

## رنگ‌زدایی و تصفیه پساب رنگی با استفاده از راکتور پلاسمای سرد تخلیه سد دی‌الکتریک

علی نورانی سنجد<sup>۱</sup>، علی نعمت‌اله زاده<sup>۲\*</sup>، ناصر سپهری جوان<sup>۳</sup>

۱- دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی شیمی، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه محقق اردبیلی، اردبیل، ایران، کدپستی: ۱۷۹.

۲- دانشیار، گروه مهندسی شیمی، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه محقق اردبیلی، اردبیل، ایران، کدپستی: ۱۷۹.

۳- دانشیار، گروه فیزیک، دانشکده علوم، دانشگاه محقق اردبیلی، اردبیل، ایران، کدپستی: ۱۷۹.

تاریخ دریافت: ۹۹/۰۹/۱۷ تاریخ بازبینی نهایی: ۹۹/۰۱/۲۸ تاریخ پذیرش: ۰۰/۰۱/۲۹ در دسترس بصورت الکترونیک: ۰۰/۰۳/۱۱

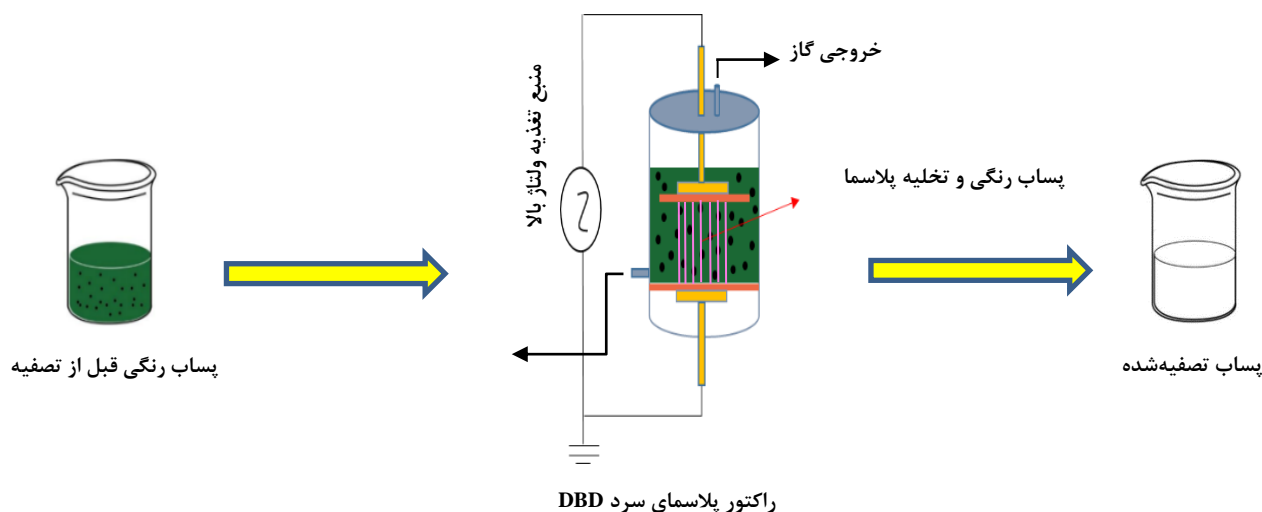
### چکیده

رنگ‌ها به دلیل تنوع و ساختار پیچیده کاربردهای فراوانی دارند. در سال‌های اخیر پساب ناشی از تولید یا مصرف رنگ‌ها در صنایع مختلف، افزایش یافته و تبدیل به خطری جدی برای محیط‌زیست و سلامتی انسان‌ها شده است. در این مقاله، تاثیر پلاسمای سرد به‌عنوان یک فناوری جدید و پیشرفته جهت تصفیه رنگ از پساب آورده شده است. از این روش می‌توان برای کاربردهای مختلف از جمله تصفیه و پیش تصفیه پساب‌ها، حذف رنگدانه‌ها و مواد شیمیایی خطرناک از پساب‌ها استفاده کرد. در این سامانه‌ی تصفیه پساب، مواردی مانند ویژگی‌های پساب و مواد تشکیل‌دهنده هدف، نوع تخلیه مناسب و راکتور پلاسمای به‌کار برده شده، آزمایش‌های سمیت و آزمایش‌های قابلیت تجزیه زیستی واسطه‌های تولید شده توسط پلاسمای، ارزیابی سازگاری زیست‌محیطی فناوری‌های ترکیبی و برآورد اقتصادی مورد توجه قرار گرفته است. با توجه به مطالعات انجام شده، نتایج حاصل از این پژوهش بیانگر اثرات مثبت پلاسمای سرد بر رنگ‌زدایی از پساب و نیز افزایش کارایی سامانه‌های نوین تصفیه پساب می‌باشد.

### واژه‌های کلیدی

پلاسمای سرد، تصفیه، پساب، رنگ، تخلیه سد دی‌الکتریک.

### چکیده تصویری





## Decolorization and Treatment of Colored Wastewater Using Dielectric Barrier Discharge Cold Plasma Reactor

Ali Noorani Sanjabad<sup>1</sup>, Ali Nematollahzadeh<sup>\*1</sup>, Naser Sepehri Javan<sup>2</sup>

1- Department of Chemical Engineering, University of Mohaghegh Ardabili, P.O. Code: 179, Ardabil, Iran.

2- Department of Physics, University of Mohaghegh Ardabili, P.O. Code: 179, Ardabil, Iran.

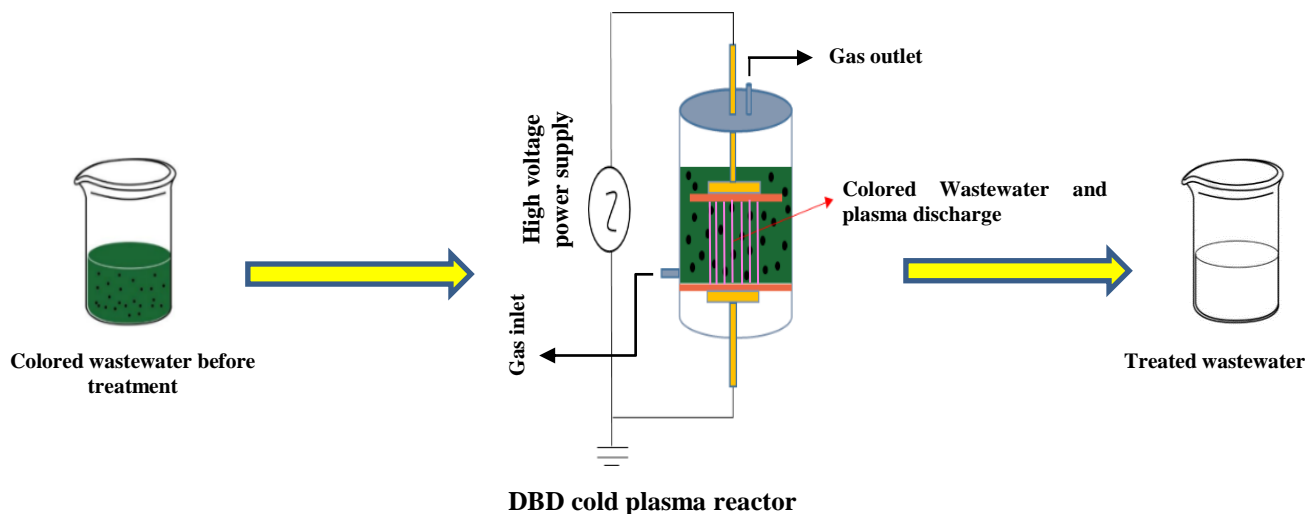
### Abstract

Dyes have many uses due to their variety and complex structure. In recent years, wastewater from the production or consumption of dyes in various industries have increased and become a serious threat to the environment and human health. The effect of cold plasma as a new and advanced technology for the treatment of dye from wastewater is presented in this review paper. This method can be used for various applications such as treatment and pre-treatment of effluents, removal of pigments, and hazardous chemicals from effluents. In this wastewater treatment system, different cases such as characteristics of effluent, target materials, type of suitable plasma discharge, reactor type, toxicity experiments, biodegradability tests of plasma generated intermediates, environmental compatibility assessment of combined technologies, and economic estimation were considered. According to the studies, the results indicated the positive effects of cold plasma for decolorization of wastewater and also increased efficiency of modern wastewater treatment systems.

### Keywords

Cold plasma, Treatment, Wastewater, Dye, Dielectric barrier discharge.

### Graphical abstract



۱- مقدمه

تصفیه غشایی، فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته (AOP)<sup>۵</sup>، تصفیه زیستی و جذب سطحی می‌باشد [۱۷، ۱۸].

فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته یکی از روش‌های پرکاربرد جهت تخریب آلاینده‌های آلی و معدنی موجود در آب و همچنین موجود در پساب می‌باشند. این روش با تولید رادیکال‌های آزاد اکسیدان و هیدروکسیل، آن‌ها را برای تخریب آلاینده‌ها درگیر می‌کند. رادیکال‌ها به‌عنوان عامل اکسید کننده قوی عمل می‌کنند و رنگ‌ها و آلودگی‌های پساب را تخریب می‌کنند و در نهایت آن‌ها را به محصولات غیرسمی تبدیل می‌کنند. به عبارت دیگر با افزایش رادیکال، ربایش هیدروژن، انتقال الکترون و ترکیب رادیکال، رادیکال‌های هیدروکسیل به آلاینده‌های آلی حمله می‌کنند. در مراحل تصفیه پساب مانند مرحله مقدماتی، مرحله ثانویه و همچنین در مرحله سوم تصفیه ازون راه پیدا می‌کند. ازون برای رنگ‌زدایی، سم‌زدایی، ضدعفونی‌کردن، کاهش اکسیژن مورد نیاز شیمیایی و زیستی (BOD/COD) و کاهش لجن مورد استفاده قرار می‌گیرد [۱۹].

فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته خود شامل ۴ فرآیند تصفیه الکتروشیمیایی، فرآیند فوتوکاتالیستی، ازونی‌کردن و تصفیه پلاسما می‌باشد [۱۷]. به‌عنوان یک جایگزین امیدوار کننده، تکنیک‌های اکسیداسیون پیشرفته موثرترین روش‌های موجود برای تجزیه مواد آلی زیستی مقاوم هستند. از آنجا که هزینه‌های مصرف انرژی آن‌ها تاکنون زیاد است، تحقیقات باید روی بهینه‌سازی بازده انرژی آن‌ها متمرکز باشد [۲۰]. در میان روش‌های اکسیداسیون پیشرفته، فناوری پلاسما برای تصفیه آب جایگاه ویژه‌ای را به خود اختصاص داده است، زیرا قادر به تولید طیف گسترده‌ای از گونه‌های اکسیداتیو است که منجر به انتخاب‌پذیری پایین فرآیند تجزیه می‌شود؛ علاوه‌براین، طراحی انعطاف‌پذیر آن، ترکیب هم‌افزایی را با سایر روش‌های جداسازی و اکسیداسیون پیشرفته تسهیل می‌کند [۲۱].

هدف از این مقاله، بررسی فناوری راکتور پلاسمای سرد تخلیه سد دی‌الکترونیک به‌عنوان یک فناوری جدید جهت تصفیه رنگ‌ها از پساب‌های صنعتی می‌باشد.

