

بررسی کارایی فرایند سونوفتوکاتالیستی نانوذرات اکسید روی در حذف فرمالدهید از محلول‌های مایه

فهیمة تیموری^۱، محمد مهدی امین^۲

مقاله پژوهشی

چکیده

مقدمه: مطالعه حاضر با هدف بررسی میزان تجزیه پذیری فرمالدهید توسط فرایند سونوفتوکاتالیستی اکسید روی، با استفاده از یک رآکتور اکسیداسیون به حجم تقریبی ۲ لیتر انجام شد.

روش‌ها: این مطالعه از نوع بنیادی کاربردی بود و به صورت مقطعی انجام گردید. در طی چند مرحله آزمایش (۳۰ مرحله)، تأثیر متغیرهای مهم بهره‌برداری از جمله pH محلول (۸ تا ۸)، غلظت اولیه فرمالدهید (۱۰۰-۲۰ میلی گرم در لیتر)، دوز نانوذرات اکسید روی (۶۰-۱۰ میلی گرم در لیتر)، میزان قدرت امواج اولتراسونیک (۴۰-۱۵۰ وات) و زمان واکنش (۶۰-۱۰ دقیقه) بر روی میزان تجزیه فرمالدهید مورد بررسی قرار گرفت.

یافته‌ها: حداکثر میزان حذف فرمالدهید در شرایط مطلوب شامل دوز نانوذرات اکسید روی ۶۰ میلی گرم در لیتر، pH محلول برابر با ۸، قدرت امواج اولتراسونیک ۴۰ وات، غلظت اولیه فرمالدهید ۵۰ میلی گرم در لیتر و مدت زمان واکنش ۳۰ دقیقه بود. در این شرایط، کارایی حذف فرمالدهید حدود ۷۸ درصد به دست آمد.

نتیجه‌گیری: نتایج حاصل از مطالعه حاضر نشان داد که استفاده از روش سونوفتوکاتالیستی جهت تصفیه محلول‌های مایه حاوی غلظت کم فرمالدهید، مؤثر می‌باشد.

واژه‌های کلیدی: فرمالدهید، نانوذرات، فتوکاتالیست، اولتراسونیک، محلول مایه

ارجاع: تیموری فهیمة، امین محمد مهدی. بررسی کارایی فرایند سونوفتوکاتالیستی نانوذرات اکسید روی در حذف فرمالدهید از محلول‌های مایه. مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۳۹۵؛ ۱۲ (۳): ۳۶۴-۳۵۸

پذیرش مقاله: ۱۳۹۵/۴/۹

دریافت مقاله: ۱۳۹۴/۲/۱۵

فاضلاب، باعث تداخل در فعالیت باکتری‌ها و در نتیجه، شکست در عملیات بهره‌برداری این سیستم‌ها می‌شود (۷).

در میان ترکیبات سرطان‌زای طبقه‌بندی شده توسط EPA (Environmental Protection Agency)، فرمالدهید در رده ۲۵ قرار گرفته (۳) و بر اساس مطالعات انسانی انجام شده توسط آژانس بین‌المللی تحقیقات سرطان نیز این ترکیب در رده ترکیبات سرطان‌زای انسانی طبقه‌بندی شده است (۸، ۹). پساب‌های صنعتی، غلظت‌های مختلفی از فرمالدهید (۱۰۰۰-۱۰ میلی گرم در لیتر) را دارند (۱۰، ۱۱). بنابراین، ضروری به نظر می‌رسد که پساب این صنایع پیش از ورود به منابع آبی، تصفیه شوند (۶). به طور کلی، انتظار می‌رود که حداکثر غلظت فرمالدهید در آب آشامیدنی، کمتر از ۱۰۰ میکروگرم در لیتر باشد (۴). به منظور حذف فرمالدهید، از فرایندهای بیولوژیک استفاده می‌شود، اما استفاده از این روش‌ها برای حذف فرمالدهید به دلیل شیمیایی بودن این ترکیب و انطباق مورد نیاز، بیش از حد وقت‌گیر است. Oliveira و همکاران در مطالعه خود، میکروارگانیسم‌ها را به مدت یک سال در تماس با محیط حاوی ترکیب فنول قرار دادند و سپس با تزریق فرمالدهید به محیط مذکور، حذف بیولوژیک این ترکیب را بررسی نمودند (۱۲). استفاده از روش‌های بیولوژیک به ویژه برای پساب‌های دارای غلظت بالای فرمالدهید، دشوار است؛ چرا که این ماده می‌تواند با سلول‌های DNA واکنش دهد و باعث مرگ بسیاری از میکروارگانیسم‌ها شود (۱۳).

مقدمه

فرمالدهید گاز بی‌رنگی است و در دمای اتاق بوی مشخصی دارد. این ترکیب می‌تواند به طور دستی از متانول و به صورت مایع (فرمالین) و یا جامد (پارافرمالین) تولید شود (۱). فرمالدهید یکی از ترکیبات مهم مورد استفاده در صنایع شیمیایی برای ساخت انواع مختلفی از محصولات شامل پاک‌کننده‌های خانگی، رنگ‌ها، منسوجات، آفت‌کش‌ها و... می‌باشد (۲). همچنین، از آن می‌توان به عنوان یک ماده نگهدارنده قوی استفاده کرد؛ چرا که این ترکیب به عنوان آنتی‌اکسیدان عمل نموده، باعث دنا توره شدن پروتئین و مانع رشد میکروبی می‌شود (۳).

