان های مختلف را نشان می دهد. همان طور که مشاهده می شود با افزایش زمان تابش پلاسما میزان رنگ زدایی آن نیز افزایش می یابد. همچنین میزان رنگ زدایی در ۵ دقیقه اول بسیار سریع می باشد و به ۶۰٪ می رسد ولی در ادامه شیب نمودار کاهش می یابد و با افزایش زمان تا ۸۰ دقیقه میزان رنگ زدایی به ۹۸/۶۴٪ می رسد.

میزان تخریب یک ماده آلی را می توان با مقدار کل ترکیبات آلی (TOC) آن ماده مرتبط دانست. مقدار کل ترکیبات آلی با



شکل ۵- میزان رنگ زدایی متیل اورانژ

Figure 6. Amount of methyl orange decoloration



شکل ۶- میزان تخریب متیل اورانژ

Figure 7. Amount of methyl orange degradation

۳- مکانیزم تخریب

نیترژن حمله کند واکنش از مسیر دی متیل زایی و اگر به حلقه آروماتیک حمله کند از مسیر تخریب ساختار مزدوج پیش می‌رود. با توجه به انرژی کم پیوند C-N در مولکول متیل اورانژ رادیکال H حاصل از تخلیه الکتریکی به راحتی این پیوند را می‌شکنند. در حین فرآیند تخلیه به دلیل کم شدن میزان pH پیوند N=N نیز به N-N تبدیل می‌شود و چون پیوند جدید انرژی کمتری نسبت به قبلی دارد شکستن آن آسان‌تر است. مرحله بعد درمورد گروه بنزن تنها می‌باشد. در این مرحله غلظت گونه‌های رادیکالی موجود در فاز مایع زیاد می‌شود، بنابراین حلقه بنزن و زنجیره شاخه‌ای تحت حملات مداوم این گونه‌های فعال از هم می‌پاشند و در نهایت اگر رنگ‌زدایی و

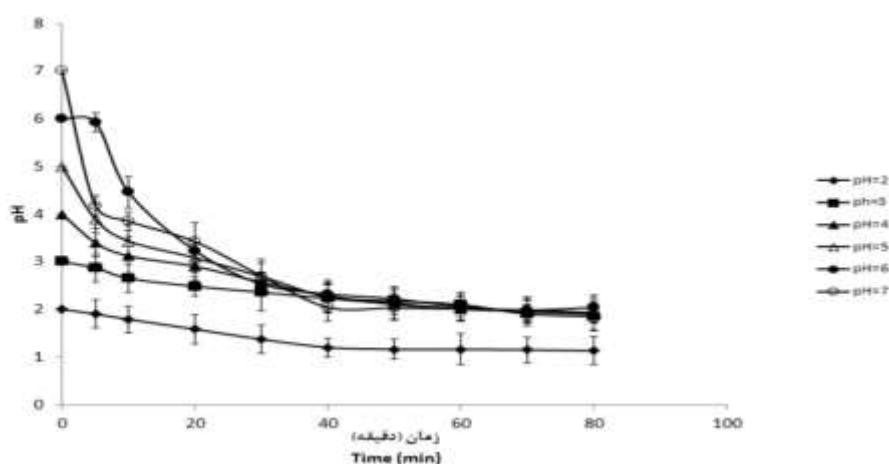
رادیکال هیدروکسیل و الکترون‌ها با انرژی بالا مهم‌ترین گونه‌های فعال در فرآیند تخریب متیل اورانژ $(\text{CH}_3\text{-N}(\text{CH}_3)\text{C}_6\text{H}_5)$ توسط تخلیه الکتریکی هستند. در راستای تخریب این مولکول واکنش‌های شیمیایی رخ می‌دهد که این واکنش‌ها شامل شکستن پیوندهای قدیمی و تشکیل پیوندهای جدید می‌باشند. واکنش شکستن پیوند از دو مسیر دی متیلاسیون (جدا شدن گروه متیل) و تخریب ساختار مزدوج (شکست پیوند $\text{NH}=\text{HN}$) انجام می‌شود، که مسیر اول منجر به کاهش شدت در قله 469 nm می‌شود که همان میزان رنگ‌زداییست و حذف از طریق تخریب ساختار مزدوج باعث کاهش شدت جذب ماده در قله 277 nm می‌شود که به آن تخریب ماده نیز می‌گویند. اگر رادیکال هیدروکسیل به

pH تغییر می‌کند و بعد از ۳۰ دقیقه از زمان شروع تاباندن پلاسما تمام محلول‌ها به pH تقریباً یکسانی می‌رسند و با ادامه فرآیند تغییرات آن‌ها تقریباً باهم برابر است. فقط محلول ساخته شده در pH برابر ۲ کمی با بقیه متفاوت است. شکل ۹ نیز میزان رنگ‌زدایی در pH های مختلف نمایش می‌دهد، همانطور که گفته شد تغییر pH اولیه چندانی در میزان رنگ‌زدایی ندارد و بنابراین کارایی آن در همه pH ها از مزیت‌های این راکتور به حساب می‌آید.