۲- پلاسما

ویلیام کروکس<sup>۷</sup> مفهوم فاز چهارم ماده را در سال ۱۸۷۹ میلادی در تخلیه‌ی الکتریکی مواد برای اولین بار پیشنهاد داد و ابروینگ لانگمویر<sup>۸</sup> برای نخستین بار در سال ۱۹۲۸ میلادی از واژه‌ی پلاسما برای مشخص کردن حالت گازها در لوله‌های تخلیه استفاده کرد. بیش از ۹۹٪ ماده قابل مشاهده در جهان در حالت پلاسما است [۲۲، ۲۳]. پلاسما معمولاً به‌عنوان حالت چهارم ماده در دنباله حالت مواد یعنی جامد، مایع، گاز و پلاسما می‌باشد [۲۴]. هنگام انتقال انرژی به گاز خنثی، کسری از ذرات

آلودگی آب با مواد رنگی می‌تواند محیط‌زیست و سلامتی انسان‌ها را به خطر بیندازد. مواد رنگی وارد شده به آب، مانع عبور نور خورشید از آب شده و سنتز نوری<sup>۱</sup> گیاهان اعماق آب را با مشکل مواجه می‌کند [۳، ۵، ۲]. علاوه‌براین، مواد رنگی موجود در آب می‌توانند جذب گیاهان شده و در نهایت در چرخه غذایی انسان وارد شوند. همچنین اخیراً یک افزایش چشمگیر در میزان آلاینده‌های آلی (رنگ‌های آلی، ترکیبات آلی فرار، دارویی و غیره) در منابع آبی تشخیص داده شده است که موجب یک نگرانی جدی برای سلامت عمومی شده است [۶].

هزاران رنگ وجود دارند که تحت نام‌های مختلف به فروش می‌رسند، به طوری که گاهی تشخیص سریع و دقیق یک رنگ خاص دشوار به نظر می‌رسد. چندین سیستم طبقه‌بندی برای رنگ‌ها وجود دارد، اما سیستم‌های معروف‌تر بر اساس ساختار شیمیایی، منبع، ساختار هسته‌ای و طبقه‌بندی صنعتی مشخص می‌شوند. انواع مختلفی از رنگ‌های صنعتی مانند رنگ‌های اسیدی، رنگ‌های پایه، رنگ‌های واکنشی، رنگ‌های آزو<sup>۲</sup>، رنگ‌های پراکنده<sup>۳</sup>، رنگ‌های آنتراکینون<sup>۴</sup> و غیره وجود دارند [۷]. از مواد رنگزا در صنایع مختلف مانند نساجی، پوشاک، چاپ، پلاستیک، مواد آرایشی و غیره استفاده می‌شود. این مواد به تنهایی یا در ترکیب با سایر مواد استفاده می‌شوند که باعث ایجاد یا تغییر رنگ محصول می‌شوند. فرآیندهای رنگ‌رزی معمول بازده کمی دارند بطوری‌که رنگ از دست رفته در پساب‌ها می‌تواند تا ۵۰٪ برسد و مشکلات محیطی آشکاری ایجاد کند [۸]. سالانه حدود ۲۸۰۰۰۰ تن رنگ در سراسر جهان به محیط‌زیست وارد می‌شود که ۸۰٪ آن‌ها رنگ آزو هستند [۹، ۱۰]. وجود رنگ در پساب یکی از مشکلات اصلی در صنایع می‌باشد. رنگ‌ها حتی در غلظت‌های بسیار کم به آسانی برای انسان‌ها قابل مشاهده هستند. بسیاری از رنگ‌ها پایدار هستند و توسط روش‌های تصفیه معمول به راحتی قابل تخریب نیستند [۱۱، ۱۲]. برای مثال رنگ‌های مصنوعی اکسالات مالاشیت سبز (مرمر سبز) و بلور بنفش معمولاً غیرزیست‌تخریب‌پذیر هستند. آن‌ها ترکیبات سمی هستند که به‌خاطر سرطان‌زا، جهش‌زا و انرژی‌زا بودن اکوسیستم آب را نابود کرده و بر ایمنی سیستم بشر و حیوانات تاثیر می‌گذارند [۱۳]. تخلیه رنگ‌ها و پساب‌های رنگی بدون تصفیه، سبب آلودگی محیطی قابل توجهی از طریق تولید محصولات جانبی پرخطر به‌واسطه هیدرولیز، اکسیداسیون و سایر واکنش‌های شیمیایی می‌شود [۱۴-۱۶]. به‌منظور کاهش مضرات این پساب‌های آلوده خروجی بر روی محیط‌زیست، باید تصفیه آن توسط فناوری‌های مناسب صورت گیرد. به‌طور کلی روش‌های حذف مواد رنگزا از پساب به سه دسته فیزیکی، شیمیایی و زیستی تقسیم می‌شوند؛ فناوری‌های اخیر مورد استفاده جهت رنگ‌زدایی شامل لختگی (انعقاد)،

<sup>5</sup> Advanced Oxidation Process

<sup>6</sup> Biological Oxygen Demand/Chemical Oxygen Demand

<sup>7</sup> Sir William Crooks

<sup>8</sup> Irving Langmuir

<sup>1</sup> Photosynthesis

<sup>2</sup> Azo

<sup>3</sup> Disperse

<sup>4</sup> Anthraquinone

گازی می‌توانند به ذرات باردار به شکل پلاسما تبدیل شوند (یونیزه شوند). پلاسما تولید شده توسط میدان‌های الکتریکی یا الکترومغناطیسی معمولاً به عنوان یک تخلیه الکتریکی مشخص می‌شود. پلاسما (یا به عبارت صحیح‌تر، پلاسما تخلیه گاز) را می‌توان به عنوان گاز جزئی یونیزه شده و حاوی ذرات خنثی و همچنین تعداد برابر الکترون‌های منفی و یون‌های مثبت توصیف کرد، البته باید توجه داشت که پلاسماهای کاملاً یونیزه نیز وجود دارد (در درجه اول در فشارهای گازی کم) که در آن همه ذرات یونیزه می‌شوند و همچنین پلاسمایی با یون‌های منفی (در گازهای الکترون‌گاتیو) نیز وجود دارد [۲۵].

با توجه به ظرفیت اکسیداسیون بالا، انطباق‌پذیری (همه‌کاره بودن)، کاربردهای روش‌های پایه‌گذاری شده‌ی پلاسما برای تخریب آلاینده‌ها افزایش یافته است. ویژگی‌های خاص پلاسما باعث تشدید قابل توجه فرآیندهای شیمیایی، افزایش اساسی کارایی آن‌ها و معمولاً تحریک موفق واکنش‌های شیمیایی غیرممکن در شیمی معمول می‌شود. تعداد زیادی از انواع پلاسما وجود دارد و طبقه‌بندی جهانی آن ساده نیست. پلاسما غالباً به دو دسته با دمای پایین و بالا تقسیم می‌شود. یک زیرمجموعه از پلاسما دما پایین به پلاسما حرارتی و غیرحرارتی (سرد) مربوط می‌شود که کاربردهای گسترده‌ای در زمینه‌های مهندسی شیمی دارند [۲۴، ۲۶]. به عبارت دیگر، پلاسما با دمای پایین خود به دو دسته پلاسما حرارتی (یا پلاسما شبه تعادلی) و پلاسما غیرحرارتی (یا پلاسما سرد، پلاسما غیرتعادلی) طبقه‌بندی می‌شود [۲۷، ۲۸].

پلاسما حرارتی، که در دسته پلاسما با دمای پایین طبقه‌بندی می‌شود، به صورت تعادل ترمودینامیکی موضعی<sup>۱</sup> (LTE) نیز تعریف می‌شود [۲۹]. در تعادل حرارتی، تمام ذرات از جمله الکترون‌ها و ذرات سنگین (ذرات خنثی و یون‌ها)، دمای یکسان دارند. پلاسما حرارتی را می‌توان به طور طبیعی در ستاره‌ها، چراغ‌ها، شفق‌های شمالی، سایر اجسام آسمانی و تاج خورشید مشاهده کرد [۳۰-۳۲].

پلاسماهای سرد فشار اتمسفری<sup>۳</sup> در سال‌های اخیر برای استفاده در فرآیندهای تصفیه آب بسیار مورد توجه قرار گرفته‌اند [۴۵، ۴۶]. در این فناوری، مولکول‌های توده گاز توسط تجزیه، برانگیختگی یا یونیزاسیون فعال می‌شوند و منجر به تشکیل ازون و رادیکال‌های آزاد  $OH^*$  و  $O^*$  می‌شوند که برای تبدیل آلاینده‌ها به محصولات کم‌خطر مانند  $CO_2$  و  $H_2O$  بسیار واکنش‌پذیر هستند [۴۷].

جدول ۱- دسته‌بندی انواع پلاسما [۳۴].

پلاسما	حالت	مثال
دما بالا (پلاسما تعادلی)	$Te \approx Ti \approx Tg, Tp = 106 - 108 K$ $ne \geq 1020 m^{-3}$	پلاسما همجوشی لیزری <sup>۴</sup>
حرارتی (پلاسما شبه تعادلی)	$K Te \approx Ti \approx Tg \leq 2 \times 10^4$ $ne \geq 1020 m^{-3}$	پلاسما قوسی، مشعل‌های پلاسما، تخلیه‌های پلاسما جفت‌شده القایی فرکانس رادیویی <sup>۵</sup>
غیرحرارتی (پلاسما غیرتعادلی)	$Te \gg Ti \approx Tg = 300-103 K$ $ne \approx 1010 m^{-3}$	پلاسما تابان، کرونا، جت پلاسما فشار اتمسفری <sup>۶</sup> ، DBD <sup>۷</sup> ، تخلیه‌های کاتد با حفره میکرومتری <sup>۸</sup> ، پلاسما تخلیه تابان یکنواخت اتمسفری <sup>۹</sup> ، سوزن پلاسما <sup>۱۰</sup> و غیره

<sup>۱</sup> Local Thermodynamic Equilibrium

<sup>۲</sup> Cold Plasma

<sup>۳</sup> Cold Atmospheric Pressure Plasmas

<sup>۴</sup> Laser Fusion Plasma

<sup>۵</sup> RF Inductively Coupled Discharges

<sup>۶</sup> Atmospheric Pressure Plasma Jet APPJ

<sup>۷</sup> Dielectric Barrier Discharge

<sup>۸</sup> Micro Hollow Cathode Discharges (MHCD)

<sup>۹</sup> One Atmosphere Uniform Glow Discharge Plasma (OAUGDP)

<sup>۱۰</sup> Plasma Needle

افزایش می دهد. شکل های موج تخلیه مختلف به دلیل تغییر توزیع تخلیه الکتروود ولتاژ بالا است و این نتیجه ی پدیده برخورد متنوع است. حجم الکتروود ولتاژ بالا همچنین می تواند بر ویژگی های تخلیه پلاسما DBD تأثیر بگذارد زیرا با حجم تخلیه در ارتباط است. جایی که گونه های واکنش پذیر با مولکول های واکنش دهنده تعامل می کنند. سطح خشن یا متخلخل الکتروود ولتاژ بالا ممکن است گونه های واکنشی اضافی تولید کند که باعث افزایش چگالی توان راکتور پلاسما DBD به دلیل کانال شدن گونه های واکنش پذیر می شود. کانال سازی موثر مطمئناً زمان تعامل مولکول های الکترون و گاز را بهبود می بخشد [۶۱].

دی الکترونیک از انتقال بار (به عنوان مثال جریان) جلوگیری می کند و تخلیه به دلیل القای الکترونیک و قطبش دی الکترونیک اتفاق می افتد. به عبارت دیگر وجود دی الکترونیک باعث عدم ایجاد جرقه و عدم پیشرفت تخلیه غیرقابل کنترل می شود. خصوصیات اصلی در انتخاب ماده دی الکترونیک، ثابت دی الکترونیک (گذردهی) و ریخت است، هرچه ثابت دی الکترونیک بیشتر باشد، ممکن است تخلیه های مکرر میکرو و قوی تری ایجاد شود [۶۱].