در سال ۱۹۹۰، ایالات متحده آمریکا و ژاپن بیشترین میزان تولید فرمالدهید را به خود اختصاص دادند و کشور کانادا در سال ۱۹۹۶، میزان مصرف داخلی حدود ۱۹۱ کیلو تن از این ترکیب را داشت (۴). در سال ۲۰۰۷ نیز حداکثر مصرف فرمالدهید به کشور چین تعلق داشت (۵). ورود پساب صنایع حاوی فرمالدهید به منابع آبی، یکی از عوامل تهدید کننده زندگی انسان و محیط زیست به شمار می‌رود. ورود فرمالدهید به اکوسیستم‌های آبی، سبب ایجاد اثرات منفی همچون تغییر در توازن بیولوژیکی محیط زیست می‌شود. تماس کوتاه مدت با فرمالدهید در آب آشامیدنی، باعث بروز اثراتی از قبیل تحریکات پوستی و آلرژی می‌گردد که بیشتر در اثر تماس با پوست اتفاق می‌افتد (۶). تخلیه مستقیم پساب حاوی این ترکیب سمی به سیستم‌های تصفیه بیولوژیکی

۱- دانشجوی دکتری، کمیته تحقیقات دانشجویی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران

۲- استاد، مرکز تحقیقات محیط زیست، پژوهشکده پیشگیری اولیه از بیماری‌های غیرواگیر و گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران

Email: amin@hlth.mui.ac.ir

نویسنده مسؤول: محمد مهدی امین

سدیم ۰/۱ نرمال استفاده شد (۲). مواد شیمیایی مورد نیاز از شرکت MERC با درجه خلوص بالا تهیه گردید.

جدول ۱. مشخصات فرمالدهید مورد استفاده در مطالعه

نام شیمیایی/ شرکت سازنده	فرمالین (MERC)
ساختار شیمیایی	CH ₂ O
حلالیت در آب	۴۰۰ گرم در مترمکعب
دانسیته	۱/۰۹ کیلوگرم در لیتر
نقطه ذوب	۹۲- درجه سانتیگراد
متانول	۹-۱۱ درصد

نانوذرات اکسید روی (به عنوان پودر) از شرکت NANOSAV (ایران) تهیه شد. درصد خلوص این ذرات بالای ۹۹ درصد و قطر آن‌ها ۵۰-۳۰ نانومتر بود. همچنین، در این بررسی دستگاه اولتراسونیک همونایزر (BANDELIN، آلمان) استفاده گردید. یک لامپ UV فشار قوی با طول موج ۲۵۴ نانومتر و شدت ۷/۳ وات بر مترمربع نیز مورد استفاده قرار گرفت. آزمایش‌ها در یک راکتور استوانه‌ای شکل پوشش داده شده با حجم مؤثر ۲ لیتر (طول تقریبی ۲۵ سانتی‌متر و قطر ۱۰ سانتی‌متر) انجام شد. لامپ UV مجهز به پوشش کوارتزی، در درون راکتور قرار داده شد. برای جلوگیری از گرمای بیش از حد تولید شده توسط لامپ، راکتور در یک محفظه آب خنک کننده قرار داده شد. پمپ دستگاه اولتراسونیک با فرکانس ۲۳ کیلوهرتز و حداکثر قدرت ۱۵۰ وات نیز در مقابل لامپ UV و درون راکتور قرار گرفت. به منظور فراهم نمودن مخلوطی یکنواخت، از یک همزن مغناطیسی نیز استفاده شد (۲۰).

جهت اندازه‌گیری مقدار باقی‌مانده فرمالدهید و درصد حذف آن، از روش اسپکتروفتومتری (DR-5000، مدل HACH) مطابق با روش ۸۱۱۰ رنگ‌سنجی با یک آشکارساز نور مرئی در طول موج ۶۳۰ نانومتر استفاده گردید (۲۱). لازم به ذکر است که نمونه‌برداری جهت انجام آزمایش‌ها، در طی فواصل زمانی معین و از درون محلول سوسپانسیون انجام می‌گرفت.

