



## Acid Blue 264 azo boyasının Fenton ve ultras-es-Fenton oksidasyon yöntemleri ile renk ve KOİ gideriminin araştırılması

### Investigation of color and COD removal of Acid Blue 264 azo dye by Fenton and ultrasound-Fenton oxidation methods

Dilan Toprak<sup>1,\*</sup> , Savaş Şener<sup>2</sup> 

<sup>1</sup> Harran Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, 63510, Şanlıurfa, Türkiye

<sup>2</sup> Mersin Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, 33110, Mersin, Türkiye

#### Özet

Bu çalışmada Acid blue 264 azo boyasının Fenton ve ultras-es-Fenton yöntemleri ile renk ve kimyasal oksijen ihtiyacı (KOİ) giderimi araştırılmıştır. Bu amaçla, başlangıç pH'sı, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu, Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu ve reaksiyon süresi gibi parametrelerin etkisi karşılaştırılmalı olarak incelenmiştir. Fenton prosesinde en yüksek renk ve KOİ giderimi pH = 3.5, [Fe<sup>2+</sup>] = 180 mg/L, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 125 mg/L ve reaksiyon süresi 75 dakika koşullarında sırasıyla %88.5 ve %76 olmuştur. Ultras-es-Fenton prosesinde 20 kHz ultras-es frekansta pH = 3.5, [Fe<sup>2+</sup>] = 180 mg/L, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 100 mg/L ve reaksiyon süresi 45 dakika olduğunda en iyi renk ve KOİ giderimi sırası ile %96.6 ve %88.5 olarak elde edilmiştir. Sonuçlar ultras-es-Fenton işleminde azalan kimyasal tüketimi ile renk ve KOİ gideriminin arttığını göstermiştir. Ayrıca Fenton prosesine kıyasla reaksiyon süresi de kısalmıştır. Elde edilen bulgulara göre ultras-es Fenton prosesi daha kısa reaksiyon süresi ve daha az kimyasal sarfiyatı ile Fenton yöntemine göre daha ekonomik şekilde Acid Blue 264 azo boyasının gideriminde alternatif bir yöntem olarak kullanılabilir.

**Anahtar kelimeler:** Ultras-es-Fenton oksidasyon, Fenton, azo boya, Acid Blue 264

#### Abstract

In this study, color and chemical oxygen demand (COD) removal of Acid blue 264 azo dye by Fenton and ultrasound-Fenton methods was investigated. For this purpose, the effects of parameters such as initial pH, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> concentration, Fe<sup>2+</sup> concentration and reaction time were studied comparatively. The highest color and COD removal for Fenton process found at the optimum condition of pH = 3.5, [Fe<sup>2+</sup>] = 180 mg / L, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 125 mg/L and reaction time 75 minutes were 88.5% and 76%, respectively. In the Ultras-es-Fenton process, at 20 kHz ultrasound frequency, when pH = 3.5, [Fe<sup>2+</sup>] = 180 mg/L, [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 100 mg/L and reaction time was 45 minutes, the highest color and COD removal was achieved as 96.6% and 88.5%, respectively. The results showed that the color and COD removal increased with reduced chemical consumption in the ultrasound-Fenton process. In addition, the reaction time is shortened compared to the Fenton process. According to the data obtained, the ultrasound Fenton process can be used as an alternative method for the removal of Acid Blue 264 azo dye more economically than Fenton method with its shorter reaction time and less chemical consumption.

**Keywords:** Ultrasound-Fenton oxidation, Fenton, Azo dye, Acid Blue 264

#### 1 Giriş

Endüstrilerin boyama faaliyetlerinde kullanılan organik boyar maddeler yaklaşık 12 sınıftan oluşmaktadır. Ticari boyaların 100 000'den fazla çeşidinin olduğu ve üretiminin tahminen yıllık 80 000 tonu aştığı belirtilmektedir[1, 2]. Boyalar; tekstil, seramik, plastik, mürekkep, kozmetik, sabun, boya, kağıt ve gıda gibi çeşitli endüstrilerde kullanılmaktadır[1]. Tekstil ve baskı endüstrilerinde genellikle N=N- bağını içeren azo boyaların kullanımı yaygındır[3]. Boyama işlemi sonrasında kullanılan boyanın %10-15'lik kısmı kalıntı olarak atıksuya geçmektedir[4]. Bu boyalar kullanıldıktan sonra atıksu bünyesinde düşük konsantrasyonlarda bulunsun da atılmadan doğaya deşarj edildiklerinde çevre sorunlarına sebep olmaktadır[5, 6]. Su kütlesindeki renk sadece estetik açıdan değil aynı zamanda ışığın nüfuz etmesine engel olarak fotosentezi de

azaltmaktadır. Birçok boyanın veya metabolitlerinin suda yaşayan canlılar ve insanlar üzerinde kanserojen, mutajenik ve toksik etkileri bulunmaktadır[3, 7].

Boya ve bileşikleri içerdikleri metal ve klorür gibi maddelerden dolayı sucul ekosistemdeki canlılar için toksik etkiye sahiptir[8]. Bu sebeple suda istenmeyen kirleticilerden olup deşarj edilmeden önce giderilmesi gerekir. Genel olarak boyalı atıksuların arıtılmasında biyolojik, kimyasal ve fiziksel yöntemler kullanılmaktadır. Azo boyalar zor ayrışan organik moleküler yapıda olduğundan aerobik arıtma yöntemlerine karşı dirençlidir. Bu durum yeterli düzeyde giderimini engellemektedir[9]. Anaerobik koşullarda ise azo boyaların bozunması sonucunda toksik aromatik aminler oluşmaktadır ve bunlar

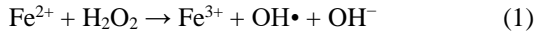
\* Sorumlu yazar / Corresponding author, e-posta / e-mail: dilantoprak1@gmail.com (D. Toprak)

Geliş / Received: 10.06.2020 Kabul / Accepted: 08.06.2021 Yayınlanma / Published: 27.07.2021

doi: 10.28948/ngumuh.749438

başlangıçtaki durumlarından daha zararlı olabilmektedir [10]. Biyolojik arıtma, fiziksel ve kimyasal işlemlerle karşılaştırıldığında ekonomik olsa da toksik ve düşük biyobozunur boyaların gideriminde etkisi genellikle kısıtlı düzeydedir [11]. Bu sebeple azo boyaları içeren atıksuların arıtılması için adsorpsiyon [12], koagülasyon [13], elektrokoagülasyon, ozonlama [14] ve Fenton oksidasyonu gibi birçok farklı fizikokimyasal arıtma yöntemleri kullanılmaktadır. Adsorpsiyon verimi kullanılan adsorbent ve kirletici türüne bağlıdır. Kirleticilerin sıvı fazdan katı faza geçişine dayanan geçici bir arıtma yöntemidir. Ayrıca adsorbent malzemelerinin rejenerasyonu pahalıdır ve oluşan katı atıkların nihai arıtımı gerekmektedir. Koagülasyon, dispers boyaların gideriminde kullanılabilir, ancak çözünmüş boyalar için etkili bir yöntem olmayabilir. Ayrıca yine arıtılması gereken yüksek miktarlarda kimyasal arıtma çamuru oluşmaktadır. Renk giderimi için ozonlama yöntemi etkili bir yöntem olmakla birlikte yüksek maliyeti kullanımını sınırlamaktadır [15]. Fenton yöntemi ile boya gideriminde hidroksil radikalleri (OH•) gibi oldukça reaktif ve güçlü oksidan türlerinin oluşumuna dayanan, organik moleküllerin neredeyse tamamını mineralize eden, gelişmiş oksidasyon süreçlerini içeren daha etkili işlemlerin kullanılması gerekmektedir. Hidroksil radikallerinin renk gideriminde etkili olduğu bilinmektedir [16].