انواع مختلفی از حالت تخلیه، مانند حالت تخلیه رشته ای و حالت تخلیه پخشی می تواند در سیستم DBD وجود داشته باشد. حالت رشته ای توسط تخلیه ها یا رشته هایی که به طور تصادفی و نامنظم در ناحیه تخلیه بین الکتروودها توزیع می شوند، تشکیل می شود و حالت پخشی به صورت تخلیه تابان همگن و یکنواخت می باشد [۶۲، ۶۳].

بسته به نوع کاربرد، فاصله الکتروودها از هم می تواند از ۰/۱ میلی متر تا چند سانتی متر متغیر باشد. ناحیه تخلیه یکی از مهم ترین عوامل در پیکربندی راکتور DBD است. ناحیه تخلیه فاصله بین الکتروود داخلی و سد دی الکترونیک و یا فاصله بین دو دی الکترونیک که بر روی الکتروودها قرار گرفته اند، است که بیشتر واکنش ها در آنجا اتفاق می افتد. در پلاسما DBD برای حفظ پلاسما پایدار، یک طول ناحیه تخلیه مناسب لازم است [۶۴].

از مزایای اصلی DBD ها، می توان انجام راحت تر فرایند تخلیه را بیان کرد. به منظور ایجاد تخلیه، می توان از گاز خوراک خالص مانند گازهای نجیب هلیوم و آرگون و یا از ترکیب های گازی مختلف مانند ترکیب گازهای نجیب هلیوم و آرگون و یا هوا و بخار آب با ترکیبی از گازهای واکنش پذیر مانند اکسیژن و نیتروژن استفاده کرد. مزیت دیگر این نوع تخلیه ها سازگاری آن ها در چیدمان ها و ساختارهای مختلف است [۶۵].

پلاسما DBD دارای راندمان بالایی در بین پلاسماهای غیرحرارتی می باشد، این ممکن است به دلیل: (۱) تخلیه همگن و (۲) محافظت از الکتروود باشد [۳۳]. استفاده از روش های پلاسمایی با توجه به معیارها در حوزه محیط زیست و نیز در قیاس با روش های مورد استفاده معمول که نتایج مشابه دارند، روش های تجاری و موثری می باشند که توجه و محبوبیت زیادی را در صنایع گوناگون کسب کرده اند. چگونگی تولید و اعمال پلاسما می تواند نقش ویژه ای در کاهش تولید دی اکسید کربن، آلودگی، آلایندگی زیست محیطی و پسماندهای سمی، گرمایش زمین،

روش های گوناگون اعمال پلاسما و انواع مختلفی از پلاسما سرد فشار اتمسفری مانند تخلیه سد دی الکترونیک (DBD) [۴۸، ۴۹]، تخلیه کرونا [۵۰، ۵۱] جت های پلاسما فشار اتمسفری [۵۲، ۵۳]. برای تصفیه پساب و رنگ زدایی از رنگ ها استفاده می شوند. فرآیند تخریب پلاسما عمدتاً به نوع پلاسما و ترکیب گاز مصرفی توجه دارد [۵۴]. پلاسما می تواند رادیکال ها و مولکول های بسیار اکسیداتیو، موج شوک، نور فرابنفش و کاویناسیون الکتروهدرولیک را فراهم کند و خود را به ابزاری متنوع برای تخریب پساب تبدیل می کند [۵۵]. در ادامه با توجه به کاربردها و ویژگی های مطلوب پلاسما DBD در تصفیه پساب های رنگی، به شرح این نوع از پلاسما سرد و نیز راکتور پلاسما DBD می پردازیم.

## ۱-۲- پلاسما سرد تخلیه سد دی الکترونیک

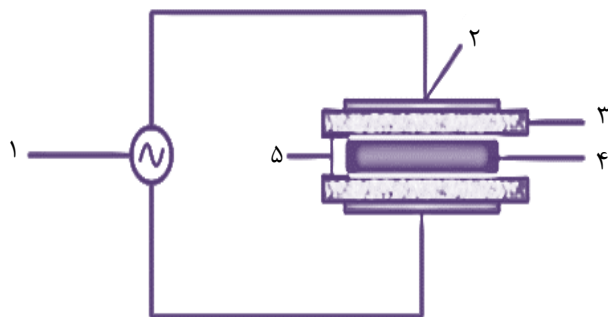
تخلیه سد دی الکترونیک یک روش ساده و رایج برای تولید پلاسماهای غیرحرارتی در فشار اتمسفری می باشد. DBD همچنین تخلیه بی صدا نیز نامیده می شود و یک فرآیند تخلیه الکترونیک است که با اعمال ولتاژ بالا بین دو الکتروود فلزی و حداقل یک سد دی الکترونیک (ساخته شده از شیشه، کوارتز، مواد سرامیکی، پلیمرها و یا غیره) ایجاد می شود که باعث برانگیختگی آبی الکترون ها از سطح کاتد و حرکت سریع آن ها به سمت آند می شود. برای شروع تخلیه در فشار اتمسفر در ناحیه تخلیه گاز، حدوداً به ولتاژ چند ولت تا چند کیلوولت و فرکانس چند هرتز تا چند مگاهرتز نیاز است. DBD ها معمولاً دارای درجه یونیزاسیون پایین می باشند. چگالی الکترونی حدود  $10^{11}$  -  $10^9$  cm<sup>-3</sup> و جریان عبوری در تخلیه، از مرتبه میلی آمپر است [۵۶-۵۹].

در سیستم DBD، الکتروودها نقشی حیاتی در تولید گونه های یونیزه و واکنش پذیر دارند. مشخصات فیزیکی و شیمیایی ماده الکتروود بر توان ورودی تأثیر می گذارد که ممکن است باعث افزایش انرژی الکترون های یونیزه شود. شدت پلاسما و تخلیه به ماده الکتروود نیز مربوط می شود؛ زیرا مواد مختلف الکتروود دارای خصوصیات الکترونیک مختلف مانند مقاومت الکترونیک و رسانایی هستند که می تواند بر تخلیه پلاسما تأثیر بگذارد [۶۰]. در طول فرآیند طراحی الکتروود، اهداف اصلی که باید مورد توجه قرار گیرند، ناحیه تخلیه الکترونیک بزرگ و مطابقت خوب با راکتور هستند. از دیدگاه صنعتی، الکتروودهای یک بعدی (به عنوان مثال سیم) می توانند ناحیه توزیع پلاسما بزرگتر و یکنواخت تری نسبت به الکتروودهای چند بعدی (به عنوان مثال، سوزن و پین) ایجاد کنند. در مورد تعداد الکتروودهای اعمال شده، این امر عمدتاً به ورودی برق، پیکربندی راکتور و بار پردازش بستگی دارد [۵۵].

در پیکربندی DBD، الکتروود ولتاژ بالا معمولاً ماده ای بسیار رسانا مانند فولاد، آلومینیم و غیره است که معمولاً برای تولید پلاسما استفاده می شود. ریخت شناسی سطح الکتروود ولتاژ بالا جنبه مهمی است که باید در پیکربندی راکتور پلاسما DBD در نظر گرفته شود. ریخت سطح الکتروود ولتاژ بالا بر یکنواختی تخلیه تأثیر می گذارد و رسانایی سطح را

راکتورهای DBD معمولاً به شکل مسطح (صفحه تخت) و سیلندری (سیم‌لوله) می‌باشند. عمده کاربردهای راکتور سیم‌لوله انجام واکنش‌های فاز مایع و گاز می‌باشد. همچنین از پلاسمای صفحه تخت جهت کاربردهای بهینه‌سازی نانو مواد و کاتالیزورها، بهینه‌سازی سنتز پایه، توزیع جزء فعال، کلسینه کردن، تثبیت جزء فعال، ریزپراکنی جزء فعال و غیره استفاده می‌شود.

در تصفیه با راکتور DBD، پساب می‌تواند شامل انواع رنگ‌ها و رنگدانه‌ها باشد. غلظت اولیه، pH محلول و سایر مشخصات مورد نیاز ابتدا باید قبل از اعمال پلازما اندازه‌گیری شود. نمونه پساب مورد نظر در داخل راکتور DBD ریخته می‌شود. با استفاده از منبع تغذیه الکتریکی ولتاژ بالا، ولتاژ و فرکانس مورد نظر به سیستم اعمال می‌شود؛ ولتاژ و فرکانس را می‌توان به صورتی پالسی افزایش یا کاهش داد. گاز خوراک خالص مانند آرگون، هلیوم، اکسیژن و غیره و یا به صورت ترکیبی از گازها مانند آرگون و اکسیژن و غیره با دبی قابل تنظیم و کنترل شده وارد راکتور DBD می‌شود. با توجه به سیستمی که در اختیار است می‌توان دمای محفظه، دمای گاز خوراک و دمای عملیاتی را نیز تنظیم کرد. به این ترتیب پلاسمای سرد DBD به پساب به مدت زمان‌های مختلف اعمال می‌شود.

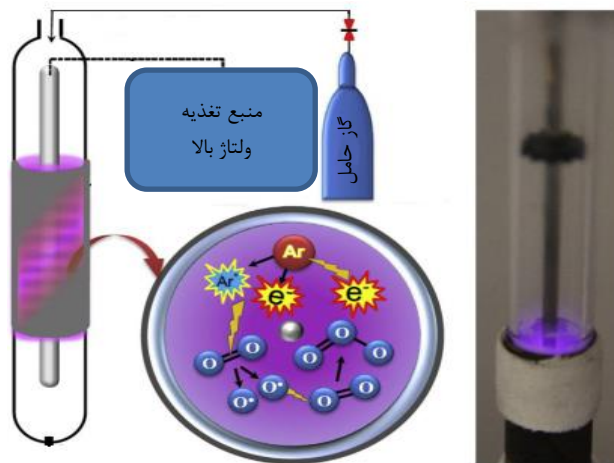


شکل ۱- طرح‌واره پلاسمای DBD که در آن ۱ جریان ولتاژ بالا، ۲ الکتروود، ۳ سد دی‌الکتریک، ۴ ناحیه تخلیه و ۵ فاصله تخلیه می‌باشد [۵۶].

صرف انرژی، افزایش بازده کاربرد انرژی و غیره داشته باشد [۶۶] و با توجه به اینکه فرآیندهای پلاسمایی جزو فرآیندهای خشک می‌باشند، مشکل آلودگی فرآیندهای شیمیایی مرطوب را ندارند و می‌توانند جایگزین مناسبی برای آن‌ها باشند [۶۷]. شرایط دمایی پایین و فشار اتمسفری به‌عنوان شرایط نسبتاً پایدار مطرح می‌شوند و پلاسمای DBD دارای شرایط عملیاتی آسان می‌باشد. از دیگر مزایای این روش می‌توان به عدم نیاز به مواد شیمیایی افزودنی برای تخریب و نیز عدم تولید محصولات جانبی خطرناک در این فرآیندها اشاره کرد و این نشان می‌دهد که تصفیه پلازما سمیت بسیار پایین در حد صفر دارد [۶۸]، [۲۶]؛ همچنین DBDها دارای کارایی آسان، طراحی ساده و هزینه نصب کمتری هستند [۶۹]. شکل شماره ۱ طرح‌واره‌ای از پلاسمای DBD را نشان می‌دهد.