یافته‌ها

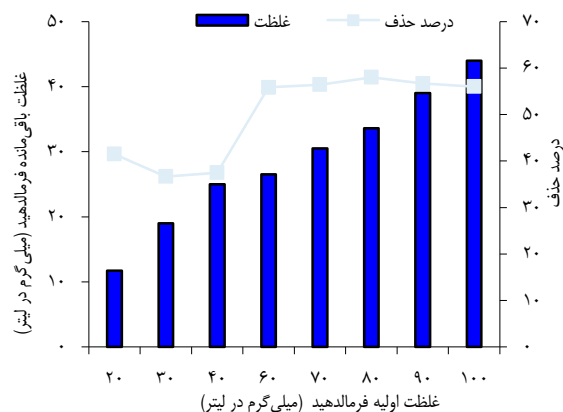
در ابتدا تأثیر pH محلول در محدوده ۸-۳، در روند تجزیه فرمالدهید توسط فرایند سونوفتوکاتالیستی مورد بررسی قرار گرفت. شرایط انجام آزمایش در این مرحله شامل غلظت اولیه فرمالدهید ۵۰ میلی‌گرم در لیتر، قدرت امواج اولتراسونیک ۴۰ وات، دوز نانوذرات اکسید روی ۲۰ میلی‌گرم در لیتر و زمان واکنش ۳۰ دقیقه بود. یافته‌های به دست آمده از میزان حذف فرمالدهید، به عنوان تابعی از pH در شکل ۱ نشان داده شده است.

در مرحله بعد، تأثیر میزان دوز کاتالیزور نانوذرات اکسید روی (۶۰-۱۰ میلی‌گرم در لیتر) بر روند حذف فرمالدهید مورد بررسی قرار گرفت. شرایط انجام آزمایش در این بخش شامل غلظت اولیه فرمالدهید ۵۰ میلی‌گرم در لیتر، قدرت امواج اولتراسونیک ۴۰ وات، pH محلول برابر با ۸ (مقدار بهینه به دست آمده از مرحله قبل) و مدت زمان واکنش ۳۰ دقیقه بود. شکل ۲ نتایج حاصل از این مرحله را نشان می‌دهد.

روش‌های شیمیایی مختلفی مانند الکتروکواکولاسیون و الکتروفلوئاسیون جهت تجزیه فرمالدهید از محلول‌های آبی قابل استفاده می‌باشد. از معایب روش‌های مذکور می‌توان به قدیمی بودن و عدم توانایی آن‌ها در از بین بردن آلاینده به طور کامل اشاره نمود. علاوه بر این، در چنین روش‌هایی ممکن است ترکیبات واسطه‌ای حاصل شوند که برای سلامتی و محیط زیست نامطلوب باشند (۲). تاکنون تجزیه فرمالدهید با استفاده از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته همچون اکسیداسیون توسط H₂O₂، روش‌های الکتروشیمیایی، روش‌های فتوکاتالیستی مانند UV/TiO₂، PT/Fe₂O₃/TiO₂ و UV/H₂O₂، UV/H₂O₂/TiO₂، فتون و فوتونون و اکسیداسیون پیشرفته مرطوب مورد بررسی قرار گرفته است. موادی مانند دی‌اکسید تیتانیوم و اکسید روی فلزات نیمه هادی هستند که باند گپ گسترده‌ای دارند و تحت تابش نور فرابنفش می‌توانند به صورت فتوکاتالیزور مورد استفاده قرار گیرند (۱۴). نانوذرات اکسید روی دارای باند گپ حدود ۳/۲ الکترون ولت و طول موج ۳۸۷ نانومتر می‌باشند (۱۵). فتوکاتالیست اکسید روی نسبت به دی‌اکسید تیتانیوم سمیت کمتری دارد و ارزان و فعال‌تر است؛ بنابراین، می‌توان از آن به عنوان جایگزین استفاده نمود (۱۶). همچنین، نتایج مطالعات انجام شده نشان داده‌اند که در فرایندهای اکسیداسیون، پودر اکسید روی کارایی بیشتری نسبت به دی‌اکسید تیتانیوم دارد (۱۶). امواج فراصوت قادر به افزایش واکنش‌های انتقال حرارت و جرم هستند. اثرات شیمیایی امواج اولتراسوند (US یا Ultrasound wave) با صدای تولید شده که از طریق مایع عبور می‌کند، مرتبط است. این صدا می‌تواند بر نیروهای بین مولکولی مایع غلبه کند. بدین ترتیب، مولکول‌های مایع از یکدیگر جدا می‌شوند و ذرات کوچک‌تری ایجاد خواهد شد. این ذرات در طول مایع گسترده شده، حفره‌هایی ایجاد می‌کنند که حاوی مقدار زیادی انرژی می‌باشد. بنابراین، امواج صوتی به طور مستقیم با آلاینده در تعامل قرار نمی‌گیرند، اما نیروی برشی ایجاد شده آن‌ها سبب شکست پیوندهای شیمیایی آلاینده می‌شود (۱۷). نتایج تحقیق دوستی و همکاران با هدف تصفیه آب با استفاده از فرایند اولتراسونیک نشان داد که امواج اولتراسونیک قادر به حذف آلاینده‌ها از آب می‌باشد، اما لازم است شرایط مورد نیاز همچون قدرت مورد نیاز امواج اولتراسونیک و مدت زمان لازم برای رسیدن به حداکثر درصد حذف برای هر آلاینده به دست آید (۱۸). از جمله دلایل مربوط به استفاده وسیع از فرایند اولتراسونیک در سال‌های اخیر، مزایای آن از جمله عدم نیاز به افزودن مواد شیمیایی و ایمن بودن برای محیط زیست می‌باشد (۱۹). هدف از انجام مطالعه حاضر، بررسی میزان کارایی روش سونوفتوکاتالیستی در تصفیه محلول‌های حاوی فرمالدهید به عنوان یکی از روش‌های اقتصادی و ایمن بود. همچنین، تأثیر برخی شاخص‌های مهم بهره‌برداری بر میزان کارایی حذف این ترکیب مورد بررسی قرار گرفت.