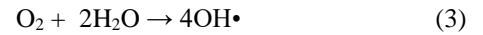
Fenton oksidasyonu en yaygın kullanılan ileri oksidasyon yöntemlerinden biridir. Fenton prosesi asit ilavesi ile pH'ın asidik seviyeye ayarlandığı, oksidasyon reaksiyonu, nötralizasyon ve koagülasyon olmak üzere dört aşamada gerçekleşmektedir [17]. Oksidasyon mekanizması, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 'in asidik koşullar altında katalizör demir iyonları (Fe<sup>2+</sup>) ile reaksiyonu sonucunda hidroksil radikallerinin (OH•) üretimine dayanır. Gerçekleşen reaksiyon **Denklem 1**'de sunulmuştur [18]. Hidroksil radikali en güçlü ikinci oksidanttır. Çoğu organik molekülün parçalanmasında etkili olup çok seçici değildir [19]. Tam mineralizasyon durumunda daha düşük moleküler ağırlıklı yeni ara maddeler veya karbondioksit ve su oluşmaktadır [20].



Fenton prosesinde Fe<sup>2+</sup> katalizörü ile H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> reaksiyonu yavaş gerçekleşirken, Fe<sup>2+</sup> katalizörü daha hızlı oluşan Fe<sup>3+</sup>'e dönüşebilir. Bu durum oksidasyon reaksiyonunda Fe<sup>2+</sup> katalizörünün miktarını azalttığından Fenton reaksiyonunun hızını da azaltmaktadır. Bazı çalışmalarda Fe<sup>3+</sup> 'ün Fe<sup>2+</sup> ye dönüşümünün ultrases işlemi ile hızlandırılabilceği ve oksidasyon reaksiyonunu artırılabilceği belirtilmiştir[21, 22].

Ultrases işlemi güvenli, temiz, ikincil kirletici oluşturmaması ve yüksek geçirgenlik gibi avantajları nedeniyle dikkat çeken bir yöntemdir [23]. Ultrases işlemi suyun kaviteasyon olayına dayanmaktadır [24]. Ultrases kaviteasyonu ile suyun fiziksel ve kimyasal yapısı değiştirilerek hava kabarcıkları oluşur, büyür ve iç/dış basınç

etkisiyle patlar sonuç olarak H•, OH•, O• ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> gibi oksitleyici radikaller üretilir [25, 26]. Ultrases işleminde gerçekleşen reaksiyonlar **Denklem 2** ve **Denklem 3**'te sunulmuştur. Üretilen radikaller zor ayrışan organik kirleticilerin bozunmasında kullanılmaktadır [27]. Fakat ultrases işlemi sınırlı bozunma oranına sahip olduğundan organik kirleticilerin arıtımında tek başına yeterli değildir [28]. Ayrıca ultrases işleminde pahalı ekipmanların kullanılması ve bunların yüksek enerjiye gereksinim duyması gerçek ölçekli su arıtma tesislerinde kullanımını kısıtlamaktadır. Bu nedenle ultraviyole gibi farklı enerji kaynaklarının kullanıldığı, katalizör ve kimyasal (Ör; Fenton reaktifleri, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) ilavelerinin yapıldığı birleşik sistemler üzerine araştırmalar yapılmaktadır [29–31]. Son yıllardaki çalışmalarda kirletici gideriminde performansın artırılması amacıyla ultrases işlemi ile Fenton oksidasyon yönteminin birleştirildiği modifiye sistemlere ilgi artmıştır[23, 25, 32–34].



Literatürde renk ve KOİ gideriminde Fenton ve ultrases-Fenton proseslerinin kullanıldığı bazı çalışmalar mevcuttur. Fenton prosesi ile Direct Blue 71 boyasının giderildiği çalışmada başlangıç pH değeri, Fe<sup>2+</sup> ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonları, boya konsantrasyonu ve sıcaklık parametrelerinin renk ve KOİ giderimi üzerine etkisi kesikli reaktörlerde araştırılmış ve yöntemin performansını etkilediği belirtilmiştir. Deney sonuçlarına göre boya çözeltilisinin 100 mg/L, pH 3, Fe<sup>2+</sup> 'nin 3 mg/L ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 'nin 125 mg/L ve reaksiyon süresinin 20 dk olduğu optimum koşullarda %94 renk ve %50.7 KOİ giderimi elde edilmiştir [18]. Ultrases-Fenton oksidasyonu ile Acid Red 88 sulu çözeltilisinin gideriminin incelendiği bir çalışmada pH 3'te ve 40 kHz frekansta 135 dk'lık ultrases işlemi sonunda rengin %98.6'sı giderilmiştir [35]. Literatürde her iki yöntemin kullanılarak yapıldığı çalışmalar ile sinerjik etki oluştuğu ve azalan kimyasal sarfiyatı ve daha kısa reaksiyon süresi ile renk giderimleri elde edilmiştir. Özdemir vd. [15] Reactive Yellow 145 boyasıyla hazırladıkları sentetik atıksuyun renk ve KOİ gideriminde Fenton ve ultrases-Fenton yöntemlerinin performanslarını kıyaslamışlardır. Fenton oksidasyonu için optimum pH 3, Fe<sup>2+</sup> ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonları 20 mg/L koşullarında renk giderimi %91 ve KOİ giderimi %47 olmuştur. Ultrases-Fenton deneyleri ise su banyosunda 35 kHz frekans ve 80 W güçte gerçekleştirilmiş ve pH'ın 3, Fe<sup>2+</sup> ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonlarının sırasıyla 20 mg/L ve 15 mg/L olduğu optimum koşullarda %95 renk ve %51 KOİ giderimi sağlanmıştır [15]. Benzer bir çalışmayı Reactive Orange 127 boyası içinde gerçekleştirmişlerdir. Fenton oksidasyonu için Fe<sup>2+</sup> ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonları sırasıyla 20 mg/L ve 15 mg/L olduğunda renk giderimi %89.9 olarak belirtilmiştir. Ultrases-Fenton deneylerinde demir tüketiminde bir miktar artış olsada (25 mg/L) H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu azalmış ve 5 mg/L olmuştur. Renk giderimi ise %92 olarak hesaplanmıştır [36]. Acid Blue 15 boyasından hazırlanan 100 mg/L boya