تخریب به‌طور کامل انجام شود فقط آب و دی اکسید کربن در راکتور باقی می‌ماند (۱۲، ۱۳، ۱۴).

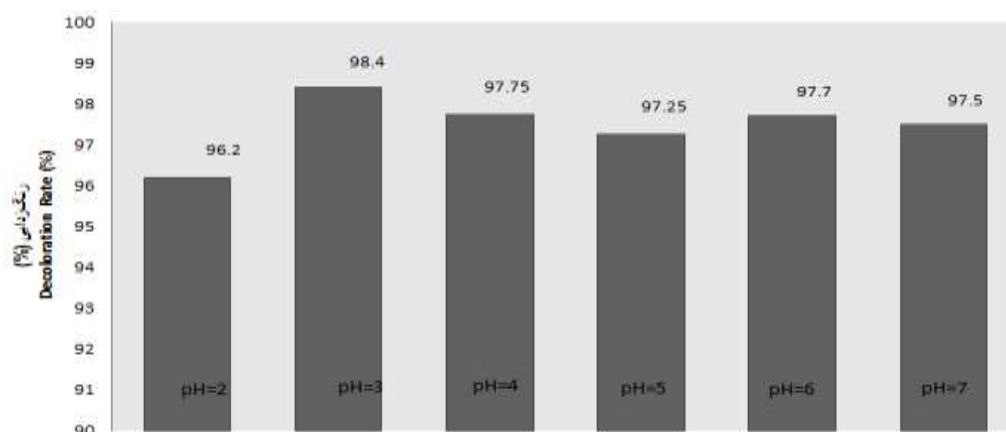
۴- اثر pH بر میزان رنگ‌زدایی

یافته‌های حاصل از آزمایشات نشان می‌دهد اعمال تغییرات در میزان pH اولیه، تاثیری بر نتیجه کار ندارد، زیرا میزان pH محلول در طول زمان درمان پلاسما تغییر کرده و بدون در نظر گرفتن مقدار اولیه آن با گذشت ۳۰ دقیقه از تابش پلاسما pH محلول تقریباً به ۲ می‌رسد. در شکل ۸ نمودار تغییرات pH در زمان‌های مختلف آمده است که نشان می‌دهد با گذشت زمان



شکل ۷- نمودار میزان تغییرات pH بر حسب زمان برای محلول متیل اورانژ تحت درمان پلاسما در pH های مختلف

Figure 8. Diagram of pH changes over time for plasma-treated methyl orange solution at different pHs



شکل ۸- میزان رنگ‌زدایی در pH های مختلف

Figure 9. Decoloration rate at different pHs

۵- اثر ولتاژ بر میزان رنگ‌زدایی

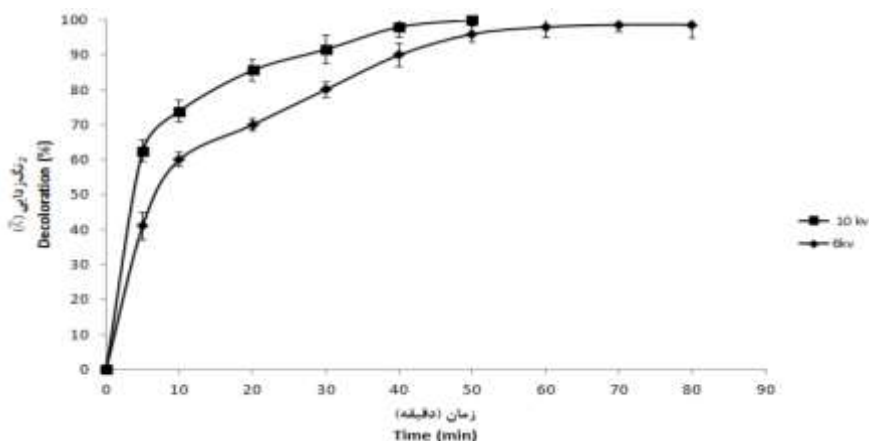
می‌شود. در اینجا با انجام آزمایش در دو ولتاژ موثر ۶ و ۱۰ کیلو ولت مشاهده شد که با افزایش زمان میزان رنگ‌زدایی افزایش و