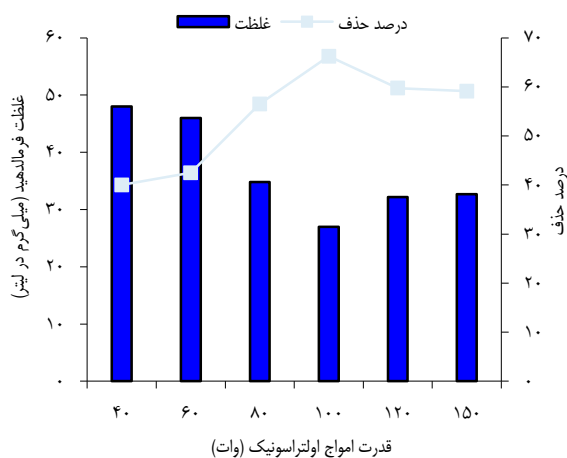
روش‌ها

در این مطالعه که از نوع بنیادی کاربردی بود، کارایی حذف فرمالدهید با استفاده از فرایند سونوفتوکاتالیستی اکسید روی و با بررسی تأثیر متغیرهای اولیه بهره‌برداری مانند pH محلول، غلظت اولیه فرمالدهید، دوز نانوذرات اکسید روی، میزان قدرت امواج اولتراسونیک و زمان واکنش بررسی گردید. در مطالعه حاضر، محلول فرمالدهید ۳۷ درصد (وزنی/وزنی) مورد استفاده قرار گرفت (جدول ۱). به منظور تنظیم pH، از اسید سولفوریک و هیدروکسید



شکل ۳. تأثیر غلظت اولیه فرمالدهید بر میزان کارایی حذف آن با استفاده از فرایند سونوفتوکاتالیستی اکسید روی

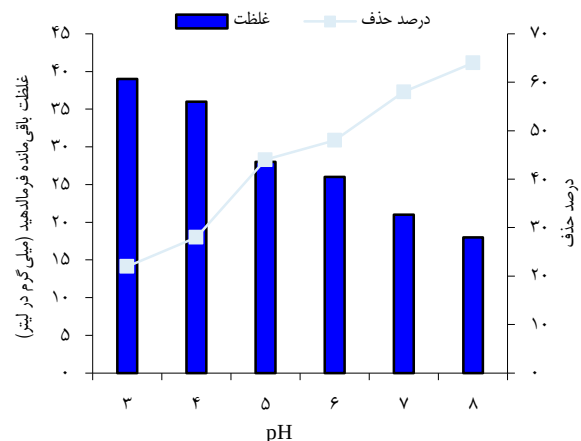
در مرحله نهایی، تأثیر زمان واکنش در میزان کارایی حذف فرمالدهید مورد بررسی قرار گرفت. شرایط انجام آزمایش در این قسمت شامل نتایجی بود که از مراحل قبلی به دست آمد و ۶۰ دقیقه به عنوان زمان واکنش در این مرحله در نظر گرفته شد (شکل ۵).



شکل ۴. تأثیر قدرت امواج اولتراسونیک بر میزان کارایی حذف فرمالدهید با استفاده از فرایند سونوفتوکاتالیستی اکسید روی

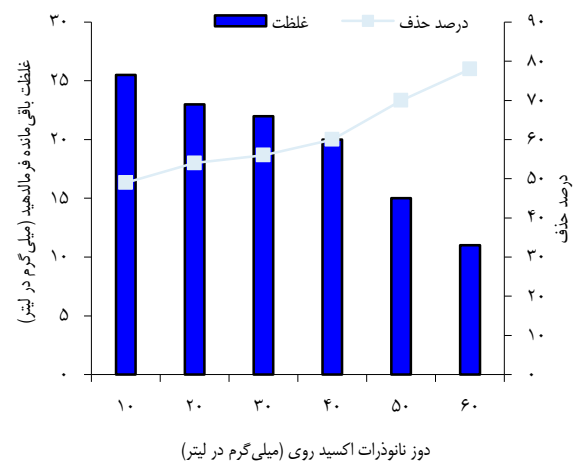
بحث

شکل ۱ میزان کارایی حذف فرمالدهید را در مقابل تغییرات pH محلول نشان داد. همان گونه که ملاحظه می گردد، میزان کارایی حذف فرمالدهید از ۲۲ تا ۶۴ درصد به ترتیب برای $pH = 3$ تا $pH = 8$ افزایش یافته است. نتایج به دست آمده نشان می دهد، زمانی که pH محلول افزایش می یابد، میزان کارایی تجزیه فرمالدهید نیز افزایش پیدا می کند. pH محلول، یکی از مهم ترین شاخص های بهره برداری محسوب می شود که قادر است از طریق یونیزاسیون آلاینده و تغییر در خصوصیات سطحی کاتالیزور، میزان حذف را تحت تأثیر قرار دهد (۲۲). از



