

## ● مقاله تحقیقی

## بررسی راندمان فرایند اکسیداسیون فنتون در حذف آنتی‌بیوتیک‌های آمپی‌سیلین و سیپروفلوکساسین از فاضلاب بیمارستانی

فاطمه تیموری<sup>۱</sup>، ویدا پسرکلو<sup>۲</sup>، حسین غفوریان<sup>۳</sup>، مرتضی کاشفی الاصل<sup>۴</sup>

### چکیده

**مقدمه:** آنتی‌بیوتیک‌ها جزء آلاینده‌های مهم محیط‌های آبی به شمار می‌روند. در مطالعه حاضر کارایی فرایند اکسیداسیون پیشرفته فنتون برای حذف آنتی‌بیوتیک‌های سیپروفلوکساسین و آمپی‌سیلین مورد بررسی قرار گرفت.

**روش بررسی:** این تحقیق در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت ناپیوسته در یکی از بیمارستان‌های نظامی انجام شد. میزان اکسیژن مورد نیاز شیمیایی (COD) و بیوشیمیایی (BOD) فاضلاب، جامدات معلق مایع مخلوط (MLSS) و جامدات معلق فرار مایع مخلوط (MLVSS)، در فصل زمستان و تابستان و بهار و همچنین عملکرد فرایند لجن فعال و اکسیداسیون فنتون در حذف COD، BOD و آنتی‌بیوتیک آمپی‌سیلین و سیپروفلوکساسین مورد بررسی قرار گرفت. تأثیر تغییرات pH، پراکسید هیدروژن و  $Fe^{2+}$  بر کارایی حذف آنتی‌بیوتیک‌ها در فرایند فنتون نیز مورد ارزیابی قرار گرفت.

**یافته‌ها:** نتایج نشان داد که COD ورودی به تصفیه خانه در فصل زمستان و تابستان دارای کیفیت مشابهی بود. بیشترین BOD در اواخر فصل زمستان و کمترین میزان آن در اوایل فصل بهار بود. بیشترین راندمان حذف آنتی‌بیوتیک آمپی‌سیلین با ۶۶٪ توسط فرایند لجن فعال در اوایل فصل بهار مشاهده شد. راندمان حذف برای آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین تا حدودی برابر با آمپی‌سیلین بود. راندمان حذف آنتی‌بیوتیک‌های سیپروفلوکساسین و آمپی‌سیلین توسط فرایند فنتون به ترتیب برابر ۸۲٪ و ۸۰٪ بود. شرایط بهینه برای هر کدام از پارامترها تعیین شد. در فرایند فنتون، pH بهینه برابر ۳/۵، غلظت  $Fe^{2+}$  و پراکسید هیدروژن به ترتیب برابر ۰/۷ و ۰/۴۵ میلی مول بر لیتر و زمان ماند ۱ ساعت تعیین شد. نسبت بهینه  $H_2O_2/Fe^{2+}$  برابر ۰/۶۴ به دست آمد.

**بحث و نتیجه‌گیری:** نتایج این مطالعه نشان داد که فرایند فنتون، فرایند مناسبی در حذف آنتی‌بیوتیک‌های سیپروفلوکساسین و آمپی‌سیلین از فاضلاب است.

**کلمات کلیدی:** بیمارستان، آنتی‌بیوتیک، آمپی‌سیلین، سیپروفلوکساسین

(سال نوزدهم، شماره دوم، تابستان ۱۳۹۶، مسلسل ۵۹)  
تاریخ پذیرش: ۹۶/۲/۵

فصلنامه علمی پژوهشی ابن سینا / اداره بهداشت، امداد و درمان نهجا  
تاریخ دریافت: ۹۵/۱۱/۴

۱. کارشناسی ارشد، تهران، ایران، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران شمال، دانشکده علوم و فنون دریایی، گروه محیط زیست

۲. کارشناسی ارشد، بندرعباس، ایران، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم تحقیقات بندرعباس

۳. استاد، تهران، ایران، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران شمال، دانشکده علوم و فنون دریایی، گروه محیط زیست

۴. دانشیار، تهران، ایران، دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران شمال، دانشکده علوم و فنون دریایی، گروه محیط زیست