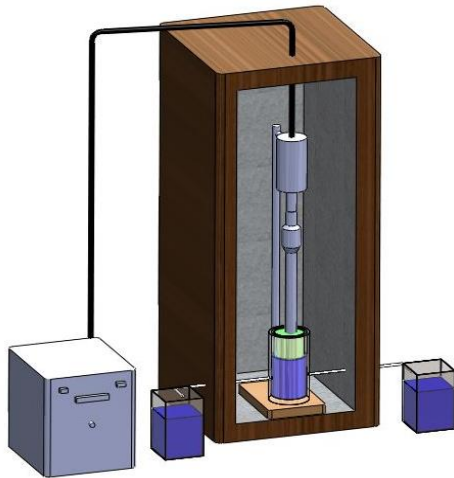
çözeltilisinin renk gideriminin araştırıldığı çalışmada ultrases-Fenton deney koşulları optimize edilmiştir. pH'ın 3, demir katalizörünün 1 g/L ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunun 10 mM olduğu koşullarda toplam organik karbon ve renk giderimi sırasıyla %40.4 ve %99.3 olmuştur. Fenton prosesinde boyanın renksizleşmesi ilk 30 dk içerisinde gerçekleşmiş ve 100 dk'lık reaksiyon süresinin sonunda ise boyanın bozduğu rapor edilmiştir. Ultrases-Fenton ile renk giderimi ilk 5 dk içerisinde hızla gerçekleşmiş ve boyanın bozunması 20 dk da gerçekleşmiştir. Sonuçlar doğrultusunda ultrases-Fenton ile sinerjik bir etki oluştuğu ve renk giderim performansını arttırdığı belirtilmiştir [32].

Atıksudaki boyaaların arıtılması için Fenton ve modifiye Fenton yöntemlerinin kullanıldığı, renk ve KOİ giderim süreçleri üzerine çeşitli çalışmalar başarıyla gerçekleştirilmiştir. Tüm bu çalışmalara rağmen elyaf boyama ve baskı işleminde çokça kullanılan Acid Blue 264 [37] azo boyasının Fenton ve ultrases-Fenton yöntemi ile giderildiği herhangi bir çalışmaya rastlanılmamıştır. Bu çalışmada, Acid Blue 264 boyasının Fenton ve ultrases-Fenton yöntemleri ile oksidatif bozunmasını etkileyen pH, demir konsantrasyonu, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu ve reaksiyon süresi gibi deney parametrelerinin her bir yöntem için optimum değerlerinin belirlenmesi amaçlanmıştır. Elde edilen renk ve KOİ giderim verimleri karşılaştırılarak performansları değerlendirilmiştir.

## 2 Materyal ve metot

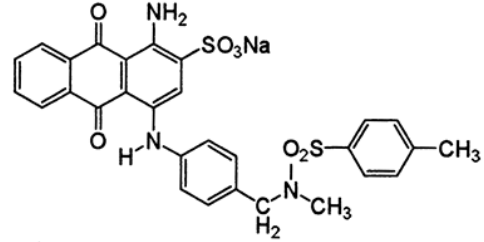
### 3.1. Materyal

Fenton oksidasyon çalışmaları için farklı devirlerde karıştırma ve zaman ayarlı olan WiseStir Jar Tester marka jar test cihazı kullanılmıştır. Ultrases-Fenton oksidasyon deneyleri ise ses yalıtımlı 30x20x60 cm boyutundaki bir kutuda yapılmıştır. Güç kaynağı kutunun dışında ve ultrases probu ise kutu içerisinde olup deney düzeneği Şekil 1'de gösterilmiştir. Ultrases-Fenton deneylerinde su cepli 600 mL'lik cam reaktör kullanılmıştır. Soğutma işlemi ise su cepli cam reaktöre bağlanan su hortumu ile gerçekleştirilmiştir. Ultrasonik işlem için 20 kHz sabit frekandaki Sonics VC 750 cihazı kullanılmıştır.



Şekil 1. Ultrases-Fenton prosesi için deney düzeneği

Deneyleerde kullanılan boya çözeltilisi Acid blue 264 azo boyası (CAS NO 39351-90-7) ile hazırlanmıştır. Stok boya çözeltilisi deiyonize su ile 1000 mg/L olarak hazırlanmıştır. Deney çalışmalarında stok çözeltilisinden 100 mg/L'ye seyreltilen boya çözeltilisi kullanılmıştır (Şekil 2). pH ayarlamaları için MERCK marka, analitik saflıkta 0,5 M NaOH ve 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> çözeltileri kullanılmıştır. Fenton ve ultrases-Fenton oksidasyon deneylerinde kullanılan kimyasal maddeler MERCK marka, %35'lik H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (yoğunluğu: 1,11 g/cm<sup>3</sup>) ve FeSO<sub>4</sub>.7H<sub>2</sub>O'dur.



Şekil 2. Acid Blue 264 boyasının moleküler yapısı [37]

### 2.2. Metot

Tüm deneylerde kullanılan Acid Blue 264 boya çözeltilisinin başlangıç KOİ'si ve renk konsantrasyonu sırasıyla 146 mg/L ve 100 ppm olarak belirtilmiştir. Fenton ve ultrases-Fenton yöntemlerinin performansını etkileyen başlangıç pH'sı, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu, Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu ve reaksiyon süresi gibi parametrelerin denendiği koşullar Tablo 1'de belirtilmiştir. Tüm kesikli deneyler oda sıcaklığında gerçekleştirilmiştir.