شکل ۱. تأثیر pH محلول بر میزان کارایی حذف فرمالدهید با استفاده از فرایند سونوفتوکاتالیستی اکسید روی

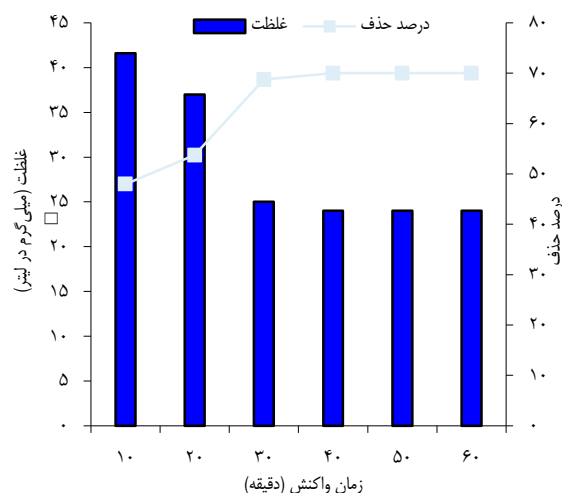
در مرحله سوم، تأثیر غلظت اولیه فرمالدهید (۲۰-۱۰۰ میلی گرم در لیتر) بر روند تجزیه آن توسط فرایند سونوفتوکاتالیستی بررسی گردید. شرایط انجام آزمایش در این مرحله عبارت از pH محلول برابر با ۸، دوز نانوذرات اکسید روی برابر با ۶۰ میلی گرم در لیتر (مقدار مطلوب به دست آمده در مرحله قبل)، قدرت امواج اولتراسونیک ۴۰ وات و زمان واکنش ۳۰ دقیقه بود. تغییرات مربوط به میزان حذف فرمالدهید در اثر تغییر غلظت اولیه در شکل ۳ ارائه شده است.



شکل ۲. تأثیر دوز نانوذرات اکسید روی بر میزان کارایی حذف فرمالدهید با استفاده از فرایند سونوفتوکاتالیستی اکسید روی

در مرحله چهارم، اثر امواج اولتراسونیک (دامنه ۳۰-۱۵۰ وات) در میزان تجزیه فرمالدهید بررسی شد. شرایط انجام آزمایش شامل pH محلول برابر با ۸، دوز نانوذرات اکسید روی ۶۰ میلی گرم در لیتر، غلظت اولیه فرمالدهید ۸۰ میلی گرم در لیتر (مقدار مطلوب به دست آمده در مرحله قبل) و زمان واکنش ۳۰ دقیقه بود. شکل ۴ تأثیر تغییرات امواج اولتراسونیک بر میزان حذف فرمالدهید را نشان می دهد.

سوی دیگر، افزایش pH می‌تواند باعث افزایش سرعت واکنش از طریق کاهش اندازه ذرات کاتالیزور و افزایش میزان شکاف باند کاتالیست شود. موسوی و همکاران در مطالعه خود با هدف بررسی میزان حذف فرمالدهید با استفاده از فرایند الکتروفتون نیز نشان دادند که عملکرد این سیستم در pH قلیایی، موجب افزایش نرخ حذف فرمالدهید از پساب صنعتی می‌شود (۲۳).



شکل ۵. تأثیر زمان واکنش بر میزان کارایی حذف فرمالدهید با استفاده از فرایند سونو فتوکاتالیستی اکسید روی

شکل ۲ میزان حذف فرمالدهید را در اثر تغییرات دوز نانوذرات اکسید روی نشان داد. با افزایش مقدار نانوذرات اکسید روی از ۱۰ تا ۶۰ میلی گرم در لیتر، کارایی اکسیداسیون فرمالدهید از ۴۹ تا ۷۸ درصد افزایش یافت. به نظر می‌رسد که مکانیزم اکسیداسیون اکسید روی برای ترکیبات حاوی اکسیژن بدین صورت است که ابتدا آلایند توسط سطح نانوذرات اکسید روی جذب می‌گردد. سپس از طریق تولید رادیکال‌های هیدروکسیل توسط سایت‌های فعال در این قسمت، آلایند تجزیه و محصولاتی همچون دی‌اکسید کربن و آب تولید می‌شود. بنابراین، می‌توان گفت که با جذب فرمالدهید به سطح نانوذرات، توانایی واکنش‌پذیری با آلایند در سطح نانوذرات نیز افزایش خواهد یافت. مقدار کاتالیزور به علت ایجاد سطح و سایت‌های فعال بیشتر، منجر به افزایش راندمان حذف فرمالدهید می‌شود. نتایج دیگر مطالعات انجام شده نیز حاکی از آن است که با افزایش یافتن دوز کاتالیزور اکسید روی، سایت‌های فعال آن بیشتر می‌شود (۲۴، ۲۵). نتایج تحقیق Lorenz و همکاران گزارش نمود که فرمالدهید و متانول توسط کاتالیزور اکسید روی، می‌توانند به دی‌اکسید کربن و آب تجزیه شوند. علاوه بر این، استفاده از کاتالیزور ZnPd، میزان تجزیه فرمالدهید را افزایش می‌دهد (۲۵).