(\*مؤلف مسئول)

morteza.kashefialasl@gmail.com

## مقدمه

مراکز آموزشی درمانی و بیمارستان‌ها به دلیل مراجعات فراوان حجم زیادی از آب را روزانه مصرف می‌کنند. میزان سرانه مصرف آب در مراکز آموزشی درمانی و بیمارستان در گستره ۴۰۰ تا ۱۲۰۰ لیتر در روز به ازای هر تخت گزارش شده است. میزان سرانه تولید فاضلاب در بیمارستان‌های ایران و ایالات متحده به ترتیب ۷۴۵ و ۱۰۰۰ لیتر در روز به ازای هر تخت تعیین شده است [۱، ۲].

فاضلابهای بیمارستانی یکی از عفونی‌ترین و خطرناکترین فاضلابها بوده که ممکن است حاوی مقدار زیاد میکروارگانسیم‌های بیمارزا، آلاینده‌های خطرناک مانند آنتی‌بیوتیک‌ها، داروها و هورمونهای مختلف باشد. در سال‌های اخیر نگرانی در مورد حضور طیف وسیعی از مواد دارویی در محیط‌های آبی افزایش یافته است [۲، ۳]. آنتی‌بیوتیک‌ها گروه بزرگی از مواد دارویی هستند که حدود ۱۵٪ مصرف کل داروها مربوط به آنها است. امروزه مصرف داروها به ویژه آنتی‌بیوتیک‌ها رو به افزایش هستند. از بیمارستان‌ها نیز می‌توان به عنوان یکی از مهم‌ترین اماکن مصرف‌کننده آنتی‌بیوتیک‌ها نام برد [۴-۶]. در بیمارستان‌ها از مقدار زیادی مواد دارویی و هورمونهای مختلف و محصولات مربوطه آن استفاده می‌کنند که باعث ساختار پیچیده فاضلاب می‌شود [۷]. مطالعات انجام شده نشان دهنده غلظت آنتی‌بیوتیک‌ها در فاضلابهای بیمارستانی در محدوده ۰/۳ تا ۲۰۰ میکروگرم بر لیتر بوده است [۳، ۸].

آنتی‌بیوتیک‌ها پایدار و چربی دوست بوده و می‌توانند ساختار شیمیایی خود را به مدت طولانی برای اهداف درمانی در بدن حفظ نمایند. از آنجایی که مقدار کمی از آنتی‌بیوتیک‌ها در بدن جذب می‌شود، بخش قابل توجهی از آنها از طریق ادرار و مدفوع دفع و از طریق فاضلابهای بیمارستانی وارد محیط‌های آبی می‌شود. آموکسی‌سیلین و آمپی‌سیلین جزو گروه پنی‌سیلین‌ها هستند و طول اثر آموکسی‌سیلین ۸ ساعت و آمپی‌سیلین ۶ ساعت است. عوارض گوارشی با آمپی‌سیلین

بیشتر است چون جذب خوراکی کمتری دارد [۹].

سیپروفلوکساسین آنتی‌بیوتیک وسیع‌الطیف از گروه فلوروکینولون‌ها است که به طور گسترده در بیمارستان‌ها در درمان عفونت‌های گوناگون از قبیل عفونت پوست و بافت‌های نرم، برونشیت، پنومونی، عفونت‌های دستگاه ادراری، گاستروانتریت و نیز عفونت‌های کلامیدیایی و گنوره‌ای (مثل سوزاک) به کار می‌رود. این آنتی‌بیوتیک دارای انحلال پذیری بالا در آب بوده و همچنین هنگام مصرف حدود ۵۲٪ آن جذب بدن و مابقی آن از بدن دفع شده و وارد سیستم فاضلاب می‌گردد [۱۰]. سیپروفلوکساسین در فاضلاب بیمارستانی در غلظت‌های بالاتر از ۱۵۰ میکروگرم بر لیتر گزارش شده است [۱۱].