یکی از پارامترهای مهم در تخلیه الکتریکی ولتاژ اعمالی می‌باشد زیرا مقدار توان ورودی به سیستم توسط آن تعیین

انرژی بیشتری دریافت کرده، میزان یونیزاسیون افزایش یافته و شدت پلاسما در کانال تخلیه در مجاورت محلول زیاد می‌شود، در نتیجه گونه‌های فعال بیشتری تولید شده و میزان رنگ‌زدایی نیز افزایش یافته است (۱۵،۱۶). در شکل ۱۰ میزان رنگ‌زدایی در ولتاژهای مختلف نشان داده شده است.

زمان آن نیز کاهش یافت. میزان رنگ‌زدایی در ولتاژ پیک تا پیک ۶ کیلو ولت در مدت زمان ۸۰ دقیقه به ۹۸ درصد رسیده است و در ولتاژ پیک تا پیک ۱۰ کیلو ولت در زمان ۵۰ دقیقه میزان رنگ‌زدایی به ۹۹/۶ درصد رسید.

با افزایش ولتاژ، میدان الکتریکی در نزدیکی الکتروود سوزنی افزایش می‌یابد، در آن قسمت الکترون‌های موجود در میدان



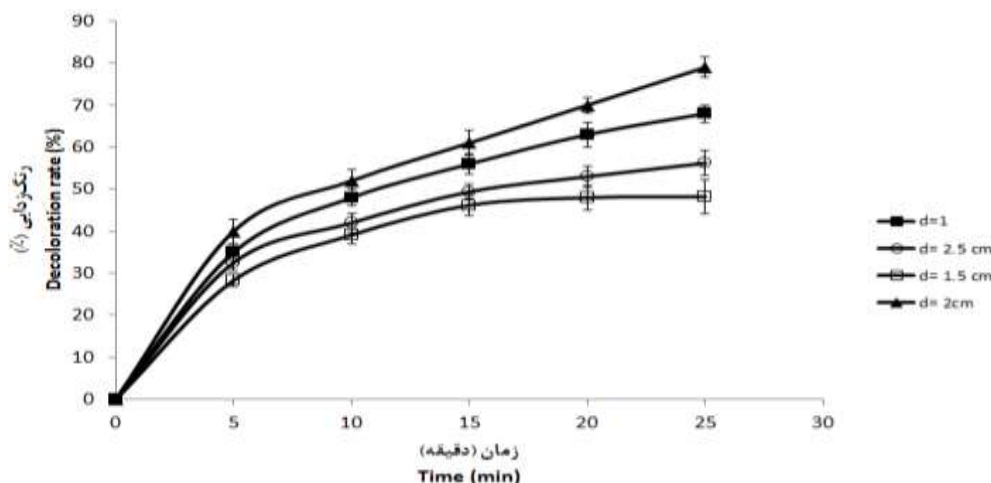
شکل ۹- میزان رنگ‌زدایی بر حسب زمان در ولتاژ موثر ۶ KV و ۱۰ KV

Figure 10. Decoloration rate over time at 6 KV and 10 KV effective voltages

۶- اثر فاصله بین دو الکتروود

صرف تولید پلاسما شده و انرژی کمتری وارد محلول می‌شود، در پی آن میزان حذف رنگ نیز کاهش می‌یابد، ولی اگر فاصله بین دو الکتروود خیلی کم باشد اندازه کانال پلاسمای تشکیل شده نیز کوتاه می‌شود و گونه‌های واکنش‌پذیر کمتری تولید می‌شود، در نتیجه راندمان حذف رنگ نیز کاهش می‌یابد. پس یافتن یک فاصله مطلوب بسیار مهم است. در این جا فاصله بهینه بین دو الکتروود ۲ cm به دست آمد.