شکل ۳ تأثیر غلظت اولیه فرمالدهید را بر میزان حذف آن نشان می‌دهد. با افزایش غلظت اولیه فرمالدهید از ۲۰ تا ۸۰ میلی گرم در لیتر، میزان کارایی حذف فرمالدهید به ترتیب از ۴۱/۵ به ۵۸/۰ درصد افزایش یافت. با افزایش غلظت فرمالدهید به بیش از ۸۰ میلی گرم در لیتر، راندمان حذف فرمالدهید به میزان جزئی (تا ۵۶ درصد) کاهش پیدا کرد.

حداکثر راندمان حذف فرمالدهید، ۵۸ درصد (غلظت فرمالدهید اولیه = ۸۰ میلی گرم در لیتر) به دست آمد. در حقیقت، ساختار شیمیایی فرمالدهید به گونه‌ای است که آب‌دوست و قطبی می‌باشد. این ترکیب در غلظت‌های کم، دسترسی کمتری به کاتالیزور اکسید روی دارد. با افزایش غلظت اولیه فرمالدهید، این ماده محلول‌تر می‌شود و در نتیجه، نانوذرات اکسید روی دسترسی بیشتری به آن خواهند داشت و راندمان حذف افزایش خواهد یافت (۲۵)، اما این واقعیت که برای غلظت‌های بیشتر از ۸۰ میلی گرم در لیتر، راندمان حذف فرمالدهید به ۵۶ درصد کاهش پیدا کرد، ممکن است مربوط به سایت‌های فعال سطح کاتالیزور باشد که در این غلظت‌ها به طور کامل پر شده است. بنابراین، به نظر می‌رسد که برای غلظت فرمالدهید اولیه بیشتر، استفاده از دوزهای بیشتر نانوذرات اکسید روی ضروری می‌باشد.

تأثیر قدرت امواج اولتراسونیک بر روی میزان حذف فرمالدهید، در شکل ۴ نشان داده شده است. تولید رادیکال‌های هیدروکسیل بیشتر، منجر به تجزیه شدن سریع‌تر ترکیب فرمالدهید از طریق امواج اولتراسونیک خواهد شد. همان‌طور که در شکل ۵ ملاحظه می‌گردد، با افزایش قدرت امواج اولتراسونیک از ۳۰ به ۱۰۰ وات، میزان راندمان حذف فرمالدهید از ۴۰ به ۶۶ درصد افزایش یافته، اما میزان تجزیه فرمالدهید برای مقادیر بالاتر از ۱۰۰ وات، ثابت و به مقدار جزئی کاهش داشته است و در قدرت ۱۵۰ وات، حدود ۵۹ درصد بود. یکی از راه‌های تولید رادیکال هیدروکسیل در فرایند اولتراسونیک، گاززدایی محلول می‌باشد. با گذشت زمان، میزان گاز محلول در محیط کاهش می‌یابد و در نتیجه، نرخ تولید رادیکال‌های هیدروکسیل نیز کاهش پیدا می‌کند و به دنبال آن، میزان تجزیه فرمالدهید نیز تحت تأثیر قرار می‌گیرد. در این مرحله نیز با توجه به ثابت بودن زمان واکنش در هر مرحله و افزایش یافتن قدرت امواج اولتراسونیک، هوای موجود در محلول سریع‌تر گاززدایی می‌شود. بنابراین، تولید رادیکال هیدروکسیل در زمان کمتری کاهش می‌یابد. در این مرحله از مطالعه، قدرت ۱۰۰ وات برای زمان واکنش، ۳۰ دقیقه مفید و مؤثرتر می‌باشد. ملکی و همکاران در این زمینه نتیجه گرفتند که افزایش یافتن پالس امواج مافوق صوت به ۸ و قدرت آن تا ۸۵ درصد، برای تخریب فنول در محلول آبی توسط فرایند امواج فراصوت مؤثرتر بوده است (۱۷).

در مرحله آخر، تأثیر زمان تماس بر روی میزان کارایی حذف فرمالدهید مورد بررسی قرار گرفت. همان‌طور که در شکل ۵ مشاهده می‌شود، با افزایش زمان تماس از ۱۰ به ۳۰ دقیقه، میزان کارایی حذف فرمالدهید از ۴۸ به ۷۰ درصد افزایش می‌یابد. برای زمان واکنش بیش از ۳۰ دقیقه، راندمان حذف فرمالدهید تا حدودی ثابت بود (۷۰ درصد). در اینجا می‌توان گفت که با افزایش زمان واکنش، میزان دسترسی نانوذرات اکسید روی به آلایند بیشتر می‌شود و فرصت بیشتری برای جذب و اکسیداسیون خواهند داشت. از طرف دیگر، امواج اولتراسونیک با تولید رادیکال‌های آزاد هیدروکسیل، بر میزان تجزیه فرمالدهید تأثیر تشدید کننده‌ای دارند. Gaya و همکاران نیز با انجام پژوهشی، به این نتیجه رسیدند که با افزایش زمان تماس، فرایند فتوکاتالیستی اکسید روی قادر به حذف بیشتری از ۴-کلرو فنول خواهد بود (۲۶).