حضور مداوم آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط، زنجیره غذایی، محیط‌های آبی و حتی تجمع زیستی آنها، ساختار ژنتیکی بعضی از میکروارگانسیم‌های غیرمقاوم را به صورت مستقیم یا غیرمستقیم تغییر و باعث مقاوم شدن آنها و پتانسیل اکوسیستم‌ها را دچار تغییر می‌نماید [۸]. استاندارد قابل قبول سازمان حفاظت محیط زیست ۱ برای حضور در پساب، ۱ میلی گرم در لیتر است [۱].

تا کنون روش‌های فیزیکی، شیمیایی و بیولوژیکی مختلفی برای حذف باقیمانده‌های دارویی از فاضلاب در مطالعات مختلف مورد بررسی قرار گرفته است [۱۱-۱۵]. گری<sup>۱</sup> و همکاران (۲۰۱۲) در مطالعه‌ای کینتیک‌های واکنشی و مکانیسم تجزیه آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین در فاضلاب را مورد بررسی قرار دادند. براساس نتایج این مطالعه، فرایند فنتون به عنوان روشی با راندمان بالا برای حذف این آنتی‌بیوتیک از فاضلاب قابل کاربرد است [۱۶]. در مطالعه‌ای که توسط کروز<sup>۲</sup> و همکاران (۲۰۱۲) انجام شد، راندمان فرایند فنتون و اشعه ماورا بنفش را در حذف ۳۲ ترکیب آلاینده نوظهور مورد

1. Giri  
2. Cruz

## روش بررسی

مطالعه کاربردی حاضر، از اسفند ماه ۹۴ تا مرداد ماه ۹۵ در یکی از بیمارستان‌های تخصصی مشترک نظامی انجام شد. روش تصفیه فاضلاب در این بیمارستان، فرایند هوادهی گسترده بود. در این مطالعه، تعیین غلظت آنتی‌بیوتیک‌های باقی‌مانده پس از فرآیند فنتون توسط دستگاه کروماتوگرافی گازی- طیف سنجی جرمی (GC-MS)<sup>۲</sup> در شرکت کیمیا آزما جم انجام شد. آزمایشات انجام شده، بر اساس دستورالعمل‌های ارائه شده در کتاب استاندارد متد انجام شد [۱۹].

پارامترهای میزان اکسیژن مورد نیاز شیمیایی (COD)<sup>۳</sup> (با دستورالعمل B5220 استاندارد متد ۲۰۱۲) و میزان اکسیژن مورد نیاز بیوشیمیایی (BOD)<sup>۴</sup> (با دستگاه مانومتریک WTW)، جامدات معلق مایع مخلوط (MLSS)<sup>۵</sup> (دستورالعمل D2540 استاندارد متد) و جامدات معلق فرار مایع مخلوط (MLVSS)<sup>۶</sup> (دستورالعمل E2540 استاندارد متد) و همچنین آنتی‌بیوتیک (آمپی‌سیلین و سیپروفلوکساسین با دستگاه GC-MS) از نمونه فاضلاب کانال ورودی و خروجی تصفیه‌خانه و حوضچه هوادهی و pH روزانه (دستگاه پرتابل Istek) و دمای روزانه (دستگاه پرتابل HACH) داخل راکتور اندازه‌گیری شد.

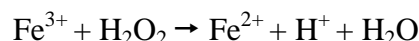
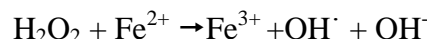
نمونه‌برداری از قسمت‌های مختلف تصفیه‌خانه، شامل فاضلاب ورودی، حوضچه هوادهی، خروجی حوضچه هوادهی (قبل از کلرزنی) و پساب نهایی نمونه فاضلاب انجام شد و آنتی‌بیوتیک‌های آمپی‌سیلین و سیپروفلوکساسین در پساب برداشت شده اندازه‌گیری شد.

مواد شیمیایی مورد استفاده در این تحقیق شامل سولفات آهن (II) (FeSO<sub>4</sub>)، پراکسید هیدروژن (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) با

بررسی قرار دادند [۱۷]. مطالعات نشان داده‌اند که روش‌های جذب به کمک کربن فعال، از ناسیون و فرایندهای غشایی می‌توانند در حذف برخی از ترکیبات دارویی مؤثر باشند. برخی از این روش‌ها مانند فرایندهای غشایی به دلیل هزینه سرمایه‌گذاری، راهبری و نگهداری، از نظر اقتصادی مقرون به صرفه نیستند [۱۶].