Tablo 1. Fenton ve ultrases-Fenton oksidasyon yöntemlerine ait deneysel koşullar

Fenton Oksidasyon			
pH	FeSO <sub>4</sub> .7H <sub>2</sub> O (mg/L)	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (mg/L)	Reaksiyon Süresi (dk)
2.0-4.5*	100	100	75
3.5	100-550**	100	75
3.5	180	50-300***	75
3.5	180	125	15-120****

\*Test edilen pH değerleri 2/2.5/2.7/3.0/3.5/3.7/4.0/4.5  
\*\* Test edilen FeSO<sub>4</sub>.7H<sub>2</sub>O konsantrasyonları (mg/L) 100/120/130/140/150/160/180/190/200/300/400/500/550  
\*\*\*Test edilen H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonları (mg/L) 50/75/100/125/150/175/200/225/250/300  
\*\*\*\*Reaksiyon süresi (dk) 15/30/45/60/75/90/120

Ultrases-Fenton Oksidasyon			
pH	FeSO <sub>4</sub> .7H <sub>2</sub> O (mg/L)	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (mg/L)	Reaksiyon Süresi (dk)
2.0-4.5*	100	100	60
3.5	100-550**	100	60
3.5	180	50-300***	60
3.5	180	100	15-120****

\*Test edilen pH değerleri 2/2.5/2.7/3.0/3.5/3.7/4.0/4.5  
\*\* Test edilen FeSO<sub>4</sub>.7H<sub>2</sub>O konsantrasyonları (mg/L) 100/120/130/140/150/160/180/190/200/300/400/500/550  
\*\*\*Test edilen H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonları (mg/L) 50/75/100/125/150/175/200/225/250/300  
\*\*\*\*Reaksiyon süresi (dk) 15/30/45/60/75/90/120

Fenton oksidasyon yöntemi ile renk ve KOİ giderim çalışmalarında deneysel parametrelerin (pH, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, Fe<sup>2+</sup> ve reaksiyon süresi) optimizasyonu yapılmıştır. Bu amaçla Acid Blue 264 azo boyası ile hazırlanan boya çözeltisinden 100 mL alınan numuneler cam beherlere ilave edilmiştir. İlk olarak numunelerin pH değerleri Tablo 1'de belirtilen değerlere getirilmiştir. Ardından FeSO<sub>4</sub>.7H<sub>2</sub>O ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> katalizörleri eklenmiştir. Numuneler jar test düzeneğinde sırasıyla 2 dk hızlı (90 rpm), 75 dk yavaş (20 rpm) karıştırılmıştır. Reaksiyon süresi sonunda reaktörlerin pH değerleri 8-10 aralığına getirilip numuneler 1 saat çökelmeye bırakılmıştır. Bu süre sonunda cam beherlerde oluşan duru fazdan 20 mL alınarak renk ve KOİ analizleri yapılmıştır.

Ultras-es-Fenton oksidasyon çalışmalarında renk ve KOİ giderim çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Bu amaçla yöntemin performansını etkileyen pH, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, Fe<sup>2+</sup> ve reaksiyon süresi gibi parametrelerin optimizasyonu çalışmaları Tablo 1'de belirtilen değerler test edilerek yapılmıştır. Ultras-es-Fenton deneylerinde 20 kHz sabit frekansta çalışan ultrasonik işletim cihazı kullanılmıştır. Bu cihazda bulunan ultras-es probu direk olarak su cepli cam reaktörün içerisindeki boya çözeltisine daldırılarak gerçekleştirilmiştir. pH ayarlaması yapılan reaktörlere, FeSO<sub>4</sub>.7H<sub>2</sub>O ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> kimyasalları ilave edilip 60 dk ultrasonik işleme tabi tutulmuştur. Reaksiyon süresi sonunda reaktörlerin pH değerleri 8-10 aralığına getirilip numuneler 1 saat çökelmeye bırakılmıştır. Reaktörün duru fazından 20 mL alınarak analitik yöntemlerde belirtilen standart metotlara göre renk ve KOİ analizleri yapılmıştır.

### 2.3. Analitik yöntemler

Fenton ve Ultras-es-Fenton deneyleri tamamlandıktan sonra 20 mL'lik numuneler alınmıştır. Alınan numunelere renk ve KOİ analizi yapılmıştır. Renk analizleri için işlem sonrasında numuneler 0.45 µ şırınga filtreden süzülüp UV-Visible spektrofotometrede (Shimadzu 160A, Japonya) 643 nm dalga boyunda ölçülmüştür. KOİ analizlerinde Velp Scientifica Eco 16 termoreaktörü kullanılmıştır. KOİ analizi Standart Metotlar Metot No: 5220'ye göre hesaplanmıştır. pH ölçümleri için Hanna HI 221 model pH metre kullanılmıştır.

## 3 Bulgular ve tartışma

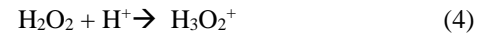
### 3.2. pH'in renk ve KOİ giderim verimine etkisi

Fenton prosesinde renk ve KOİ giderimi için asidik rejimin sağlanması önemlidir [38]. Radikaller asidik koşullarda oluştuğundan sistemin ideal pH'sının belirlenmesi gerekir. Diğer taraftan da Fe<sup>2+</sup> iyonlarının pH 5 değerlerinde kararlı olmadığı belirtilmiştir [17]. Dolayısıyla deney planında her iki yöntem için pH'ın 2-4,5 arasındaki değerleri denenmiştir. 100 mg/L boya çözeltisi ile gerçekleştirilen Fenton oksidasyon deneyleri Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu 100 mg/L, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu 100 mg/L, reaksiyon süresi 75 dk olduğu koşullarında ve Tablo 1'de belirtilen farklı pH değerlerinde denenmiştir. Elde edilen sonuçlar Şekil 3'te belirtilmiştir. Renk giderimi pH 2 ve 2.5 değerlerinde benzer bulgular olsa da pH'ın 3'e yükselmesiyle artmış ve pH'ın 3.5 olduğu reaktörlerde % 82.6 verimle en yüksek renk giderimi elde edilmiştir. pH 4.5

'e yükseldiğinde renk giderim veriminde düşüş gözlemlenmiştir. En yüksek KOİ giderim verimi de pH 3.5 olduğunda %70.6 olarak elde edilmiştir.

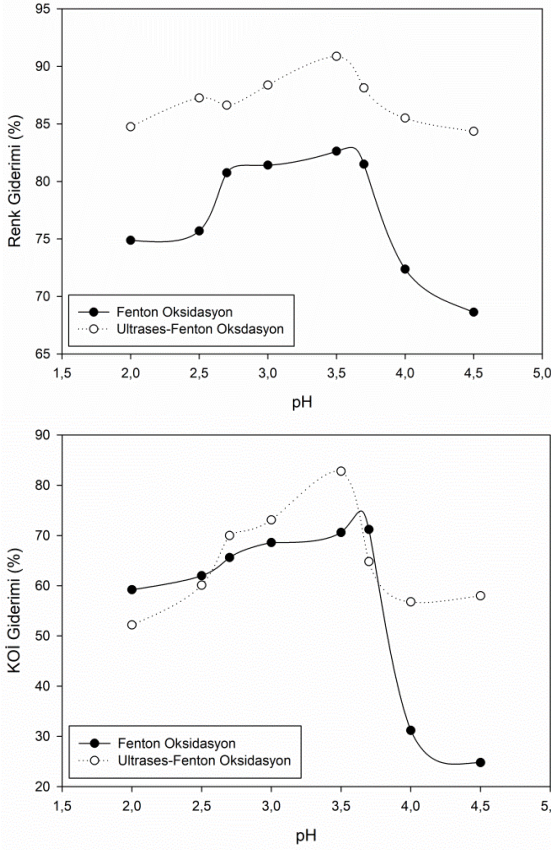
Ultras-es-Fenton prosesinde deneyler 100 mg/L boya çözeltisi, Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu 100 mg/L, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu 100 mg/L ve reaksiyon süresi 60dk olduğu koşullarda gerçekleştirilmiştir. Şekil 3'te belirtildiği gibi ultras-es-Fenton deneylerinde renk giderimi pH'ın 3.5 değerine kadar artış göstermiştir. Daha yüksek pH değerlerinde ise renk gideriminde azalma meydana gelmiştir. KOİ giderimdeki sonuçlar da benzer eğilim göstermiştir. Ultras-es-Fenton deneylerinde sırasıyla renk ve KOİ giderimi %90.8 ve %82.8 olarak hesaplanmıştır. Fenton oksidasyonu ile aynı ideal pH değeri elde edilse de sonuçlar göz önüne alındığında ultras-es işleminle modifiye edilen deneylerde daha yüksek giderim performansı elde edilmiştir.