نتایج نهایی مطالعه حاضر نشان داد که شرایط بهره‌برداری شامل غلظت اولیه فرمالدهید ۵۰ میلی گرم در لیتر، pH محلول برابر با ۸، دوز کاتالیزور اکسید روی ۶۰ میلی گرم در لیتر، قدرت امواج اولتراسونیک ۴۰ وات و زمان واکنش

محسوب می‌شود و می‌توان از آن به عنوان یک فرایند تکمیلی همراه با فرایندهای دیگر، جهت حذف فرمالدهید از محلول‌های مایه حاوی غلظت‌های کم استفاده نمود.

تشکر و قدردانی

این مطالعه برگرفته از طرح تحقیقاتی با شماره ۲۹۲۱۷۱، مصوب مرکز تحقیقات محیط زیست دانشگاه علوم پزشکی اصفهان می‌باشد. بدین وسیله نویسندگان از حمایت‌های مالی معاونت پژوهش و فن‌آوری دانشگاه علوم پزشکی اصفهان تشکر و قدردانی به عمل می‌آورند.

۳۰ دقیقه، شرایط مناسبی برای عملکرد فرایند سونوفتوکاتالیستی اکسید روی در حذف فرمالدهید می‌باشد. در این شرایط، کارایی حذف فرمالدهید حدود ۷۸ درصد به دست آمد. در این روش، اکسیداسیون توسط کاتالیست اکسید روی و تولید رادیکال‌های هیدروکسیل، از جمله مهم‌ترین مکانیسم‌ها در تجزیه و حذف فرمالدهید بود. البته با اعمال شرایط فوق، هنوز مقدار کمی از فرمالدهید در محلول باقی می‌ماند که تجزیه کامل آن دشوار می‌باشد. به نظر می‌رسد که با افزایش میزان دوز نانوذرات اکسید روی به بیش از ۶۰ میلی گرم در لیتر، تجزیه کامل مؤثر باشد. فرایند سونوفتوکاتالیستی، روشی برای تجزیه فرمالدهید در محلول‌های آبی

References

1. Pinkerton LE, Hein MJ, Stayner LT. Mortality among a cohort of garment workers exposed to formaldehyde: an update. *Occup Environ Med* 2004; 61(3): 193-200.
2. Bagheri A, Moussavi G, Khavanin A. Investigating the electro-fenton (EF) process performance in treating highly formaldehyde-polluted industrial wastewater. *Iran J Health Environ* 2012; 5(2): 143-56. [In Persian].
3. Guimaraes JR, Farah CR, Maniero MG, Fadini PS. Degradation of formaldehyde by advanced oxidation processes. *J Environ Manage* 2012; 107: 96-101.
4. Liteplo RG, Beauchamp R, Meek ME, Chenier R. Concise international chemical assessment Document 40: Formaldehyde. Geneva, Switzerland: World Health Organization; 2002.
5. Tang X, Bai Y, Duong A, Smith MT, Li L, Zhang L. Formaldehyde in China: production, consumption, exposure levels, and health effects. *Environ Int* 2009; 35(8): 1210-24.
6. World Health Organization. Formaldehyde in drinking-water background document for development of WHO guidelines for drinking-water quality. Geneva, Switzerland: WHO; 2003.
7. Kajitvichyanukul P, Lu MC, Liao CH, Wirojanagud W, Koottatep T. Degradation and detoxification of formaline wastewater by advanced oxidation processes. *J Hazard Mater* 2006; 135(1-3): 337-43.
8. Joneidi A, Talaei A, Jofee S, Mehrabaniardakani MM. Investigation of formaldehyde degradation by using isolated microorganisms from waste water of chemical industries. *Iran Occup Health* 2008; 5(1-2): 47-54. [In Persian].
9. International Agency for Research on Cancer. IARC monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans [Online]. [cited 2005]; Available from: URL: <http://monographs.iarc.fr/ENG/Monographs/vol100F/mono100F-29.pdf>
10. Bach C, Dauchy X, Chagnon MC, Etienne S. Chemical compounds and toxicological assessments of drinking water stored in polyethylene terephthalate (PET) bottles: A source of controversy reviewed. *Water Res* 2012; 46(3): 571-83.
11. Gonzalez-Gil G, Kleerebezem R, van Aelst A, Zoutberg GR, Versprille AI, Lettinga G. Toxicity effects of formaldehyde on methanol degrading sludge and its anaerobic conversion in biobed expanded granular sludge bed (EGSB) reactors. *Water Sci Technol* 1999; 40(8): 195-202.
12. Oliveira SV, Moraes EM, Adorno MA, Varesche MB, Foresti E, Zaiat M. Formaldehyde degradation in an anaerobic packed-bed bioreactor. *Water Res* 2004; 38(7): 1685-94.
13. Lu ZIJ, Hegemann W. Anaerobic toxicity and biodegradation of formaldehyde in batch cultures. *Water Res* 1998; 32(1): 209-15.
14. Cheng Z, Ting KE, Tao Y, Goh A, Yin XJ. Studies on Water Treatment Using Nano-semiconductors as Photocatalysts. *Sustain Environ Res* 2010; 20(5): 281-6.
15. Rezaei A, Masoum Beygi H, Khataei AR, Hashemian SJ. Effect of uv radiation intensity on photocatalytic removal of e. Coli using immobilized ZnO nanoparticles. *Kowsar Medical Journal* 2009; 14(3): 149-56. [In Persian].
16. Rangkooy H, Rezaei A, Khavanin A, JonidiJafari A, Khoopaie A. A Study on photocatalytic removal of formaldehyde from air using zno nanoparticles immobilized on bone char. *Qom Univ Med Sci J* 2013; 7(2): 17-26. [In Persian].
17. Maleki A, Mahvi AH, Mesdaghinia A, Naddafi K. Degradation and toxicity reduction of phenol by ultrasound waves. *Bull Chem Soc Ethiop* 2007; 21(1): 33-8.
18. Doosti MR, Kargar R, Sayadi MH. Water treatment using ultrasonic assistance: A review. *Proc Int Acad Ecol Environ Sci* 2012; 2(2): 96-110.
19. Upadhyay K, Khandate G. Ultrasound assisted oxidation process for the removal of aromatic contamination from effluents: A Review. *Univers J Environ Res Technol* 2012; 2(6): 458-64.
20. Liu X, Liang J, Wang X. Kinetics and reaction pathways of formaldehyde degradation using the UV-fenton method. *Water Environ Res* 2011; 83(5): 418-26.
21. Matthews TG, Howell TC. Visual Colorimetric Formaldehyde Screening Analysis for Indoor Air. *J Air Pollut Control Assoc* 1981; 31(11): 1181-84.
22. Ehrampoush M, Ghaneian M, Ghanizadeh G, Rahimi S. Application of TiO₂/UV-C photocatalytical processes for the removal of reactive red 198 dye from synthetic textile wastewater. *Toloo e Behdasht* 2012; 10(3-4): 69-81. [In Persian].