در دهه اخیر، فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته (AOPs) به منظور کاهش آلودگی ناشی از حضور باقیمانده‌های دارویی در آب، مورد استفاده قرار گرفته‌اند [۱۲، ۱۷]. اساس این فرایندها بر پایه تشکیل رادیکال‌های هیدروکسیل فعال است که با ترکیبات آلی واکنش داده و موجب تخریب آنها می‌شوند. در فرایند فنتون یون‌های Fe<sup>2+</sup> به عنوان احیاءکننده و مولکول‌های پراکسید به عنوان اکسنده هستند. در واکنش فنتون عامل اصلی تأثیرگذار که سبب تجزیه ماده آلی می‌شود، رادیکال‌های هیدروکسیل است که از احیای مولکول‌های پراکسید هیدروژن تولید می‌گردد [۱۸].

عملکرد اصلی فرآیند اکسیداسیون پیشرفته با به کارگیری محلول فنتون را می‌توان به صورت زیر خلاصه نمود [۱۴]:



Organic matters + OH<sup>·</sup> → X + Oxidation products (e.g. CO<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>O)

با توجه به مطالعات انجام شده در ارتباط با اثرات مضر آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط زیست و نیز با توجه به مزایای روش فنتون و وجود تجربه‌های موفق در این زمینه، امکان توسعه این روش در کاهش مواد دارویی مورد نظر است. از این رو این مطالعه با هدف بررسی راندمان فرایند اکسیداسیون پیشرفته فنتون در کاهش آنتی‌بیوتیک‌های آمپی‌سیلین و سیپروفلوکساسین از فاضلاب یک بیمارستان نظامی در شهر تهران انجام گرفت.

2. Gas Chromatography-Mass spectrometry

3. Chemical oxygen demand

4. Biochemical oxygen demand

5. Mix liquor suspended solids

6. Mix liquor volatile suspended solids

1. Advanced oxidation processes

۶۰ و ۹۰ دقیقه از نمونه‌ها برای بدست آوردن COD برداشت شد.

در مرحله دوم جهت تعیین مقدار بهینه  $H_2O_2$ ، پس از تنظیم pH بهینه و ثابت نگه داشتن  $Fe^{2+}$  در تمامی ظروف و تغییر میزان پراکسید، مقدار بهینه پراکسید تعیین گردید. در این مرحله نیز نمونه‌هایی از فاضلاب تهیه و سپس نمونه‌هایی با حجم ۱۰۰ میلی لیتر در داخل بشرها ریخته شد و در همه بشرها مقدار  $mmol/l$   $0/4$  از  $Fe^{2+}$  ریخته شد. هدف از انجام این مرحله تعیین مقدار بهینه  $H_2O_2$  بود. لذا مقادیر مناسب  $H_2O_2$  (۰/۳۵، ۰/۴۵، ۰/۷ و  $mmol/l$ ) به نمونه‌ها اضافه شد و سپس نمونه‌ها بر روی شیکر با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه و به مدت ۹۰ دقیقه قرار داده شد و در زمان‌های ۱۰، ۳۰، ۶۰ و ۹۰ دقیقه از نمونه‌ها برای بدست آوردن COD برداشته شد. پس از اتمام زمان تماس نمونه‌ها جهت تجزیه و تحلیل به دستگاه GC-MS تزریق شد و مقدار مناسب پراکسید برای فاضلاب حاوی آنتی‌بیوتیک‌ها محاسبه شد.