Özdemir vd. [15] yaptığı çalışma sonuçlarında da benzer bir eğilim gözlemlenmiştir. Kochany vd. [17] çalışmasında ise Fenton prosesi için ideal pH seviyesi 3.5 olarak belirlemiştir. Asidik pH koşullarında H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ve demir iyonları daha dengeli ve kararlı yapıdadır [17]. Bu durum hidroksil radikallerinin oluşumunu ve organik kirleticilerin giderimini doğrudan etkilemektedir [39]. Yüksek pH değerlerinde Fe<sup>3+</sup>, Fe(OH)<sub>3</sub> olarak çökelebilmekte ve hidrojen peroksiti O<sub>2</sub> ve H<sub>2</sub>O reaksiyonuna katalize etmektedir. Bu durum OH• üretimini azaltmaktadır. Ayrıca pH'ın 3.5'ten daha yüksek olduğu durumlarda genellikle Fenton işlemi yerine dengeğin Fe(OH)<sub>3</sub> tarafından kontrol edildiği ve koagülasyon gibi süreçlerin gerçekleştiği belirtilmiştir. Düşük pH'ta (pH<2) H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> bir proton alarak kararlı kalacağı okson iyonuna (H<sub>3</sub>O<sub>2</sub><sup>+</sup>) dönüşür. Bu yüzden Fe<sup>2+</sup> ile reaksiyonu yavaşlayabilmektedir (Denklem 4). Denklem 5'de belirtildiği gibi düşük pH seviyelerinde H<sup>+</sup> iyonları hidroksil radikalleriyle reaksiyona girecektir [40].



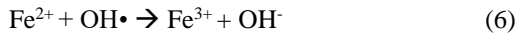
### 3.3. Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonunun renk ve KOİ giderim verimine etkisi

Fenton prosesinde Fe<sup>2+</sup> katalizörü kullanılarak H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ayrıştırılmakta ve OH• üretilmektedir. Prosesin ihtiyaç duyduğu Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonunun optimizasyonu kimyasal arıtma çamuru miktarının azaltılması ve kimyasal sarfiyatından kaynaklı maliyetin düşürülmesi için önemlidir [15]. Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonları, Fenton ve ultras-es-Fenton deneylerinde pH 3.5'te sabit H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunda (100 mg/L) ve sırasıyla 75 dk ve 60 dk reaksiyon süresinde Tablo 1'de (100 ile 550 mg/L) belirtilen aralıklarda denenmiştir. Şekil 4'te görüldüğü gibi renk ve KOİ giderimleri 100-180 mg/L aralığında artan Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu ile artmış ve optimum seviyesinde en yüksek değere ulaşmıştır. Her iki oksidasyon yönteminde Acid Blue 264 azo boya çözeltisinin en yüksek renk ve KOİ giderimi 180 mg/L Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonunda gerçekleşmiştir.



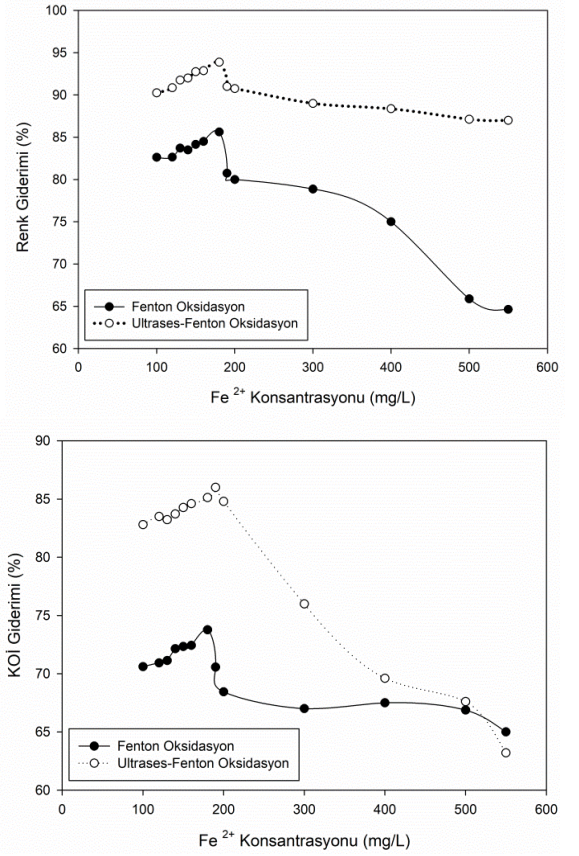
Şekil 3. Fenton ve Ultrases Fenton proseslerine pH'nın renk ve KOİ giderimine etkisi

Fenton oksidasyonu için giderim performansları sırasıyla %83.2 ve %73.77 iken ultrases-Fenton oksidasyonu için sırasıyla % 93.88 ve % 85.13 olarak hesaplanmıştır. Fazla Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu hidroksil radikalleri ile tepkimeye girerek radikal süpürme etkisi gerçekleştirmektedir (Denklem 6). Bu durum kahverengi bir bulanıklık yarattığından fazla demir tüketiminden kaçınılmalıdır [15].



#### 3.4. H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunun renk ve KOİ giderim verimine etkisi

Her iki yöntem için H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu 50-300 mg/L aralığında denenmiştir. Fenton ve ultrases-Fenton deney parametreleri 100 mg/L boya çözeltisi, pH 3.5'te, 180 mg/L Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonunda ve sırasıyla 75 dk ve 60 dk reaksiyon sürelerinde gerçekleştirilmiştir. Optimum H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonuna kadar her iki yöntemde renk ve KOİ giderimlerinde artış gerçekleşmiştir. Fenton oksidasyon yönteminde optimum H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu 125 mg/L iken bu değer Ultrases-Fenton oksidasyon yönteminde 100 mg/L olarak belirlenmiştir (Şekil 5). Elde edilen optimum H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyon değerlerinde renk ve KOİ giderim verimleri Fenton oksidasyonu için sırasıyla %88.4 ve %76 iken ultrases-Fenton oksidasyonunda %94 ve %86.1 olarak belirlenmiştir.