## ۲-۲- راکتور پلاسمای سرد تخلیه‌ی سد دی‌الکتریک

در میان همه فناوری‌ها، DBD به‌عنوان فناوری موثر برای گونه‌های مختلف راکتوری مطرح شده است [۷۰]. یا به عبارت دیگر راکتور DBD یک روش رایج برای تولید پلاسمای غیرحرارتی در فشار اتمسفری می‌باشد. در راکتور پلاسمای DBD، یک یا هر دو الکتروود با لایه‌های دی‌الکتریک مانند کوارتز، سرامیک و غیره پوشانده شده‌اند. هنگامی که ولتاژ در هر دو انتهای الکتروود اعمال می‌شود، ذرات باردار شده که می‌بایست برای مهاجرت در هر دو انتهای الکتروود، آزاد شوند، به دلیل وجود ماده عایق جهت جلوگیری از تجزیه مستقیم و تخلیه قوس، روی سطح دی‌الکتریک تجمع می‌یابند. هنگامی که ولتاژ به اندازه کافی بالا باشد که شکاف هوا بین الکتروود و محیط را از بین ببرد (بشکند)، بسیاری از تخلیه‌های میکرو یکنواخت و پایدار بین دو دی‌الکتریک اتفاق می‌افتد. هوا در ناحیه‌ی تخلیه، یونیزه شده و بسیاری از رادیکال‌های فعال (مانند  $\text{OH}^\bullet$ ،  $\text{O}^\bullet$ ،  $\text{H}^\bullet$  و غیره) و مولکول‌ها (مانند  $\text{O}_3$ ،  $\text{H}_2\text{O}_2$  و غیره) و همچنین نور فرا بنفش در فرآیند تخلیه پلازما شکل می‌گیرد که برای حذف آلاینده‌ها و رنگ‌زدایی مفید هستند [۷۱]. در شکل شماره ۲ طرح‌واره راکتور پلاسمای DBD و سازوکار یک واکنش ساده آورده شده است.



شکل ۲- طرح‌واره راکتور پلاسمای DBD و سازوکار یک واکنش ساده در حذف آلاینده‌ها [۱].





واکنش پذیری و عملکرد پلاسما به عوامل متعددی مانند: سیستم راکتور، الکتروود، انرژی ورودی، منبع تغذیه (AC، DC)، پالس DC و غیره، گاز (کجا و چه گازی استفاده شده است) و دبی گاز ورودی، دما و فشار عملیاتی، زمان تابش، فاصله تابش و خواص مایع (به عنوان مثال: رسانایی، pH و مواد افزودنی مثل نمک، یون ها، ذرات از الکتروودها و کاتالیزورها) و غیره وابسته می باشد [۳۵، ۷۴].

با توجه به مقالات، تمامی مطالعات تحت شرایط آزمایشی کاملاً متفاوتی (به عنوان مثال، ترکیبات آلی مصنوعی (SOCs) هدف، نوع کاتالیزور، بارگذاری کاتالیزور مطلوب، غلظت اولیه مطلوب SOC، شرایط مطلوب DBD و بازده تخریب) انجام شده اند. بنابراین، مقایسه مستقیم تأثیر متغیرهای تجربی بر عملکرد DBD از داده های این مطالعات مختلف صحیح نیست [۴]. در هر آزمایش جهت رسیدن به شرایط بهینه و ایده آل باید تأثیر هر یک از عوامل را بررسی نمود. در اینجا با توجه به تأثیر به سزای آزون در رنگ زدایی، اثر گاز خوراک به عنوان مثال آورده شده است؛ وقتی اکسیژن وارد می شود، اتم های مونواکسید (O) تولید می شوند و با دی اکسید برای تشکیل آزون واکنش می دهند. همچنین اتم های O می توانند ترکیبات آلی را به طور مستقیم اکسید کنند یا با H<sub>2</sub>O واکنش نشان دهند تا رادیکال های OH تشکیل شوند [۷۰]. رحیم پور و همکارانش [۳] در تحقیقی دریافتند که در توان الکتریکی ثابت، با بالا بردن دبی جریان O<sub>2</sub>، مقدار رنگ زدایی افزایش می یابد و این افزایش در دبی جریان پایین O<sub>2</sub> واضح تر است. در یک توان عملیاتی ثابت ۵ وات، با افزایش دبی جریان O<sub>2</sub> از ۵۰۰ به ۷۰۰ میلی لیتر در دقیقه، حذف بلور بنفش<sup>۵</sup> از ۹۸/۲ درصد به ۱۰۰٪ افزایش یافت؛ ولی رنگ زدایی با افزایش نرخ جریان از ۹۰ به ۳۰۰ میلی لیتر در دقیقه، از ۴۰/۱ درصد به ۹۱/۴ درصد رسید. با توجه به نتایج، می توان دریافت که افزایش دبی جریان O<sub>2</sub>، بیش از ۵۰۰ میلی لیتر در دقیقه تأثیر کمی بر تخریب بلور بنفش دارد. همچنین نتایج مشابهی با سایر توان های عملیاتی به دست آمد که در شکل شماره ۳ مشاهده می شود.

برای اطمینان بیشتر هر آزمایش را می توان دو بار یا بیشتر نیز تکرار کرد. در مرحله بعدی پس از اعمال پلاسما، غلظت محلول نهایی اندازه گیری شده و حذف رنگ ها با استفاده از غلظت اولیه و نهایی محاسبه می شود. مقدار رنگ حذف شده در واحد انرژی مصرفی در فرآیند را می توان به عنوان بازده انرژی تعریف کرد و از رابطه ۱ محاسبه می شود [۳].

$$EE \left( \frac{\text{g}}{\text{kWh}} \right) = \frac{C_0 \left( \frac{\text{g}}{\text{L}} \right) \times V (\text{L}) \times \frac{1}{100} \times R (\%)}{P (\text{kW}) \times t (\text{h})} \quad (1)$$

که در آن EE<sup>۱</sup> بازده انرژی را در گرم بر کیلووات-ساعت، C<sub>0</sub> غلظت اولیه آلاینده را در گرم بر لیتر، V حجم محلول را در لیتر، R(%) درصد تجزیه، P توان در کیلووات و t زمان تخریب در ساعت را نشان می دهد. در هر آزمایش، گاز خوراک با غلظت مشخص به راکتور وارد می شود. این امر منجر به اشباع شدن حجم راکتور و بیرون راندن هوا به خارج از راکتور می شود. با اعمال ولتاژ بالا به گاز، پلاسما تولید می شود. پس از تولید پلاسما، واکنش های شیمیایی در پاسخ به برخورد الکترون آزاد با مولکول های گاز ورودی باعث تشکیل یون ها، اتم ها و رادیکال های آزاد می شود [۷۲].

### ۳- گونه های واکنشی تولید شده و واکنش های موجود در

#### طول تیمار پلاسما

تخلیه های پلاسمایی اغلب در ناحیه تخلیه و جو هوای طبیعی یا سنتزی، نیتروژن، اکسیژن، هلیوم، هیدروژن، آرگون یا ترکیبی از آن ها شکل می گیرند. از انواع دیگر جو به ندرت استفاده می شود. پلاسمای غیرحرارتی تولید شده در فشار اتمسفری از گونه های فعال مختلف، یعنی فوتون های UV، ذرات به عنوان اتم ها و مولکول های خنثی یا برانگیخته، یون های منفی و مثبت، رادیکال های آزاد و الکترون های آزاد تشکیل شده است. در منابع متداول، اکثر گونه های واکنشی به شرح زیر است [۶۳]:

۱- اکسیژن O<sub>2</sub> و نیتروژن N<sub>2</sub> برانگیخته الکترونیکی و ارتعاشی

۲- شکل فعال اتم ها و مولکول های اکسیژن (گونه های اکسیژن فعال، ROS) مانند اکسیژن اتمی O، اکسیژن منفرد O<sub>2</sub>، آنیون سوپراکسید O<sub>2</sub><sup>-</sup> و آزون O<sub>3</sub>

۳- گونه های نیتروژن واکنشی (RNS) مانند نیتروژن اتمی N، نیتروژن برانگیخته (A) N<sub>2</sub>، اکسید نیتروژن NO\*

۴- اگر رطوبت موجود باشد، H<sub>2</sub>O<sup>+</sup>، آنیون OH<sup>-</sup> رادیکال OH یا پراکسید هیدروژن (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) نیز ایجاد می شود.

با این حال، ترکیب و فراوانی این عوامل به طور قابل توجهی بسته به نوع منبع پلاسما، تفاوت دارند. برخی از نمونه واکنش ها در طول تیمار پلاسمایی جهت تولید گونه های واکنشی به صورت واکنش های ۱-۸ هستند [۷۳].

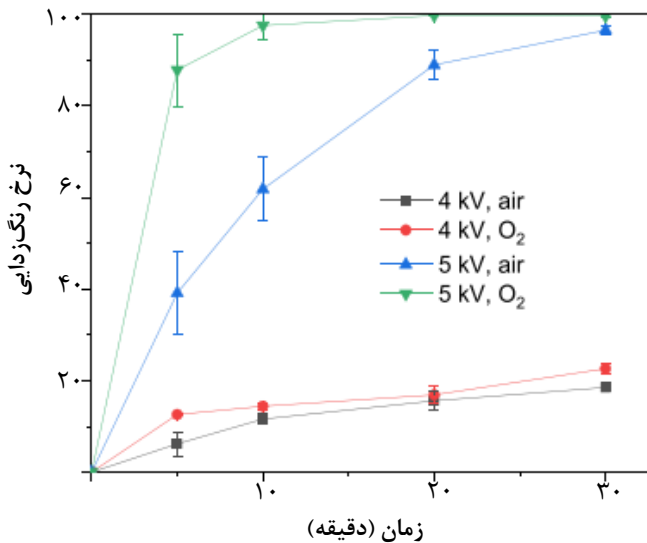
<sup>1</sup> Energy efficiency

<sup>2</sup> Reactive Oxygen Species

<sup>3</sup> Reactive Nitrogen Species

<sup>4</sup> Synthetic organic compounds

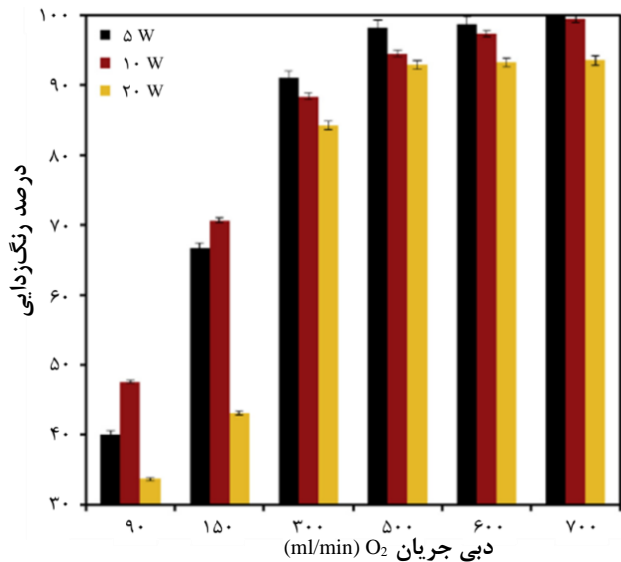
<sup>5</sup> Crystal Violet



شکل ۴- رنگ‌زدایی MB در شرایط مختلف گاز حامل [۴].