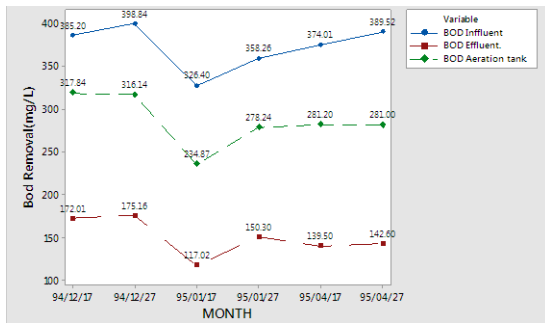
در مرحله سوم جهت تعیین مقدار بهینه  $Fe^{2+}$  با ثابت نگه داشتن مقادیر پراکسید و با در نظر گرفتن pH بهینه در تمامی ظروف و تغییر دادن میزان  $Fe^{2+}$  در ظروف، مقدار بهینه  $Fe^{2+}$  تعیین گردید. در این مرحله نیز نمونه‌هایی از فاضلاب تهیه و سپس با حجم ۱۰۰ میلی لیتر در داخل بشرها ریخته شد و در همه بشرها با توجه به میزان پراکسید بهینه مقدار آن به محلول اضافه گردید. هدف از انجام این مرحله تعیین مقدار بهینه  $Fe^{2+}$  بود لذا مقادیر مناسب  $Fe^{2+}$  (۰/۹، ۰/۷ و  $mmol/l$ ) به نمونه‌ها اضافه شد و سپس نمونه‌ها بر روی شیکر با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه و به مدت ۹۰ دقیقه قرار داده شد و در زمان‌های ۱۰، ۳۰، ۶۰ و ۹۰ دقیقه از نمونه‌ها برای بدست آوردن COD برداشته شد. پس از اتمام زمان تماس نمونه‌ها جهت تجزیه و تحلیل به دستگاه GC-MS تزریق شد و مقدار مناسب آهن، برای فاضلاب حاوی آنتی‌بیوتیک‌ها به دست آمد.

غلظت ۳۰٪ و جرم مولکولی  $34/02$  g/mol، اسید سولفوریک ( $H_2SO_4$ ) با غلظت ۹۸٪ و هیدروکسید سدیم (NaOH) با جرم مولکولی ۴۰ g/mol محصول شرکت مرک آلمان بود.

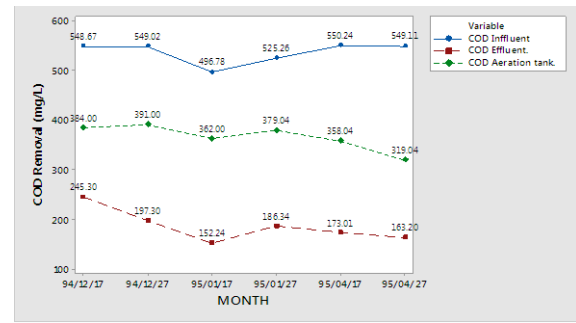
پس از تهیه پودرهای خالص آنتی‌بیوتیک‌های آمپی‌سیلین و سیپروفلوکساسین از شرکت داروسازی جابر بن حیان با غلظت‌های ۱، ۵، ۱۰، ۲۰، ۵۰ و ۱۰۰ mg/L ساخته شد. پس از تهیه محلول‌ها نمونه‌ها به دستگاه GC-MS برای تهیه منحنی استاندارد آنتی‌بیوتیک‌ها، تزریق شد تا بتوان بدین وسیله غلظت نهایی محلول‌ها محاسبه و همچنین معادله کالیبراسیون برای هر دو آنتی‌بیوتیک تهیه شود.

پس از تهیه نمونه فاضلاب آزمایشات طی چند مرحله و تحت شرایط خاص طی مدت زمان ۶۰ دقیقه بر روی شیکر با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه انجام شد و پارامترها از جمله تعیین نسبت مولی  $Fe^{2+}$ ، محدوده غلظت قابل حذف آنتی‌بیوتیک‌ها و تعیین pH مورد بررسی قرار گرفتند تا مقدار بهینه هر پارامتر در هر مرحله به دست آید. در هر مرحله با تغییر دادن یک پارامتر و ثابت نگه داشتن سایر پارامترها میزان حذف آنتی‌بیوتیک‌ها مورد بررسی قرار گرفت و غلظت نهایی آنتی‌بیوتیک‌ها توسط دستگاه GC-MS اندازه‌گیری شد.