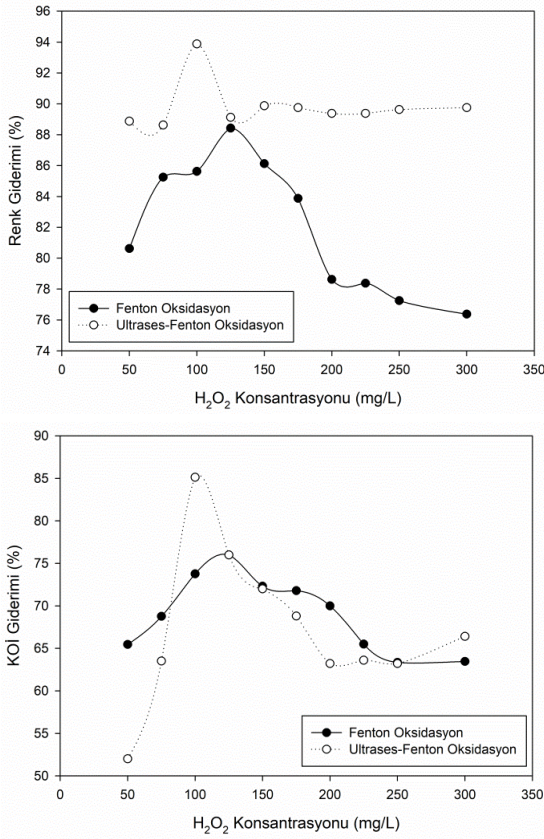


Şekil 4. Fenton ve Ultrases Fenton proseslerine Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonunun renk ve KOİ giderimine etkisi

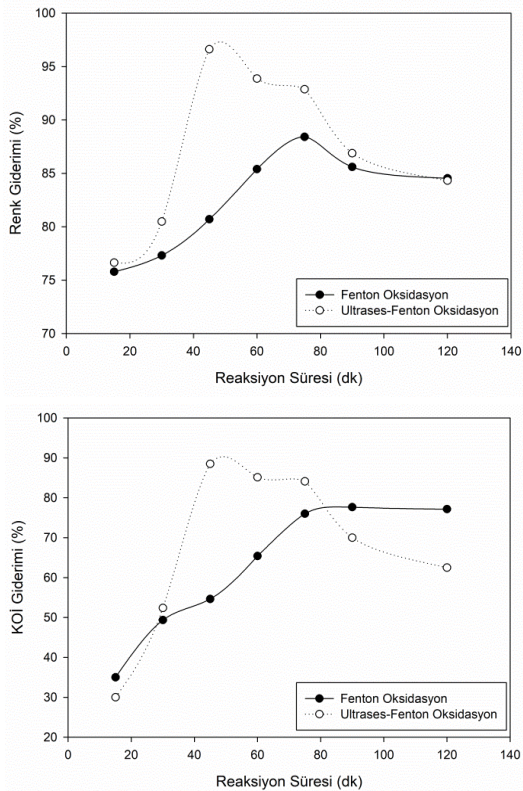
Ultrases-Fenton oksidasyonunda ultrases işleminin sinerjik etkisi ile kullanılan H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> miktarında azalma olmuştur. Fenton prosesinde radikallerin ana kaynağı H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> olduğundan bu parametrenin optimizasyonu her iki yöntem için önemlidir [38]. Çünkü çok yüksek H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunda ayrışma reaksiyonu yerine OH• radikalinin istenmeyen rekombinasyonu ve süpürme etkisi gerçekleşmektedir. Bu tür reaksiyonlar daha az oksidasyon potansiyeline sebep olmaktadır [41].

#### 3.5. Reaksiyon süresinin renk ve KOİ giderim verimine etkisi

Fenton oksidasyonunda demir iyonu ile H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>'in reaksiyonları ile hidroksil radikalleri üretilmektedir. Bu reaksiyonların kararlılığı ortamın pH'ına ve reaksiyonun tamamlanması için geçen reaksiyon süresine bağlıdır. Çalışmanın bu aşamasında Fenton ve ultrases-Fenton yöntemlerinin ideal reaksiyon süreleri belirlenmiştir. Fenton oksidasyon deneyleri pH 3.5, Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu 180 mg/L, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu 125 mg/L koşullarında gerçekleştirilmiştir. Şekil 6'da belirtildiği üzere Fenton oksidasyon yönteminde en yüksek renk ve KOİ giderimi 75 dk'lık reaksiyon süresinin denendiği reaktörlerde elde edilmiştir. Renk ve KOİ giderim verimleri sırasıyla %88.5 ve %76 olmuştur.



Şekil 5. Fenton ve Ultras Fenton proseslerine H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonunun renk ve KOİ giderimine etkisi



Şekil 6. Fenton ve Ultras Fenton proseslerine reaksiyon süresinin renk ve KOİ giderimine etkisi

Bu süreye kadar renksizleşme artmıştır. Fakat bu süreden sonra renk giderim verimi düşmüştür. KOİ gideriminde de optimum reaksiyon süresine kadar giderim performansında artış görülse de bu değerden sonra KOİ gideriminde değişiklik gözlenmemiştir. Ultras-Fenton deneyleri pH 3,5, Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu 180 mg/L, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu 100 mg/L ve 20 kHz ultrases koşullarında gerçekleştirilmiştir. En yüksek renk ve KOİ giderimlerine 45 dk'lık reaksiyon süresinin sonunda ulaşılmıştır. Analiz sonrasında renk ve KOİ giderimleri sırasıyla %96,6 ve %88,5 olarak hesaplanmıştır. Ultras-Fenton yönteminde reaksiyon süresi Fenton yöntemine kıyasla %40 kısalmıştır. Sonuçlar Şekil 6'da gösterilmiştir.