سازوکارهای مختلف اثبات کرده‌اند که توان تخلیه بالاتر می‌تواند باعث تشکیل بیشتر نور فرابنفش در سیستم تخریب نوری شود [۱۷۷]. اثر دیگر توان تخلیه به شکاف تخلیه مربوط می‌شود. قدرت و پایداری تخلیه به طور قابل توجهی تحت تأثیر شکاف تخلیه DBD قرار می‌گیرند، بنابراین وقتی فاصله تخلیه از یک حد مشخصی بیشتر باشد، میدان تخلیه پلاسما نمی‌تواند تشکیل شود [۷۸].

pH محلول به طور قابل توجهی در فرآیند تخلیه الکتریکی بر خصوصیات شیمیایی پلاسما تأثیر می‌گذارد. همچنین مقدار pH محلول به طور قابل توجهی به سیستم‌های مبتنی بر کاتالیزور-پلاسما برای حذف SOC کمک کرده است. هنگامی که pH اولیه در یک محدوده خاص افزایش می‌یابد، بازده تخریب SOC می‌تواند به میزان قابل توجهی افزایش یابد، اما افزایش یا کاهش بیش از حد pH می‌تواند باعث کاهش بازده تخریب شود. تشکیل پراکسید هیدروژن در فاز گاز یا مایع به pH محلول بستگی دارد. همچنین ثابت شده است که در سیستم پلاسما، pH می‌تواند بر شکل‌گیری و عملکرد OH، O<sub>3</sub> و H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> تأثیر بگذارد. توانایی تخریب پلاسما به دلیل تبدیل بیشتر O<sub>3</sub> به رادیکال‌های OH می‌تواند تحت شرایط pH نسبتاً بالا تشدید شود. علاوه بر این، تعادل‌های اسید-باز بین گونه‌های مختلف پلاسما وجود دارد که در نهایت بر واکنش تخریب آلاینده‌های آبی تأثیر می‌گذارد [۴، ۵۵، ۷۹]. در مطالعه‌ای از پلگ [۸۰] بیان شد که ازون، به‌عنوان یک گونه موثر در تخریب رنگ‌ها، در شرایط pH بالا به سرعت افزایش می‌یابد؛ اما در مطالعه ژانگ<sup>۴</sup> و همکارانش [۸۱] بیان شد که انتظار می‌رود O<sub>3</sub> بتواند بدون زحمت ساختار پیچیده ترکیبات آلی را در شرایط pH پایین تخریب کند. می‌توان استنباط کرد که pH بهینه کاملاً متفاوتی برای تصفیه‌های مختلف آلاینده‌ها با استفاده از فناوری‌های پلاسما لازم است.



شکل ۳- نمودار تاثیر توان و دبی جریان O<sub>2</sub> در رنگ‌زدایی با دبی جریان ثابت O<sub>2</sub> در ۱ دقیقه تصفیه [۳].

در یک سیستم تخلیه گاز-مایع ترکیبی، انواع و تعداد گونه‌های فعال تشکیل شده در سیستم واکنش می‌تواند مستقیماً تحت دسته و حجم گاز حامی که وارد سیستم تخلیه می‌شود، قرار بگیرد. با مقایسه کارایی در بین گازهای مختلف تغذیه‌ای، به طور گسترده‌ای اثبات شده است که بیشترین بازده تصفیه درجه یک به اکسیژن اختصاص داده می‌شود، سپس هوا و آرگون و کمترین آن برای نیتروژن است. علاوه بر این، ولتاژ اعمالی می‌تواند توان تخلیه را نشان دهد که در تعیین تعداد گونه‌های فعال تولید شده در سیستم DBD نقش اساسی دارد. در مطالعه انصاری و همکارانش [۴] در مرحله اول با استفاده از هوا به‌عنوان گاز حامل، نرخ رنگ‌زدایی MB<sup>۱</sup> در ولتاژ تخلیه ۵ کیلوولت بسیار بالاتر از آن در ولتاژ تخلیه ۴ کیلوولت است، که به دلیل توان ورودی بالاتر تخلیه ۵ کیلوولت (۹/۲۷ وات) نسبت به ولتاژ تخلیه ۴ کیلوولت (۷/۴۹ وات) است. در مرحله دوم، O<sub>2</sub> به‌عنوان گاز حامل برای تغییر رنگ MB نسبت به هوا مطلوب‌تر است. همانطور که در شکل ۴ نشان داده شده است، ولتاژ تخلیه و گروه گاز حامل تأثیر متمایزی بر تغییر رنگ MB در سیستم پلاسما DBD دارند.

توان تخلیه در ناحیه پلاسما وابسته به ولتاژ اعمالی می‌باشد و ثابت شده است که افزایش ولتاژ اعمالی منجر به افزایش توان تخلیه پلاسما می‌شود. مطالعه‌ای توسط ردی<sup>۲</sup> و همکارانش [۷۵] این یافته را تأیید کرد و نشان داد که با افزایش ولتاژ اعمالی از ۱۴ به ۲۲ کیلوولت، توان تخلیه به ترتیب از ۰/۶ به ۲/۶۷ وات افزایش یافته است. به طور کلی، توان تخلیه هم بر فرکانس‌های تولید و هم بر تعداد الکترون‌های با انرژی بالا تأثیر می‌گذارد که این امر با ایجاد گونه‌های پرنرژی مرتبط است [۷۶].

<sup>3</sup> Peleg

<sup>4</sup> Zhang

<sup>1</sup> Methylene Blue

<sup>2</sup> Reddy



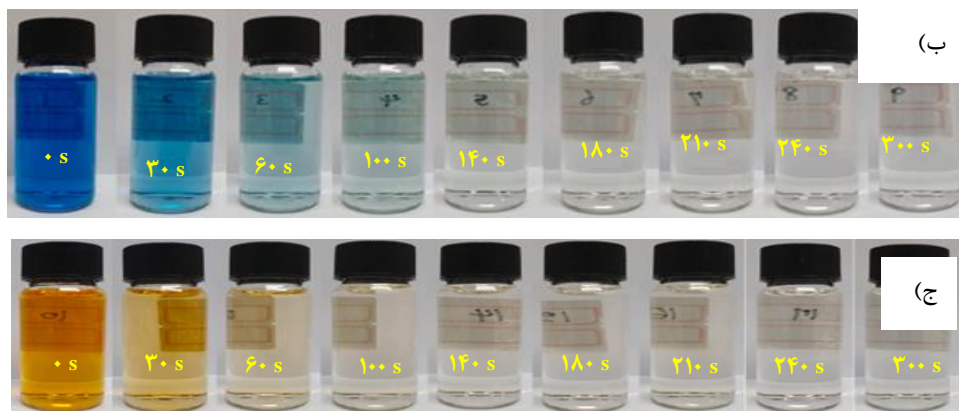
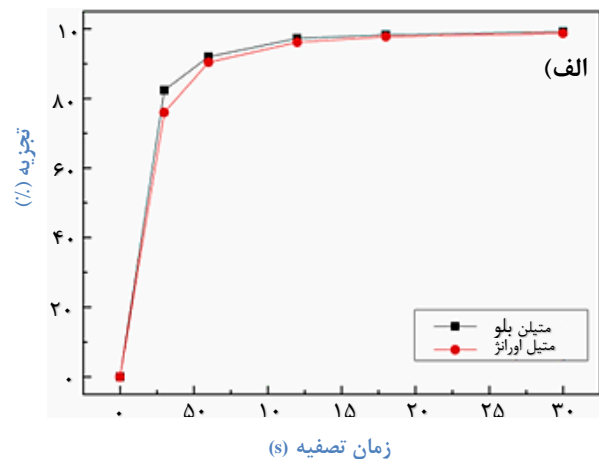
شده در سیستم پلازما در نظر گرفته شد. در نتیجه مشاهده شد که یک سیستم DBD چند سوراخه غوطه‌ور تأثیر خوبی در حذف آلاینده‌های آلی دارد.

در تحقیقی از ویگانگ<sup>۷</sup> و همکارانش [۸۳]، اثر پراکسی دی‌سولفات (PDS)<sup>۸</sup> فعال شده توسط پلازما DBD و کربن فعال گرانولی (GAC)<sup>۹</sup> در حذف اسید نارنجی ۲ (AOII)<sup>۱۰</sup> بررسی شد. اثرات و لتاژ اعمال شده، مقدار تنظیم شده PDS، مقدار تنظیم شده GAC، مقدار pH اولیه و آنیون‌های غیرآلی بر میزان حذف AOII مورد بحث قرار گرفت. رادیکال‌های آزاد اصلی که باعث تخریب رنگ‌های آزو در طول آزمایش می‌شدند نیز مورد مطالعه قرار گرفتند. رادیکال‌های سولفات و هیدروکسیل نقش مهمی در حذف AOII داشتند و آنیون‌های غیرآلی برای حذف AOII مساعد نبودند. نتایج تجربی نشان داد که میزان حذف AOII در سیستم هم افزایی DBD/GAC/PDS بسیار بیشتر از سیستم واحد است و در سیستم هم‌افزا میزان حذف AOII پس از گذشت ۲۸ دقیقه واکنش، به ۹۷/۶٪ رسیده است.

در مطالعه ما<sup>۱</sup> و همکارانش [۸۲]، از DBD چند سوراخه غوطه‌ور برای تصفیه محلول‌های رنگی استفاده شد. از طریق تجزیه و تحلیل ویژگی‌ها، تولید  $UV^2$ ،  $O_3$ ،  $H_2O_2$  و  $OH^\bullet$  در یک سیستم پلازما ساده تأیید شد. از طریق تجزیه و تحلیل جذب UV-Vis<sup>۳</sup>، کل کربن آلی (TOC)<sup>۴</sup> و رنگ‌پذیری، MB و MO<sup>۵</sup> که به ترتیب نماینده سری رنگ‌های تیاژین<sup>۶</sup> کاتیونی و آزو هستند، هر دو در یک دوره کوتاه به طور تصاعدی تخریب شدند. همانطور که در شکل ۵ (الف) نشان داده شده است، به ترتیب تجزیه ۹۸/۳٪ و ۹۶/۶٪ از رنگ‌های MB و MO پس از ۳ دقیقه تصفیه با پلازما مشاهده شد. شکل ۵ (ب) تصویری از تغییرات رنگی MB را نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که رنگ در طول زمان تصفیه با پلازما به تدریج کاهش می‌یابد. شکل ۵ (پ) تغییرات رنگی MO را نشان می‌دهد. همانند MB، بی‌رنگ شدن با گذشت زمان به تدریج پیشرفت می‌کند. تغییر ویژگی‌های محلول‌های MB و MO در رابطه با تصفیه پلازما اندازه‌گیری و پس از آن کاهش pH و افزایش رسانایی تأیید شد. این یک واکنش شیمیایی به دلیل انحلال مولکول‌های NO و NO<sub>2</sub> تولید

<sup>7</sup> Weigang  
<sup>8</sup> Peroxydisulfate  
<sup>9</sup> Granular Activated Carbon  
<sup>10</sup> Acid Orange II

<sup>1</sup> Ma  
<sup>2</sup> Ultraviolet  
<sup>3</sup> Ultraviolet-Visible  
<sup>4</sup> Total Organic Carbon  
<sup>5</sup> Methyl Orange  
<sup>6</sup> Thiazine



شکل ۵- الف) درصد تجزیه حاصل از طیف‌سنجی UV-vis برای MB و MO پس از تصفیه با DBD چند سوراخه هوا به مدت ۵ دقیقه (ب) تصاویر تجزیه MB و MO [۷۹].

فلاونوئید<sup>۵</sup> مختلف با استفاده از پلاسمای DBD و دو گاز خوراک مختلف (هوای خشک تمیز و نیتروژن) بررسی شد. تخریب سریع‌تر، هنگام استفاده از هوای خشک تمیز به عنوان گاز خوراک مشاهده شد و الگوی تخریب روند مشابهی را برای هر دو گاز خوراک مورد استفاده نشان داد. روند تخریب از نظر حساسیت به پلاسمای به صورت میریستین<sup>۶</sup> < کوئرستین<sup>۷</sup> < کائمفرول<sup>۸</sup> < روتین<sup>۹</sup> < آپیزین<sup>۱۰</sup> بیان شد. فلاونوئیدها در اثر تعامل با گونه‌های اصلی تولید شده در پلاسمای، جهت تخریب ترکیبات **فنی** با وزن مولکولی پایین، تحت واکنش اکسیدشدن قرار گرفتند و پس از آن قطعه قطعه شدن رخ داد.