ابتدا جهت تعیین pH با ثابت نگه داشتن مقدار  $Fe^{2+}$  و پراکسید مصرفی و تغییر دادن pH، میزان بهینه آن تعیین شد. در این مرحله، هدف تعیین pH بود. بنابراین ابتدا نمونه‌هایی با حجم ۱۰۰ میلی لیتر برداشته شد و در داخل بشر ریخته شد و سپس مقدار  $mmol/l$   $0/4$  از  $Fe^{2+}$  و پراکسید هیدروژن و در نهایت مقادیر مختلف pH (۲، ۳/۵ و ۷) مورد بررسی قرار گرفت. برای این بررسی ابتدا pH هر نمونه توسط pH متر اندازه گرفته و سپس برای تنظیم pH با مقادیر ۲، ۳/۵ و ۷ از محلول اسید سولفوریک ۰/۱ نرمال و سود ۰/۱ نرمال استفاده شد و بعد از تنظیم pH نمونه‌ها مانند مراحل قبل بر روی شیکر با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه و زمان تماس ۰ تا ۹۰ دقیقه قرار گرفت و پس از اتمام زمان تماس نمونه‌ها مقدار مناسب pH با استفاده از نتایج به دست آمد و در زمان‌های ۱۰، ۳۰،



نمودار ۲- روند تغییرات حذف BOD در طول مدت مطالعه



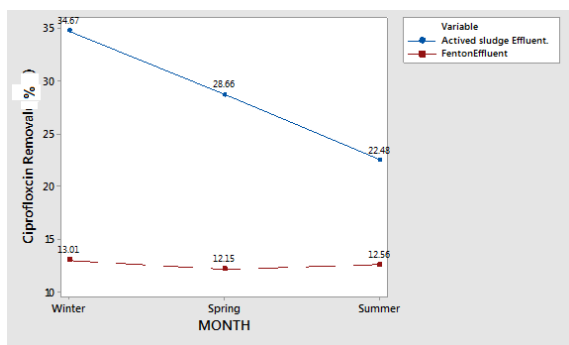
نمودار ۱- روند تغییرات حذف COD در طول مدت مطالعه

در ارتباط با راندمان حذف BOD، بالاترین میزان راندمان حذف با ۶۴/۱۵٪ در فصل بهار در هنگام افزایش میزان زمان ماند مشاهده شد. علاوه بر این، راندمان حذف BOD در فصول زمستان و تابستان نیز به ترتیب ۵۶/۰۸٪ و ۶۳/۳۹٪ مشاهده شد.

نتایج مربوط به مقایسه راندمان حذف آنتی‌بیوتیک‌های آمپی‌سیلین و سیپروفلوکساسین توسط فرایند معمول موجود در تصفیه خانه بیمارستان مورد مطالعه و فرایند فنتون پیشنهادی در نمودارهای ۳ و ۴ ارائه شده است. نتایج به دست آمده برای آنتی‌بیوتیک آمپی‌سیلین نشان داد که راندمان حذف این آنتی‌بیوتیک توسط فرایند فنتون و لجن فعال موجود به ترتیب برابر ۸۰٪ و ۶۰٪ بود که نشان‌دهنده راندمان مناسب فرایند فنتون در حذف این آنتی‌بیوتیک بود.

حداکثر راندمان حذف آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین توسط این فرایند فنتون در فصل زمستان (حداکثر غلظت آنتی‌بیوتیک ورودی) ۸۲٪ و این مقدار برای فرایند لجن فعال در فصل تابستان برابر ۶۵٪ بود که نشان‌دهنده راندمان مناسب این فرایند است.

تعیین مقدار بهینه pH، پراکسید هیدروژن،



نمودار ۴- مقایسه راندمان حذف آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین توسط فرایند فنتون و لجن فعال موجود

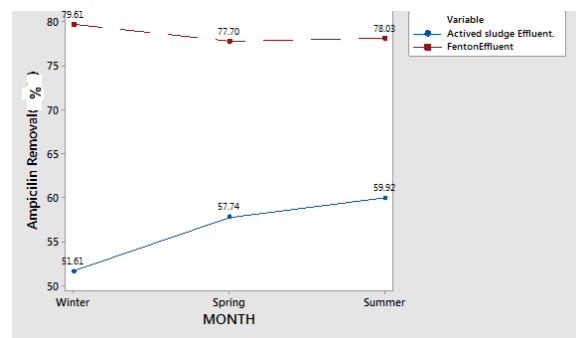
### یافته‌ها

جدول ۱ مشخصات پارامترهای مربوط به فاضلاب ورودی به تصفیه خانه بیمارستان را نشان می‌دهد.