#### 4 Sonuçlar

Acid Blue 264 boyası elyaf boyama ve baskı işlemlerinde yaygın olarak kullanılan bir azo boya türüdür. Uygulanan her iki yöntem ile azo boyası oksitlenerek renk ve KOİ giderilmiştir. Bu boyanın Fenton ve ultras-Fenton oksidasyon yöntemleri ile oksidatif bozunmasını etkileyen pH, demir konsantrasyonu, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu ve reaksiyon süresi gibi önemli parametrelerin optimum seviyeleri her iki yöntem için belirlenmiştir. Fenton oksidasyon yöntemi için belirlenen optimum seviyeler pH = 3,5, Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu 180 mg/L, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu 125 mg/L ve reaksiyon süresi 75 dakikadır, ultras-Fenton oksidasyon yöntemi için pH = 3,5, Fe<sup>2+</sup> konsantrasyonu 180 mg/L, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> konsantrasyonu 100 mg/L ve reaksiyon süresi 45 dakikadır. Elde edilen optimizasyon çalışmalarının sonuçlarına göre Fenton oksidasyon yönteminde renk ve KOİ giderim verimleri sırasıyla %88,5 ve %76, Ultras-Fenton oksidasyon yönteminde elde edilen renk ve KOİ giderim verimi %96,6 ve %88,5 olarak hesaplanmıştır. Ultras-Fenton işlemi ile üretilen ekstra hidroksil üretimi sebebiyle ultras-Fenton yöntemindeki oksidasyon hızı ve verimliliği Fenton işlemine kıyasla daha yüksek olmuştur. Her iki yöntemin renk ve KOİ giderim performansları karşılaştırıldığında ultras-Fenton prosesinde reaksiyon süresi Fenton prosesine göre %40 kısalmıştır. Ultras-Fenton oksidasyonunda kaviteleme ile üretilen hidroksil radikallerinden dolayı sistemin ihtiyaç duyduğu H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> miktarı da azalmıştır. Böylelikle daha yüksek renk ve KOİ giderim performansının daha düşük H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> tüketimiyle sağlanması ultras-Fenton yönteminin bir diğer avantajı olmuştur. Çevrenin korunması kapsamında uygulanan yasalar doğrultusunda boyaların kullanıldığı tekstil, kağıt, baskı gibi endüstrilerin atıksuları deşarj edilmeden önce renk ve KOİ gibi parametrelerinin belirlenen sınır değerleri sağlanması gerekmektedir. Bu amaçla mevcut yöntemlerin birleştirildiği modifiye sistemler ile sinerjik etkinin oluşturulduğu ve arıtma performansının artırıldığı çalışmalar günümüzde önem arz etmektedir. Elde edilen sonuçlar ışığında Acid Blue 264 boyasının gideriminde Fenton ve ultras-Fenton yönteminin uygun olduğu ve belirlenen optimum koşullar atıksuyun pilot ölçekli çalışmalarında veya gerçek ölçekli arıtılmasında kullanılabilir.

## Teşekkür

BAP-FBE ÇMB (DT)2013-4 protokol numaralı proje ile sağladıkları maddi kaynaktan dolayı Mersin Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Yönetim Birimi Başkanlığı'na teşekkür ederiz.

## Çıkar çatışması

Yazarlar çıkar çatışması olmadığını beyan etmektedir.

## Benzerlik oranı (iThenticate): %9

## Kaynaklar

- [1] J. Khan, M. Sayed, A. Fayaz and H.M. Khan, Removal of acid yellow 17 dye by Fenton oxidation process. *Zeitschrift Für Physikalische Chemie*, 232, 507-525, 2018. <https://doi.org/10.1515/zpch-2017-1072>.
- [2] Y. Anjaneyulu, N.S. Chary and D.S.S. Raj, Decolorization of industrial effluents—available methods and emerging technologies—a review. *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology*, 4, 245–273, 2005. <https://doi.org/10.1007/s11157-005-1246-z>.
- [3] C.-H. Weng, Y.-T. Lin and H.-M. Yuan, Rapid decoloration of Reactive Black 5 by an advanced Fenton process in conjunction with ultrasound. *Separation and Purification Technology*, 117, 75–82, 2013. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2013.03.047>.
- [4] L. Aljerf, High-efficiency extraction of bromocresol purple dye and heavy metals as chromium from industrial effluent by adsorption onto a modified surface of zeolite: kinetics and equilibrium study. *Journal of Environmental Management*, 225, 120–132, 2018. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2018.07.048>.
- [5] S.-F. Kang, C.-H. Liao and S.-T. Po, Decolorization of textile wastewater by photo-Fenton oxidation technology. *Chemosphere*, 41, 1287–1294, 2000. [https://doi.org/10.1016/S0045-6535\(99\)00524-X](https://doi.org/10.1016/S0045-6535(99)00524-X).
- [6] Ö. Demir, Synthesis of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Magnetic Nanoparticles and Investigation of Removal Capacity. *Journal of the Chemical Society of Pakistan*, 40, 111-122, 2018.
- [7] R. Gong, Y. Jin, F. Chen, J. Chen and Z. Liu, Enhanced malachite green removal from aqueous solution by citric acid modified rice straw. *Journal of Hazardous Materials*, 137, 865–870, 2006. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2006.03.010>.
- [8] E.A. Clarke and R. Anliker, *The Handbook of Environmental- Anthropogenic Compounds: Organic dyes and pigments*, . Springer, Berlin, 1980.
- [9] R.O. Yusuff and J.A. Sonibare, Characterization of textile industries' effluents in Kaduna, Nigeria and pollution implications. *Global Nest: The International Journal*, 6, 3,, 212–221, 2004.
- [10] S. Şahinkaya, COD and color removal from synthetic textile wastewater by ultrasound assisted electro-Fenton oxidation process. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 19, 601–605, 2013. <https://doi.org/10.1016/j.jiec.2012.09.023>.
- [11] G. Crini, Non-conventional low-cost adsorbents for dye removal: a review. *Bioresource Technology*, 97, 1061–1085, 2006. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2005.05.001>.
- [12] N. Thinakaran, P. Baskaralingam, K. V Thiruvengada Ravi, P. Panneerselvam and S. Sivanesan, Adsorptive removal of acid blue 15: equilibrium and kinetic study. *CLEAN–Soil, Air, Water*, 36, 798–804, 2008. <https://doi.org/10.1002/clen.200800027>.
- [13] S.-F. Kang, C.-H. Liao and M.-C. Chen, Pre-oxidation and coagulation of textile wastewater by the Fenton process. *Chemosphere*, 46, 923–928, 2002. [https://doi.org/10.1016/S0045-6535\(01\)00159-X](https://doi.org/10.1016/S0045-6535(01)00159-X).
- [14] M. Muthukumar and N. Selvakumar, Decoloration of acid dye effluent with ozone: effect of pH, salt concentration and treatment time. *Coloration Technology*, 121, 7–12, 2005. <https://doi.org/10.1111/j.1478-4408.2005.tb00240.x>.
- [15] C. Özdemir, M.K. Öden, S. Şahinkaya and E. Kalipçi, Color removal from synthetic textile wastewater by sono-fenton process. *Clean–Soil, Air, Water*, 39, 60–67, 2011. <https://doi.org/10.1002/clen.201000263>.
- [16] H.-J. Hsing, P.-C. Chiang, E.-E. Chang and M.-Y. Chen, The decolorization and mineralization of Acid Orange 6 azo dye in aqueous solution by advanced oxidation processes: A comparative study. *Journal of Hazardous Materials*, 141, 8–16, 2007. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2006.05.122>.
- [17] S. Meriç, D. Kaptan and T. Ölmez, Color and COD removal from wastewater containing Reactive Black 5 using Fenton's oxidation process. *Chemosphere*, 54, 435–441, 2004. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2003.08.010>.
- [18] N. Ertugay and F.N. Acar, Removal of COD and color from Direct Blue 71 azo dye wastewater by Fenton's oxidation: Kinetic study. *Arabian Journal of Chemistry*, 10, S1158–S1163, 2017. <https://doi.org/10.1016/j.arabj.2013.02.009>.
- [19] E.J. Rosenfeldt, P.J. Chen, S. Kullman and K.G. Linden, Destruction of estrogenic activity in water using UV advanced oxidation. *Science of the Total Environment*, 377, 105–113, 2007. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.01.096>.
- [20] M. Mohajerani, M. Mehrvar and F. Ein-Mozaffari, An overview of the integration of advanced oxidation technologies and other processes for water and wastewater treatment. *International Journal of Engineering*, 3, 120–146, 2009.
- [21] A. Mehrdad and R. Hashemzadeh, Ultrasonic degradation of Rhodamine B in the presence of hydrogen peroxide and some metal oxide. *Ultrasonics Sonochemistry*, 17, 168–172, 2010. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2009.07.003>.
- [22] Y.-S. Ma, C.-F. Sung and J.-G. Lin, Degradation of carbofuran in aqueous solution by ultrasound and Fenton processes: effect of system parameters and kinetic study. *Journal of Hazardous Materials*, 178, 320–325, 2010. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.01.081>.