هر چه فاصله بین دو الکتروود کمتر باشد، به دلیل کاهش مقاومت هوا کانال پلاسما راحت‌تر تشکیل می‌شود و انرژی بیشتری در محلول ذخیره می‌شود که منجر به بعضی اثرات فوتوشیمیایی و کانال پلاسما می‌شود، علاوه بر آن بعضی از رادیکال‌ها با طول عمر کم راحت‌تر خود را به سطح محلول می‌رسانند و با محلول وارد واکنش می‌شوند که در نتیجه باعث افزایش راندمان حذف رنگ می‌شود، پس با افزایش فاصله، مقدار بیشتری از انرژی



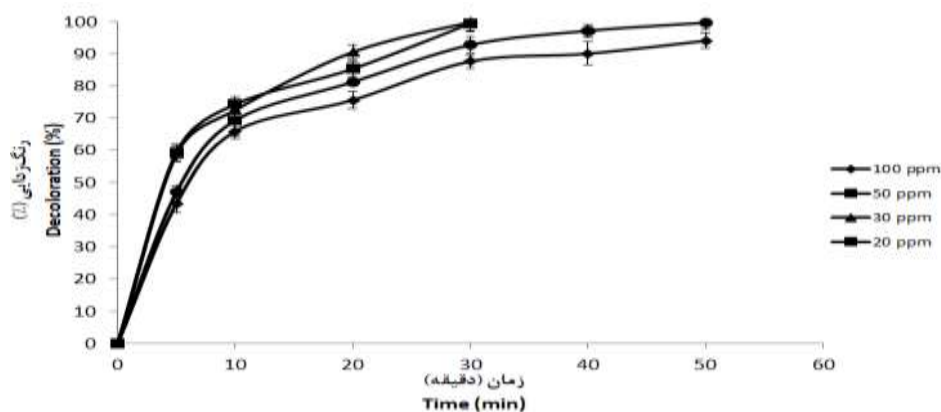
شکل ۱۰- میزان رنگ‌زدایی بر حسب زمان در فواصل الکترودی مختلف

Figure 11. Decolorization rate over time at different electrodes gap

۷- اثر غلظت بر میزان رنگ‌زدایی

می‌باید و زمان لازم برای رنگ‌زدایی نیز افزایش می‌یابد، زیرا هرچه غلظت ماده رنگی بیشتر باشد مقدار ترکیبات موجود در محلول بیشتر است و گونه‌های واکنشی بیشتری برای تخریب ساختار آن‌ها لازم است (۱۲). شکل ۱۲ میزان رنگ‌زدایی در غلظت‌های مختلف را نمایش می‌دهد.

در این پژوهش با سنتز محلول‌هایی با غلظت‌های متفاوت اثر غلظت بر میزان رنگ‌زدایی مطالعه شد که نتایج آن در شکل ۸ آمده است. مقدار رنگ‌زدایی در غلظت ۲۰ ppm، ۳۰ ppm، ۵۰ ppm و ۱۰۰ ppm در با ولتاژ موثر ۱۰ KV به ترتیب ۹۹٫۴٪، ۹۹٫۸٪، ۹۹٫۶٪، ۹۴٪ می‌باشد. نتایج به‌دست آمده نشان می‌دهد که با افزایش غلظت، میزان رنگ‌زدایی کاهش



شکل ۱۱- میزان رنگ‌زدایی بر حسب زمان در غلظت‌های مختلف محلول متیل اورانژ

Figure 12. Decolorization rate over time at different methyl orange solution concentrations

نتیجه‌گیری

میزان رنگ‌زدایی حاصل شد. بررسی‌ها نشان می‌دهد که فاصله بین دو الکترود بر میزان رنگ‌زدایی بسیار موثر است و بهترین فاصله که در آن رنگ‌زدایی به بیشترین مقدار ممکن می‌رسد cm^2 می‌باشد، علاوه بر این زمان لازم برای تابش پلاسما به

در این پژوهش میزان حذف و تخریب رنگ آلی متیل اورانژ با استفاده از پلاسمای تخلیه الکتریکی از نوع جرقه مورد بررسی قرار گرفت. با بدست آوردن مقادیر بهینه مربوط به پارامترهای فیزیکی سیستم تخلیه و مقادیر شیمیایی محلول بیشترین