23. Moussavi G, Bagheri A, Khavanin A. The investigation of degradation and mineralization of high concentrations of formaldehyde in an electro-Fenton process combined with the biodegradation. *J Hazard Mater* 2012; 237-238: 147-52.
24. Vo CT, Huynh L, Hung JY, Jiang JC. Methanol adsorption and decomposition on ZnO (10 1⁻ 0) surface: A density functional theory study. *Appl Surf Sci* 2013; 280: 219-24.
25. Lorenz H, Friedrich M, Armbruster M, Klotzer B, Penner S. ZnO is a CO(2)-selective steam reforming catalyst. *J Catal* 2013; 297(C): 151-4.
26. Gaya UI, Abdullah AH, Zainal Z, Hussein MZ. Photocatalytic treatment of 4-chlorophenol in aqueous ZnO suspensions: intermediates, influence of dosage and inorganic anions. *J Hazard Mater* 2009; 168(1): 57-63.

Investigation of ZnO sonophotocatalytic Process Efficiency in Formaldehyde Degradation from Aqueous Solution

Fahimeh Teimouri¹, Mohammad Mehdi Amin²

Original Article

Abstract

Background: In this study, formaldehyde degradation rate was investigated through ZnO sonophotocatalyst process using an oxidation reactor with a volume of 2 l.

Methods: This was a fundamental, applied, and cross-sectional study. During various experiment steps (30 steps), the influence of important operational parameters, such as solution pH (3–8), initial CH₂O concentration (20–100 mg/l), ZnO nanoparticles dosage (10–60 mg/l), ultrasonic wave power (40–150 W), and reaction time (10–60 minutes), was investigated.

Findings: Maximum formaldehyde removal ratio (78%) occurred with a ZnO dosage of 60 mg/l, solution pH of 8, ultrasonic wave power of 40 W, initial formaldehyde concentration of 50 mg/l, and a contact time of 30 minutes.

Conclusion: It can be concluded that the sonophotocatalytic process is effective in the treatment of solutions containing low formaldehyde concentrations.

Keywords: Formaldehyde, Nanoparticle, Photocatalyst, Ultrasonic, Aqueous solution

Citation: Teimouri F, Amin MM. **Investigation of ZnO sonophotocatalytic Process Efficiency in Formaldehyde Degradation from Aqueous Solution.** J Health Syst Res 2016; 12(3): 358-64.

1- PhD Candidate, Student Research Committee, Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

2- Professor, Environment Research Center, Research Institute for Primordial Prevention of Non-Communicable Disease AND Department of Environmental Health Engineering, School of Health Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran

Corresponding Author: Mohammad Mehdi Amin, Email: amin@hlth.mui.ac.ir