- [23] N. Geng, W. Chen, H. Xu, M. Ding, T. Lin, Q. Wu and L. Zhang, Insights into the novel application of Fe-MOFs in ultrasound-assisted heterogeneous Fenton system: Efficiency, kinetics and mechanism. *Ultrasonics Sonochemistry*, 72, 105411, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2020.105411>.
- [24] Y. Wang, L. Gai, W. Ma, H. Jiang, X. Peng and L. Zhao, Ultrasound-assisted catalytic degradation of methyl orange with Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/polyaniline in near neutral solution. *Industrial&Engineering Chemistry Research*, 54, 2279–2289, 2015. <https://doi.org/10.1021/ie504242k>.
- [25] N. Pokhrel, P.K. Vabbina and N. Pala, Sonochemistry: science and engineering. *Ultrasonics Sonochemistry*, 29, 104–128, 2016. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2015.07.023>.
- [26] Z. Guo, R. Feng, J. Li, Z. Zheng and Y. Zheng, Degradation of 2, 4-dinitrophenol by combining sonolysis and different additives. *Journal of Hazardous Materials*, 158, 164–169, 2008. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2008.01.056>.
- [27] S. Findik and G. Gündüz, Sonolytic degradation of acetic acid in aqueous solutions. *Ultrasonics Sonochemistry*, 14, 157–162, 2007. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2006.03.009>.
- [28] A.H. Alwash, A.Z. Abdullah and N. Ismail, Investigation on the catalytic behavior of Fe loaded on encapsulated titanium for sonocatalytic degradation of amaranth: characterization and reusability study. *Modern Research in Catalysis*, 2 (3), 2013. <https://doi.org/10.4236/mrc.2013.23015>.
- [29] Y.L. Pang, A.Z. Abdullah and S. Bhatia, Review on sonochemical methods in the presence of catalysts and chemical additives for treatment of organic pollutants in wastewater. *Desalination*, 277, 1–14, 2011. <https://doi.org/10.1016/j.desal.2011.04.049>.
- [30] A.J. Sisi, M. Fathinia, A. Khataee and Y. Orooji, Systematic activation of potassium peroxydisulfate with ZIF-8 via sono-assisted catalytic process: mechanism and ecotoxicological analysis. *Journal of Molecular Liquids*, 308, 113018, 2020. <https://doi.org/10.1016/j.molliq.2020.113018>.
- [31] T.S. Rad, Z. Ansarian, R.D.C. Soltani, A. Khataee, Y. Orooji and F. Vafaei, Sonophotocatalytic activities of FeCuMg and CrCuMg LDHs: influencing factors, antibacterial effects, and intermediate determination. *Journal of Hazardous Materials*, 399, 123062, 2020. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2020.123062>.
- [32] L. V Prakash, A. Gopinath, R. Gandhimathi, S. Velmathi, S.T. Ramesh and P. V Nidheesh, Ultrasound aided heterogeneous Fenton degradation of Acid Blue 15 over green synthesized magnetite nanoparticles. *Separation and Purification Technology*, 266, 118230, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.118230>.
- [33] M. Dükkancı, M. Vinatoru and T.J. Mason, The sonochemical decolourisation of textile azo dye Orange II: effects of Fenton type reagents and UV light. *Ultrasonics Sonochemistry*, 21, 846–853, 2024. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2013.08.020>.
- [34] A. Maroudas, P.K. Pandis, A. Chatzopoulou, L.-R. Davellas, G. Sourkouni and C. Argirusis, Synergetic decolorization of azo dyes using ultrasounds, photocatalysis and photo-fenton reaction, *Ultrasonics Sonochemistry*, 71, 105367, 2020. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2020.105367>.
- [35] Y. Song, J. Li and H. Chen, Degradation of CI Acid Red 88 aqueous solution by combination of Fenton's reagent and ultrasound irradiation. *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, 84, 578–583, 2009. <https://doi.org/10.1002/jctb.2083>.
- [36] C. Özdemir, M.K. Öden, S. Şahinkaya and D. Güçlü, The sonochemical decolourisation of textile azo dye CI Reactive Orange 127. *Coloration Technology*, 127, 268–273, 2011. <https://doi.org/10.1111/j.1478-4408.2011.00310.x>.
- [37] World Dye Variety, Acid Blue 264, 2021. <http://www.worlddyevariety.com/acid-dyes/acid-blue-264.html>.
- [38] S.G. Cetinkaya, M.H. Morcali, S. Akarsu, C.A. Ziba and M. Dolaz, Comparison of classic Fenton with ultrasound Fenton processes on industrial textile wastewater. *Sustainable Environment Research*, 28, 165–170, 2018. <https://doi.org/10.1016/j.serj.2018.02.001>.
- [39] J. Kochany and E. Lipczynska-Kochany, Utilization of landfill leachate parameters for pretreatment by Fenton reaction and struvite precipitation—a comparative study. *Journal of Hazardous Materials*, 166, 248–254, 2009. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2008.11.017>.
- [40] P.V. Nidheesh, R. Gandhimathi and S.T. Ramesh, Degradation of dyes from aqueous solution by Fenton processes: a review. *Environmental Science and Pollution Research*, 20, 2099–2132, 2013. <https://doi.org/10.1007/s11356-012-1385-z>.
- [41] P.B. Patil, S. Raut-Jadhav and A.B. Pandit, Effect of intensifying additives on the degradation of thiamethoxam using ultrasound cavitation. *Ultrasonics Sonochemistry*, 70, 105310, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2020.105310>.