- non-thermal plasma treatment. *Water research*, 45(11), 3407-3416.
5. Iervolino, G., Vaiano, V., & Palma, V. (2019). Enhanced removal of water pollutants by dielectric barrier discharge non-thermal plasma reactor. *Separation and Purification Technology*, 215, 155-162.
 6. Huang, F., Chen, L., Wang, H., Feng, T., & Yan, Z. (2012). Degradation of methyl orange by atmospheric DBD plasma: Analysis of the degradation effects and degradation path. *Journal of Electrostatics*, 70(1), 43-47.
 7. Gao, J., Wang, X., Hu, Z., Deng, H., Hou, J., Lu, X., & Kang, J. (2003). Plasma degradation of dyes in water with contact glow discharge electrolysis. *Water research*, 37(2), 267-272.
 8. Ceccato, P. (2009). Filamentary plasma discharge inside water: initiation and propagation of a plasma in a dense medium (Doctoral dissertation, Ecole Polytechnique X).
 9. Sato, M., Tokutake, T., Ohshima, T., & Sugiarto, A. T. (2008). Aqueous phenol decomposition by pulsed discharges on the water surface. *IEEE Transactions on Industry Applications*, 44(5), 1397-1402.
 10. Wen, Y., Shen, C., Ni, Y., Tong, S., & Yu, F. (2012). Glow discharge plasma in water: a green approach to enhancing ability of chitosan for dye removal. *Journal of hazardous materials*, 201, 162-169.
 11. Irki, S., Ghernaout, D., & Naceur, M. W. (2017). Decolourization of methyl orange (MO) by electrocoagulation (EC) using iron electrodes under a magnetic field (MF). *Desalination and Water Treatment*, 79, 368-377.

سطح محلول که بر مقدار گونه‌های فعال تولید شده برای انجام فرآیند تخریب تاثیر مستقیم دارد مورد مطالعه قرار گرفت و مشاهده شد که با افزایش زمان میزان رنگ‌زدایی نیز افزایش یافته است. با بررسی اثر pH اولیه مشاهده شد که مقدار رنگ‌زدایی در این سیستم مستقل از pH اولیه است و مقدار آن در pH های متفاوت ثابت است. همچنین با افزایش ولتاژ که باعث افزایش توان تخلیه در اطراف الکترود سوزنی می‌شود تعداد گونه‌های فعال واکنشی افزایش می‌یابند و با انرژی بیشتری خود را به محلول رسانده و موجب تسریع فرآیند رنگ‌زدایی می‌شوند. اثر غلظت ماده رنگی بر میزان رنگ‌زدایی نیز مورد مطالعه قرار گرفت و نتایج نشان داد که با افزایش غلظت میزان رنگ‌زدایی در زمان‌های بیشتر به مقادیر بیشتری می‌رسد.

References

1. Huang, F., Chen, L., Wang, H., Feng, T., & Yan, Z. (2012). Degradation of methyl orange by atmospheric DBD plasma: Analysis of the degradation effects and degradation path. *Journal of Electrostatics*, 70(1), 43-47.
2. Rahimpour, M., Taghvaei, H., Zafarnak, S., Rahimpour, M. R., & Raeissi, S. (2019). Post-discharge DBD plasma treatment for degradation of organic dye in water: A comparison with different plasma operation methods. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 7(4), 103220.
3. Magureanu, M., Piroi, D., Gherendi, F., Mandache, N. B., & Parvulescu, V. (2008). Decomposition of methylene blue in water by corona discharges. *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 28(6), 677-688.
4. Magureanu, M., Piroi, D., Mandache, N. B., David, V., Medvedovici, A., Bradu, C., & Parvulescu, V. I. (2011). Degradation of antibiotics in water by

- decolorization of azo dye by bipolar pulsed barrier discharge in a three-phase discharge plasma reactor. *Journal of hazardous materials*. 2007 Apr 2;142(1-2):105-10.
16. Guo, H., Jiang, N., Wang, H., Lu, N., Shang, K., Li, J., & Wu, Y. (2019). Degradation of antibiotic chloramphenicol in water by pulsed discharge plasma combined with TiO₂/WO₃ composites: mechanism and degradation pathway. *Journal of hazardous materials*, 371, 666-676.
 12. Wang, B., Xu, M., Chi, C., Wang, C., & Meng, D. (2017). Degradation of methyl orange using dielectric barrier discharge water falling film reactor. *Journal of Advanced Oxidation Technologies*, 20(2).
 13. Matouqa, M.A.D., Tiwaryb, A., Alawinc, A., Othmanc, J. and Kloubc, N., Evaluation of a Pilot Saline Water Treatment Unit using a Solar-Thermal Concentrator with Zero Energy Cost for Arid Regions. *Water Productivity Journal (WPJ)* 1 (1). 85-92.
 14. Sivakumar, M.V., 2021. Climate change and water productivity. *Water Productivity Journal*, 1(3), pp.1-12.
 15. Zhang R, Zhang C, Cheng X, Wang L, Wu Y, Guan Z. Kinetics of