در مجموع، در طراحی سیستم فناوری تصفیه پساب با استفاده از راکتور پلاسمای سرد، برخی موارد مهم از جمله ویژگی‌های پساب و مواد تشکیل‌دهنده هدف، نوع تخلیه مناسب و راکتورهای پلاسمای به کار برده شده، آزمایش‌های سمیت و آزمایش‌های قابلیت تجزیه زیستی واسطه‌های تولید شده پلاسمای، انتخاب فناوری زیستی موثر، استفاده از برخی تجهیزات کمکی (برای مثال حذف اثرات منفی از غلظت بالای پراکسید هیدروژن بر روی میکروارگانیسم‌ها ضروری است)، ارزیابی سازگاری زیست‌محیطی فناوری‌های ترکیبی و برآورد اقتصادی باید مورد توجه قرار گرفته شوند [۵۵].

هرچند مقایسه بین نتایج مختلف رنگ‌زدایی با توجه به شرایط مختلف آزمایش و ترکیبات مختلف کار دشواری می‌باشد، چندین نتیجه برای رنگ‌زدایی با استفاده از پلاسمای متفاوت در جدول ۲ آمده است.

در تحقیق دیگری از ما<sup>۱</sup> و همکارانش [۲]، سیستم DBD برای تصفیه پساب جلبک دریایی، که یک مسئله زیست‌محیطی است، مطرح شد. DBD چند سوراخه در پساب نصب شد و به‌طور روان کار می‌کرد. علاوه بر این، نتایج نشان می‌دهد که مقادیر زیادی از گونه‌های فعال از جمله  $H_2O_2$  و  $O_3$  می‌توانند تولید شوند و به‌طور مستقیم در پساب تزریق شوند و این امر تصفیه پساب بسیار کارآمد را امکان‌پذیر می‌سازد. ایشان شرایط عملیاتی بهینه را بر اساس غلظت  $O_3$ ، دمای آب و مصرف انرژی تعیین کردند. با توجه به شرایط بهینه شده، ۹۹/۹۹ درصد از اشریشیا کولای<sup>۲</sup> پس از ۲۰ دقیقه از تیمار حذف شد. ایشان همچنین با استفاده از تیمار پلاسمای، تغییر خواص آب را تجزیه و تحلیل نموده و دریافتند که pH به تدریج با زمان تصفیه از ۶/۹۸ به ۸/۵۱ افزایش یافت. این نتیجه‌ای از تولید  $OH^\bullet$  توسط تجزیه آب و  $O_3$  بود. بنابراین، یک مزیت وجود داشت که یک واکنش فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته مبتنی بر  $O_3$  را می‌توان علاوه بر این به دست آورد. در نتیجه، تایید شد که کدورت، BOD و COD پساب شستشوی جلبک دریایی بهبود یافته است. انتظار می‌رود که سیستم DBD چند سوراخی توسعه یافته برای تصفیه حجم زیادی از پساب با غلظت‌های بالاتر موثر باشد. شکل شماره ۶ تصاویر پساب را قبل از تصفیه جهت مقایسه نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که پس از ۲۰ دقیقه قرار گرفتن در معرض پلاسمای DBD چند سوراخه، رنگ قرمز به دلیل اکسیدشدن ترکیبات آلی آلوده در فاضلاب ناپدید می‌شود. در مطالعه خان<sup>۳</sup> و کیم<sup>۴</sup> [۷۳] سینتیک تخریب پنج محلول استاندارد

<sup>5</sup> Flavonoid  
<sup>6</sup> Myricetin  
<sup>7</sup> Quercetin  
<sup>8</sup> Kaempferol  
<sup>9</sup> Rutin  
<sup>10</sup> Apigenin

<sup>1</sup> Ma  
<sup>2</sup> Escherichia Coli  
<sup>3</sup> Khan  
<sup>4</sup> Kim



شکل ۶- پساب قبل و بعد از تصفیه پلاسمای DBD چند سوراخه [۲].

جدول ۲- رنگ‌زدایی و تخریب آلاینده‌های آلی در آب با استفاده از انواع تخلیه پلاسما [۳].

منبع	بازده انرژی ( $\frac{g}{kWh}$ )	R (%)	زمان تصفیه (min)	توان (W)	نوع آلاینده و غلظت اولیه (mg/L)	حجم نمونه (mL)	کل دبی جریان (ml/min)	گاز	نوع پلاسما
[۳]	۱۲/۲۴	۱۰۰	۱	۵	<sup>۱</sup> CV:4.08	۲۵۰	۹۰۰	O <sub>2</sub>	DBD
[۸۴]	۱۱/۴	۹۵	۱	۶۰	Acid Red 88:25	۵۰۰	۷۰۰۰	O <sub>2</sub>	DBD
[۸۵]	۱/۱۶۴	۹۷	۵	۴۰	CV:40	۱۰۰	۱۳۳۳/۴	Air	DBD
[۸۶]	۰/۰۶۲۷ - ۵/۶۴	۹۴	۹۰-۱	۴۰	CV:40	۱۰۰	۱۳۳۳/۴	Air	DBD
[۸۷]		۱۰۰	۳۰	۱۶/۸	Orange II:25	۵۰۰	۶۰۰۰	O <sub>2</sub>	DBD
[۸۸]		۱۰۰	۲	۱۰۰	CV:4.08	۵		Air	DBD
[۸۹]		۱۰۰	۴		CV:100	۲۵		N <sub>2</sub> +65% O <sub>2</sub>	DBD
[۸۹]		۱۰۰	۴			۱۰۰		Air	DBD
[۹۰]	۲۹/۵۲	۹۸			Rhodamine B:22		۱۰۰۰۰	O <sub>2</sub>	DBD
[۹۱]		۱۰۰	۶۰-۱	۸/۶	Indigo carmine:20	۱۰۰۰		Air	Corona
[۹۲]	۰/۴		۴۰		MB:20		۳۰۰	Ar	Corona
[۹۳]	۸	۸۹/۸	۱۵	۱/۵۷	<sup>۲</sup> RB-19:100	۱۰	۱۵۰	O <sub>2</sub>	Corona
[۹۴]	۶/۶	۹۰/۶	۶۰		<sup>۳</sup> RBB:100	۱۰۰۰	۲۰۰۰	Air	Corona
[۹۵]		۸۴/۳	۱۵		MO:10	۴۵۰		O <sub>2</sub>	Corona
[۹۶]	۵/۹		۱۵		MO:100	۲۰۰	۱۶۰۰	Air	Corona
[۹۷]	۱۱/۶۸	۹۲	۲۰	۵/۶۷	MO:60	۴۰۰	۱۰۰۰	O <sub>2</sub>	Corona
[۹۸]	(۹۰٪) ۰/۳۶۴	۹۰	۴۲		<sup>۴</sup> 4-CP:100	۱۰۰	۱۶۶۶/۷	O <sub>2</sub>	Corona
[۹۹]	۱/۲	۹۰	۱۱	۴	MB:13.25	۲۰	۱۰	O <sub>2</sub>	Corona
[۱۰۰]	۵	۹۰	۳۰	۱۰	MB:100	۱۰۰	۸۰۰	O <sub>2</sub>	Corona
[۱۰۱]	۸/۸۶		۱۵		MO:80	۲۰۰	۱۶۰۰	O <sub>2</sub>	Corona
[۱۰۲]	۰/۳۰۸	۹۸/۳	۴۵	۵۱	AO7:20	۶۰۰			Corona
[۱۰۳]	۴/۶	۹۱	۲۰	۰/۶	MB:10	۱۰۰			Corona
[۱۰۴]		۸۹	۶۰		CV:53.04		۱۵۰۰۰	Wet air	Gliding Arc
[۱۰۵]				۱۲۰	<sup>۵</sup> RB137:20		۲۰۰۰۰	O <sub>2</sub>	Gliding Arc
[۱۰۶]		۱۰۰			Indigo carmine:20	۵۰۰		Air	Corona

<sup>۱</sup> Crystal Violet

<sup>۲</sup> Reactive Blue 19

<sup>۳</sup> Remazol Black B

<sup>۴</sup> 4-chlorophenol

<sup>۵</sup> Reactive Blue 137

روش‌هایی امکان‌پذیر، اقتصادی، کارآمد و آینده‌نگر برای حذف آلاینده‌های آبی و رنگ‌زدایی در مقیاس صنعتی می‌باشند؛ اما با نگاه به آینده، هنوز موانع و جای پیشرفت زیادی برای تحقیق و توسعه بیشتر به‌منظور پاسخگویی به تقاضای صنعتی وجود دارد.

#### تشکر و قدردانی

بدینوسیله از حمایت ستاد ویژه توسعه فناوری نانو در انجام طرح پژوهشی "حذف رنگدانه و مواد شیمیایی خطرناک از پساب‌های کارخانجات نساجی در راکتور پلاسمای سرد" با کد ۱۴۷۶۰۴ کمال تشکر و قدردانی را داریم.

#### ۴- نتیجه‌گیری

در دهه‌های اخیر، علاقه به استفاده از فناوری پلاسمای سرد برای تصفیه آلاینده‌های آبی به‌طور قابل توجهی افزایش یافته است. در بررسی حاضر، راکتور پلاسمای سرد تخلیه سد دی‌الکتریک برای تجزیه طیف وسیعی از رنگ‌ها ارائه شد. فناوری‌های پلاسما می‌توانند با کاتالیزورها و سایر فرآیندها ترکیب شوند و موجب افزایش رنگ‌زدایی شوند و بازدهی تصفیه پساب‌های رنگی را افزایش دهند. علاوه بر این، عوامل مختلفی از جمله سیستم راکتور، انرژی ورودی، pH محلول، گاز مورد استفاده، دما و رسانایی محلول بر عملکرد سیستم‌های پلاسما تأثیرگذار هستند. فناوری‌های پلاسما همراه با تیمارهای زیستی به نظر می‌رسد که