جدول ۱- مشخصات فاضلاب ورودی به تصفیه خانه بیمارستان

پارامتر	واحد	میانگین
BOD	(mg/l)	۳۸۲
COD	(mg/l)	۵۴۱
MLSS	(mg/l)	۲۵۲۰
MLVSS	(mg/l)	۲۰۱۹
Ampicilin	(mg/l)	۱۲۸
Ciprofelaxcin	(mg/l)	۶۵

نتایج مربوط به راندمان حذف BOD و COD در بیمارستان مورد مطالعه در نمودارهای ۱ و ۲ ارائه شده است. بر اساس نتایج به دست آمده، راندمان حذف COD در حوضچه هوادهی حدود ۶۰٪ مشاهده شد. در اواخر فصل زمستان و به منظور افزایش راندمان حذف، تغییراتی در تعداد و نوع دیفیوزرها انجام شد که سبب بهبود راندمان حذف گردید. بر این اساس، میانگین راندمان حذف COD در ماه‌های زمستان، بهار و تابستان به ترتیب برابر ۶۵٪، ۶۹٪ و ۷۰٪ مشاهده شد.



نمودار ۳- مقایسه راندمان حذف آنتی‌بیوتیک آمپی‌سیلین توسط فرایند فنتون و لجن فعال موجود

براساس نتایج حاصل از این تحقیق، مقادیر بهینه pH برابر ۳/۵، غلظت  $Fe^{2+}$  برابر  $0.7 \text{ mmol/l}$ ، میزان پراکسید هیدروژن  $0.45 \text{ mmol/l}$  و زمان ماند ۱ ساعت تعیین شد و نسبت بهینه  $H_2O_2/Fe^{2+}$  برابر  $0.64$  به دست آمد. در مطالعه‌ای که توسط مجیدی و همکاران انجام شد، pH بهینه برای حذف آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته، برابر ۳ بود که با نتایج مطالعه حاضر همخوانی دارد [۲۲-۲۱].

در آزمایش مشابهی که توسط رزا و همکاران در حذف آمپی‌سیلین توسط فرایند فوتوفنتون انجام شد در مقدار ورودی با غلظت ۲۰ میلی‌گرم در لیتر و pH برابر ۳/۵ به طور کامل آمپی‌سیلین حذف شد [۲۳].

نتایج مطالعه‌ای که در رابطه با میزان حذف آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین از فاضلاب بیمارستانی انجام شد نشان داد که میزان راندمان فرایند فوتون در حذف آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین در مقایسه با COD بیشتر است [۱۲].

### تشکر و قدردانی

این مقاله بخشی از پایان نامه کارشناسی ارشد مهندسی محیط زیست در دانشگاه آزاد اسلامی واحد تهران شمال بوده که بدین وسیله از حمایت‌های آن دانشگاه در انجام این مطالعه و همچنین مساعدت‌های مدیر و کارکنان بیمارستان مورد مطالعه، تشکر و قدردانی می‌گردد.

سولفات آهن (II) و نسبت مولی در فرایند فوتون بر اساس نتایج به دست آمده، در pH برابر با ۳/۵ و زمان ماند ۶۰ دقیقه بالاترین راندمان حاصل شد. لازم به ذکر است که در pHهای قلیایی، پراکسید سریع تجزیه می‌گردد و از چرخه فرایند خارج می‌شود، به این دلیل راندمان حذف به شدت کاهش می‌یابد. بنابراین در این مطالعه بررسی نشد.

در رابطه با نتایج مربوط به پراکسید هیدروژن تا  $0.45 \text{ mmol/l}$  سبب افزایش راندمان حذف می‌گردد ولی افزایش آن به  $0.7 \text{ mmol/l}$  تأثیر چندانی در کارایی حذف آنتی‌بیوتیک‌ها نداشت. بنابراین مقدار بهینه پراکسید هیدروژن در فرایند فوتون  $0.45 \text{ mmol/l}$  انتخاب شد.