- M. Rahimpour, H. Taghvaei, M. R. Rahimpour, "Degradation of crystal violet in water solution using post discharge DBD plasma treatment: factorial design experiment and modeling". *Chemosphere*. 232, 213-223, **2019**.
- S. Ma, K. Kim, S. Chun, S. Y. Moon, Y. Hong, "Plasma-assisted advanced oxidation process by a multi-hole dielectric barrier discharge in water and its application to wastewater treatment", *Chemosphere*. 243, 125377, **2020**.
- M. Ansari, M. Sharifian, M.H. Ehrampoush, A.H. Mahvi, M.H. Salmani, H. Fallahzadeh, "Dielectric barrier discharge plasma with photocatalysts as a hybrid emerging technology for degradation of synthetic organic compounds in aqueous environments: A critical review", *Chemosphere*. 263, 128065, **2020**.
- M. Rahimpour, H. Taghvaei, S. Zafarnak, M.R. Rahimpour, S. Raeissi, "Post-discharge DBD plasma treatment for degradation of organic dye in water: A comparison with different plasma operation methods", *J. Environ. Chem. Eng.* 4, 103220, **2019**.
- T. Ataei-Germi, A. Nematollahzadeh, "Bimodal porous silica microspheres decorated with polydopamine nano-particles for the adsorption of methylene blue in fixed-bed columns". *J. Colloid Interface Sci.* 470, 172-182, **2016**.
- J. Foster, B.S. Sommers, S.N. Gucker, I.M. Blankson, G. Adamovsky, "Perspectives on the interaction of plasmas with liquid water for water purification". *IEEE Trans. Plasma Sci.* 5, 1311-1323, **2012**.
- S. Nikfar, M. Jaberidoost, "Dyes and Colorants". **2014**.
- K. Schneider, C. Hafner and I. Jäger, "Mutagenicity of textile dye products". *J. Appl. Toxicol.* 2, 83-91, **2004**.
- Q. Liu. "Pollution and Treatment of Dye Waste-Water". IOP Conference Series: Earth and Environmental Science. **2020**.
۱۰. ز. کریمی، ع. اله وردی، ف. اوشنی، "بررسی حذف مواد رنگزا از پساب با استفاده از نانوجاذب‌های کامپوزیت آلومینا"، نشریه علمی مطالعات در دنیای رنگ، ۲، ۵۹-۴۱، **۱۳۹۹**.
- S. Dutta, S. Singh. "Health Status of Workers of Textile and Dyeing Industries of Pali Industrial Area, (Raj) India", Global Public Health Conference 2014. **2014**.
- C. Jönsson, S. Posner, S. Roos. "Sustainable Chemicals: A Model for Practical Substitution". *Detox Fashion*. Springer. **2018**.
- M.M. Arimi, "Integration of Fenton with biological, physical-chemical methods in the treatment of complex effluents: A review", *Environ. Technol. Rev.* 1, 156-173, **2017**.
- M. Baghdadi, B. A. Soltani, M. Nourani, "Malachite green removal from aqueous solutions using fibrous cellulose sulfate prepared from medical cotton waste: Comprehensive batch and column studies", *J. Ind. Eng. Chem.* 55, 128-139, **2017**.
- V. Elhami, A. Karimi, M. Aghbolaghy, "Preparation of heterogeneous bio-Fenton catalyst for decolorization of Malachite Green". *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.*, 154-159, **2015**.
- P. Zolfaghari, M. Aghbolaghy, A. Karimi, A. Khataee, "Continuous degradation of an organic pollutant using heterogeneous magnetic biocatalyst and CFD analysis of the process", *Process Saf. Environ. Prot.* 338-348, **2019**.
- K.G. Pavithra, S. Kumar, V. Jaikumar, "Removal of colorants from wastewater: A review on sources and treatment strategies", *J. Ind. Eng. Chem.* 1-19, **2019**.
۱۱. ا. سهولی، ف. شه‌دوست‌فرد، ف. نظریان، "ارزیابی کارایی مهم‌ترین روش‌های حذف مواد رنگزا"، نشریه علمی مطالعات در دنیای رنگ، ۴، ۹۳-۷۷، **۱۳۹۷**.
- R. Munter, "Advanced oxidation processes—current status and prospects". *Proc. Estonian Acad. Sci. Chem.* 2, 59-80, **2001**.
- M.A. Oturan, J. J. Aaron, "Advanced oxidation processes in water/wastewater treatment: principles and applications. A review", *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* 23, 2577-2641, **2014**.
- P. Vanraes, G. Willems, N. Daels, S.W. Van Hulle, K. De Clerck, P. Surmont, F. Lynen, J. Vandamme, J. Van Durme, A. Nikiforov, "Decomposition of atrazine traces in water by combination of non-thermal electrical discharge and adsorption on nanofiber membrane", *Water. Res.* 361-371, **2015**.
- B.N. Chapman. "Glow discharge processes: sputtering and plasma etching", Wiley. **1980**.
- S.S. Muthu. "Sustainable innovations in textile chemical processes", Springer. **2018**.
- A. Fridman. "Plasma chemistry", Cambridge university press. **2008**.
- L. Bárdos, H. Baránková, "Cold atmospheric plasma: Sources, processes, and applications", *Thin Solid Films.* 23, 6705-6713, **2010**.
- G. Chen, M. Zhou, S. Chen, W. Chen, "The different effects of oxygen and air DBD plasma byproducts on the degradation of methyl violet 5BN", *J. Hazard. Mater.* 2, 786-791, **2009**.
- Y. Ma, S. Manolache, F. Denes, J. Cho, R. Timmons, "Surface modification of rutile TiO<sub>2</sub> by submerged arc discharge for improved photoreactivity", *J. Mater. Eng. Perform.* 3, 370-375, **2006**.
- Y. Yang, T. Zhang, L. Le, X. Ruan, P. Fang, C. Pan, R. Xiong, J. Shi, J. Wei, "Quick and facile preparation of visible light-driven TiO<sub>2</sub> photocatalyst with high absorption and photocatalytic activity". *Sci. Rep.* 7045, **2014**.
- X. Chen, Y. Cheng, T. Li, Y. Cheng, "Characteristics and applications of plasma assisted chemical processes and reactors". *Curr. Opin. Chem. Eng.* 68-77, **2017**.
- A. Gleizes, J. J. Gonzalez and P. Freton, "Thermal plasma modelling", *J. Phys. D: Appl. Phys.* 9, R153, **2005**.
- H.M. Fahmy, A.A. Hassan, G.F. Abdelfatah, S.Y. Mohamed, M.H. Gaber, "Effect of cold plasma on the bilayer lipid membrane", *J. Bionanosci.* 2, 233-239, **2018**.
- S.K. Pankaj, K.M. Keener, "Cold plasma: Background, applications and current trends", *Curr. Opin. Food Sci.* 49-52, **2017**.
- T. Caldwell, H. Le, L. Lobban, R. Mallinson, "Partial oxidation of methane to form synthesis gas in a tubular AC plasma reactor", *Stud. Surf. Sci. Catal.* 265-270, **2001**.
- V. Nehra, A. Kumar, H. Dwivedi, "Atmospheric non-thermal plasma sources", *Int. J. Eng.* 1, 53-68, **2008**.
۳۵. ا. حاجی، "مروری بر روش‌ها و فناوری‌های بهبود جذب و ثبات مواد رنگزای طبیعی بر روی الیاف پنبه"، نشریه علمی مطالعات در دنیای رنگ، ۳، ۴۴-۳۳، **۱۳۹۶**.
۳۶. م.م. صالحی برمی، م. عطایی‌فرد، س. مرادیان، "مقایسه چاپ‌پذیری انواع مختلف پلی‌اتیلن سبک به روش پلاسما و کرونا"، علوم و فناوری رنگ، ۲، ۱۲۰-۱۱۳، **۱۳۹۶**.
۳۷. ه. غلامیان، "بهبود چسبندگی پوشش‌های رنگی به چوب با استفاده از آمایش سطحی پلاسما"، علوم و فناوری رنگ، ۱، ۴۷-۴۱، **۱۳۹۹**.
- A. Haji, "Dyeing of Cotton Fabric with Natural Dyes Improved by Mordants, Plasma Treatment", *Prog. Color, Color. Coat.* 3, 191-201, **2019**.
- C. Sarangapani, A. Patange, P. Bourke, K. Keener, P. Cullen, "Recent advances in the application of cold plasma technology in foods", *Annu. Rev. Food Sci. Technol.* 609-629, **2018**.
- S. Hafner, M. Ehrenfeld, A.-C. Neumann, A. Wieser, "Comparison of the bactericidal effect of cold atmospheric pressure plasma (CAPP), antimicrobial photodynamic therapy

- (aPDT), and polyhexanide (PHX) in a novel wet surface model to mimic oral cavity application", *J. Craniomaxillofac. Surg.* 12, 2197-2202, **2018**.
41. M. Laroussi, T. Akan, "Arc-free atmospheric pressure cold plasma jets: a review", *Plasma Processes Polym.* 9, 777-788, **2007**.
42. L. Di, J. Zhang, X. Zhang, "A review on the recent progress, challenges, and perspectives of atmospheric-pressure cold plasma for preparation of supported metal catalysts", *Plasma Processes Polym.* 5, 1700234, **2018**.
۴۳. ب. غلامپور، ه. غلامیان، "مواد مورد مصرف در آستری و پوشش‌های چوب و انواع روش‌های میکروسکوپی جهت ارزیابی آن‌ها"، نشریه علمی مطالعات در دنیای رنگ، ۴، ۷۶-۶۵، ۱۳۹۸.
۴۴. م. نواب مقدم، ش. خامنه ازل، "مروری بر کاربردها و خواص سایشی پوشش‌های کربن شبه الماس"، نشریه علمی مطالعات در دنیای رنگ، ۳، ۱۴-۱، ۱۳۹۸.
45. J. E. Foster, S. Mujovic, J. Groele, I. M. Blankson, "Towards high throughput plasma based water purifiers: design considerations and the pathway towards practical application". *J Phys D: Appl Phys.* 29, 293001, **2018**.
46. M. Magureanu, C. Bradu, V. Parvulescu, "Plasma processes for the treatment of water contaminated with harmful organic compounds". *J. Phys. D: Appl. Phys.* 31, 313002, **2018**.
47. A.M. Vandenbroucke, R. Morent, N. De Geyter, C. Leys, "Non-thermal plasmas for non-catalytic and catalytic VOC abatement". *J. Hazard Mater.* 30-54, **2011**.
48. J.O. Jo, S.H. Moon, Y.S. Mok, "Non-thermal plasma degradation of dye using an underwater dielectric barrier discharge created inside a porous hydrophobic ceramic tube", *Color. Technol.* 2, 73-80, **2015**.
49. M. Tichonovas, E. Krugly, V. Racys, R. Hippler, V. Kauneliene, I. Stasiulaitiene, D. Martuzevicius, "Degradation of various textile dyes as wastewater pollutants under dielectric barrier discharge plasma treatment". *Chem. Eng. J.* 9-19, **2013**.
50. H. Wang, H. Guo, Q. Wu, G. Zhou and C. Yi, "Effect of activated carbon addition on H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> formation and dye decoloration in a pulsed discharge plasma system". *Vacuum.* 99-105, **2016**.
51. T. Wang, G. Qu, S. Pei, D. Liang, S. Hu, "Research on dye wastewater decoloration by pulse discharge plasma combined with charcoal derived from spent tea leaves". *Environ. Sci. Pollut. Res.* 13, 13448-13457, **2016**.
52. D. Merouani, F. Abdelmalek, F. Taleb, M. Martel, A. Semmoud, A. Addou, "Plasma treatment by gliding arc discharge of dyes/dye mixtures in the presence of inorganic salts". *Arabian J. Chem.* 2, 155-163, **2015**.
53. D. Shutov, P. Bogdanov, P. Pleskunov, "Destruction of organic dyes in aqueous solution by low-temperature plasma jet treatment". *High Energy Chem.* 1, 77-81, **2016**.
54. X. Zhang, W. Feng, Z. Yu, S. Li, J. Zhu, K. Yan, "Comparison of styrene removal in air by positive and negative DC corona discharges". *Int. J. Environ. Sci. Technol.* 6, 1377-1382, **2013**.
55. B. Jiang, J. Zheng, S. Qiu, M. Wu, Q. Zhang, Z. Yan, Q. Xue, "Review on electrical discharge plasma technology for wastewater remediation". *Chem. Eng. J.* 348-368, **2014**.
56. U. Kogelschatz, "Filamentary, patterned, and diffuse barrier discharges". *IEEE Trans. Plasma Sci.* 4, 1400-1408, **2002**.
57. U. Kogelschatz, "Dielectric-barrier discharges: their history, discharge physics, and industrial applications". *Plasma Chem. Plasma Process.* 1, 1-46, **2003**.
58. U. Kogelschatz, B. Eliasson, W. Egli, "From ozone generators to flat television screens: history and future potential of dielectric-barrier discharges". *Pure Appl. Chem.* 10, 1819-1828, **1999**.
59. M. Kraus, B. Eliasson, U. Kogelschatz, A. Wokaun, "CO<sub>2</sub> reforming of methane by the combination of dielectric-barrier discharges and catalysis". *Phys. Chem. Chem. Phys.* 3, 294-300, **2001**.
60. W. Lu, Y. Abbas, M.F. Mustafa, C. Pan, H. Wang, "A review on application of dielectric barrier discharge plasma technology on the abatement of volatile organic compounds", *Front. Environ. Sci. Eng.* 2, 30, **2019**.
61. A.H. Khoja, M. Tahir, N.A.S. Amin, "Recent developments in non-thermal catalytic DBD plasma reactor for dry reforming of methane", *Energy Convers. Manage.* 183, 529-560, **2019**.
62. H. Ge, D. Hu, X. Li, Y. Tian, Z. Chen, Y. Zhu, "Removal of low-concentration benzene in indoor air with plasma-MnO<sub>2</sub> catalysis system", *J. Electrostat.* 76, 216-221, **2015**.
63. V. Scholtz, J. Pazlarova, H. Souskova, J. Khun, J. Julak, "Nonthermal plasma—A tool for decontamination and disinfection", *Biotechnol. Adv.* 6, 1108-1119, **2015**.
64. J. Karuppiah, P. Manoj Kumar Reddy, E. Linga Reddy, C. Subrahmanyam, "Catalytic Non-Thermal Plasma Reactor for Decomposition of Dilute Chlorobenzene", *Plasma Processes Polym.* 12, 1074-1080, **2013**.
65. J. Ehlbeck, U. Schnabel, M. Polak, J. Winter, "Th. von Woedtke, R. Brandenburg, T. von dem Hagen, K.-D. Weltmann", *J. Phys. D: Appl. Phys.* 1, 013002, **2011**.
66. J.R. Roth. "Industrial plasma engineering: Volume 2: Applications to nonthermal plasma processing". CRC press. **2001**.
67. C. Jia, P. Chen, W. Liu, B. Li, Q. Wang, "Surface treatment of aramid fiber by air dielectric barrier discharge plasma at atmospheric pressure", *Appl. Surf. Sci.* 9, 4165-4170, **2011**.
68. M. Magureanu, D. Piroi, N. Mandache, V. David, A. Medvedovici, C. Bradu, V. Parvulescu, "Degradation of antibiotics in water by non-thermal plasma treatment", *Water. Res.* 11, 3407-3416, **2011**.
69. A.H. Khoja, M. Tahir, N.A.S. Amin, "Cold plasma dielectric barrier discharge reactor for dry reforming of methane over Ni/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO nanocomposite". *Fuel Process. Technol.* 166-179, **2018**.
70. J. Feng, Z. Zheng, Y. Sun, J. Luan, Z. Wang, L. Wang, J. Feng, "Degradation of diuron in aqueous solution by dielectric barrier discharge", *J. Hazard. Mater.* 1-3, 1081-1089, **2008**.
71. F. Holzer, F. Kopinke, U. Roland, "Influence of ferroelectric materials and catalysts on the performance of non-thermal plasma (NTP) for the removal of air pollutants", *Plasma Chem. Plasma Process.* 6, 595-611, **2005**.
72. O. Khalifeh, A. Mosallanejad, H. Taghvaei, M.R. Rahimpour, A. Shariati, "Decomposition of methane to hydrogen using nanosecond pulsed plasma reactor with different active volumes, voltages and frequencies", *Appl. Energy.* 585-596, **2016**.
73. M.S.I. Khan, Y.-J. Kim, "Dielectric barrier discharge (DBD) plasma induced flavonoid degradation kinetics and mechanism in water", *LWT.* 108777, **2020**.
74. S. Ognier, D. Iya-Sou, C. Fourmond, S. Cavadias, "Analysis of mechanisms at the plasma-liquid interface in a gas-liquid discharge reactor used for treatment of polluted water". *Plasma Chem. Plasma Process.* 4, 261-273, **2009**.
75. P.M.K. Reddy, S. Mahammadunnisa, C. Subrahmanyam, "Catalytic non-thermal plasma reactor for mineralization of endosulfan in aqueous medium: A green approach for the treatment of pesticide contaminated water". *Chem. Eng. J.* 157-163, **2014**.
76. J. Xue, L. Chen, H. Wang, "Degradation mechanism of Alizarin Red in hybrid gas-liquid phase dielectric barrier discharge plasmas: experimental and theoretical examination". *Chem. Eng. J.* 1, 120-127, **2008**.
77. D. He, Y. Sun, S. Li, J. Feng, "Decomposition of tetracycline



- in aqueous solution by corona discharge plasma combined with a  $\text{Bi}_2\text{MoO}_6$  nanocatalyst", *J. Chem. Technol. Biotechnol.* 12, 2249-2256, **2015**.
78. J. Ren, N. Jiang, K. Shang, N. Lu, J. Li, Y. Wu, "Synergistic degradation of trans-ferulic acid by water falling film DBD plasma coupled with cobalt oxyhydroxide: Performance and mechanisms", *Chem. Eng. J.*, 321-331, **2019**.
  79. S. Tang, D. Yuan, Y. Rao, N. Li, J. Qi, T. Cheng, Z. Sun, J. Gu, H. Huang, "Persulfate activation in gas phase surface discharge plasma for synergetic removal of antibiotic in water", *Chem. Eng. J.* 446-454, **2018**.
  80. M. Peleg, "The chemistry of ozone in the treatment of water", *Water. Res.* 5, 361-365, **1976**.
  81. G. Zhang, Y. Sun, C. Zhang, Z. Yu, "Decomposition of acetaminophen in water by a gas phase dielectric barrier discharge plasma combined with  $\text{TiO}_2$ -rGO nanocomposite: Mechanism and degradation pathway", *J. Hazard. Mater.* 719-729, **2017**.
  82. S. Ma, S. Lee, K. Kim, J. Im, H. Jeon, "Purification of organic pollutants in cationic thiazine and azo dye solutions using plasma-based advanced oxidation process via submerged multi-hole dielectric barrier discharge", *Sep. Purif. Technol.* 117715, **2020**.
  83. C. Weigang, W. Haixia, F. Jiawei, F. Zhi, L. Shao-hua, "Activated persulfate by DBD plasma and activated carbon for the degradation of acid orange II", *Plasma Sci. Technol.* 3, 034009, **2019**.
  84. Q. Tang, W. Jiang, Y. Zhang, W. Wei, T. Lim, "Degradation of azo dye acid red 88 by gas phase dielectric barrier discharges", *Plasma Chem. Plasma Process.* 4, 291-305, **2009**.
  85. J. Chen, Y. Du, Z. Shen, S. Lu, K. Su, S. Yuan, Z. Hu, A. Zhang, J. Feng, "Non-thermal plasma and  $\text{BiPO}_4$  induced degradation of aqueous crystal violet". *Sep Purif Technol.* 135-144, **2017**.
  86. J. Chen, J. Feng, S. Lu, Z. Shen, Y. Du, L. Peng, P. Nian, S. Yuan, A. Zhang, "Non-thermal plasma and  $\text{Fe}^{2+}$  activated persulfate ignited degradation of aqueous crystal violet: degradation mechanism and artificial neural network modeling". *Sep Purif Technol.* 75-85, **2018**.
  87. Y. S. Mok, J. O. Jo, J.C. Whitehead, "Degradation of an azo dye Orange II using a gas phase dielectric barrier discharge reactor submerged in water". *Chem Eng J.* 1, 56-64, **2008**.
  88. W. Ying, W. Weiwei, J. Yingchao, L. Hong, W. Qihong, "Evidence of hydroxyl radical created by DBD plasma in water and its application in dye wastewater remediation", *Funct. Mater.* **2016**.
  89. S. Pankaj, Z. Wan, W. Colonna, K.M. Keener, "Degradation kinetics of organic dyes in water by high voltage atmospheric air and modified air cold plasma". *Water Sci. Technol.* 3, 567-574, **2017**.
  90. Y. Nakagawa, S. Mitamura, Y. Fujiwara, T. Nishitani, "Decolorization of rhodamine B in water by pulsed high-voltage gas discharge". *Jpn. J. Appl. Phys.* 3R, 1422, **2003**.
  91. Y. Minamitani, S. Shoji, Y. Ohba, Y. Higashiyama, "Decomposition of dye in water solution by pulsed power discharge in a water droplet spray". *IEEE Trans. Plasma Sci.* 5, 2586-2591, **2008**.
  92. L. Chandana, P. M. K. Reddy, C. Subrahmanyam, "Atmospheric pressure non-thermal plasma jet for the degradation of methylene blue in aqueous medium". *Chem. Eng. J.* 116-122, **2015**.
  93. Y. Sun, Y. Liu, R. Li, G. Xue, S. Ognier, "Degradation of reactive blue 19 by needle-plate non-thermal plasma in different gas atmospheres: kinetics and responsible active species study assisted by CFD calculations", *Chemosphere.* 243-249, **2016**.
  94. R. Jingyu, W. Tiecheng, Q. Guangzhou, L. Dongli, H. Shibin, "Evaluation and Optimization of Electrode Configuration of Multi-Channel Corona Discharge Plasma for Dye-Containing Wastewater Treatment", *Plasma Sci. Technol.* 12, 1053, **2015**.
  95. B. Sun, N.N. Aye, Z. Gao, D. Lv, X. Zhu, M. Sato, "Characteristics of gas-liquid pulsed discharge plasma reactor and dye decoloration efficiency", *J. Environ. Sci.* 5, 840-845, **2012**.
  96. Y. Zhang, J. Zheng, X. Qu, H. Chen, "Design of a novel non-equilibrium plasma-based water treatment reactor", *Chemosphere.* 8, 1518-1524, **2008**.
  97. B. Jiang, J. Zheng, Q. Liu, M. Wu, "Degradation of azo dye using non-thermal plasma advanced oxidation process in a circulatory airtight reactor system", *Chem Eng J.* 32-39, **2012**.
  98. X.-L. Hao, M.-H. Zhou, Y. Zhang, L.-C. Lei, "Enhanced degradation of organic pollutant 4-chlorophenol in water by non-thermal plasma process with  $\text{TiO}_2$ ", *Plasma Chem. Plasma Process.* 5, 455-468, **2006**.
  99. M. Arif Malik, A. Ghaffar, K. Ahmed, "Synergistic effect of pulsed corona discharges and ozonation on decolorization of methylene blue in water". *PSST.* 3, 236-240, **2002**.
  100. M. Magureanu, D. Piroi, F. Gherendi, N.B. Mandache, V. Parvulescu, "Decomposition of methylene blue in water by corona discharges", *Plasma Chem. Plasma Process.* 6, 677-688, **2008**.
  101. Y. Zhang, X. Xiong, Y. Han, H. Yuan, S. Deng, H. Xiao, F. Shen, X. Wu, "Application of titanium dioxide-loaded activated carbon fiber in a pulsed discharge reactor for degradation of methyl orange", *Chem Eng J.* 3, 1045-1049, **2010**.
  102. J. Li, Z. Zhou, H. Wang, G. Li, Y. Wu, "Research on decoloration of dye wastewater by combination of pulsed discharge plasma and  $\text{TiO}_2$  nanoparticles", *Desalination.* 1-3, 123-128, **2007**.
  103. L. Grabowski, E. Van Veldhuizen, A. Pemen, W. Rutgers, "Breakdown of methylene blue and methyl orange by pulsed corona discharge", *Plasma Sources Sci. Technol.* 2, 226, **2007**.
  104. F. Abdelmalek, M.R. Ghezzar, M. Belhadj, A. Addou, J.-L. Brisset, "Bleaching and degradation of textile dyes by nonthermal plasma process at atmospheric pressure", *Ind Eng Chem Res.* 1, 23-29, **2006**.
  105. R. Burlica, B.R. Locke, "Pulsed plasma gliding-arc discharges with water spray", *IEEE Trans Ind Appl.* 2, 482-489, **2008**.
  106. T. Yano, I. Uchiyama, F. Fukawa, K. Teranishi, N. Shimomura, "Water treatment by atmospheric discharge produced with nanosecond pulsed power", 2008 IEEE International Power Modulators and High-Voltage Conference. **2008**.