با توجه به نقش بارز آهن در واکنش با پراکسید هیدروژن که سبب افزایش تولید یون هیدروکسید می‌گردد، تعیین مقدار بهینه آن بسیار حائز اهمیت است. براساس نتایج این مطالعه، افزایش آهن تا  $0.7 \text{ mmol/l}$  سبب افزایش کارایی فرایند فوتون شد.

### بحث و نتیجه‌گیری

بر اساس نتایج مطالعه حاضر، حداکثر راندمان حذف آنتی‌بیوتیک آمپی‌سیلین توسط سیستم لجن فعال در اوایل فصل بهار (۶۶/۱۲٪) بود. راندمان حذف سیستم لجن فعال در حذف سیپروفلوکساسین تا حدودی برابر با آنتی‌بیوتیک آمپی‌سیلین بود.

## References

1. Majlesi Nasr M, Yazdanbakhsh AR. Study on wastewater treatment systems in hospitals of Iran. *Journal of environmental health science & engineering*. 2008; 5(3):211-215.
2. Chang X, Meyer MT, Liu X, Zhao Q, Chen H, Chen J-a, et al. Determination of antibiotics in sewage from hospitals, nursery and slaughter house, wastewater treatment plant and source water in Chongqing region of Three Gorge Reservoir in China. *Environmental pollution*. 2010; 158(5):1444-1450.
3. Xu W-h, Zhang G, Zou S-c, Li X-d, Liu Y-c. Determination of selected antibiotics in the Victoria Harbour and the Pearl River, South China using high-performance liquid chromatography-electrospray ionization tandem mass spectrometry. *Environmental pollution*. 2007; 145(3):672-679.
4. Abedini K, Darvishi M, Zareiy S, Samadpoor M, Eskandari A. Meningococcal infection and its effective antibiotics. *Ebnesina*. 2009; 11(2):33-39. [Persian]
5. Derafshi M, Osturiyan A. A review of antibiotic therapies for odontogenic infections with pulpal origin. *Ebnesina*. 2010; 13(1):57-62. [Persian]
6. Ghazizadeh K. Antibiotics and flight. *Ebnesina*. 2007; 10(2):43-60. [Persian]
7. Safavy SN, Ghaemmaghami Hezaveh SJ, Dehghanzadeh Rayhani R. Extraction and determination of vancomycin antibiotic in hospital sewage samples by solid phase extraction-high performance liquid chromatography. *Journal of health*. 2014; 5(3):224-234. [Persian]
8. Tsakona M, Anagnostopoulou E, Gidarakos E. Hospital waste management and toxicity evaluation: a case study. *Waste management*. 2007; 27(7):912-920.
9. Brown KD, Kulis J, Thomson B, Chapman TH, Mawhinney DB. Occurrence of antibiotics in hospital, residential, and dairy effluent, municipal wastewater, and the Rio Grande in New Mexico. *The Science of the total environment*. 2006; 366(2-3):772-783.
10. Seifrtová M, Nováková L, Lino C, Pena A, Solich P. An overview of analytical methodologies for the determination of antibiotics in environmental waters. *Analytica chimica acta*. 2009; 649(2):158-179.
11. Githinji LJM, Musey MK, Ankumah RO. Evaluation of the fate of ciprofloxacin and amoxicillin in domestic wastewater. *Water, Air, & Soil Pollution*. 2011; 219(1):191-201.
12. Vasconcelos TG, Henriques DM, König A, Martins AF, Kümmerer K. Photo-degradation of the antimicrobial ciprofloxacin at high pH: identification and biodegradability assessment of the primary by-products. *Chemosphere*. 2009; 76(4):487-493.
13. Le-Minh N, Khan SJ, Drewes JE, Stuetz RM. Fate of antibiotics during municipal water recycling treatment processes. *Water research*. 2010; 44(15):4295-4323.
14. Klavarioti M, Mantzavinos D, Kassinos D. Removal of residual pharmaceuticals from aqueous systems by advanced oxidation processes. *Environment international*. 2009; 35(2):402-417.
15. Kümmerer K. Antibiotics in the aquatic environment--a review--part I. *Chemosphere*. 2009; 75(4):417-434.
16. Giri AS, Golder AK. Ciprofloxacin degradation from aqueous solution by Fenton oxidation: reaction kinetics and degradation mechanisms. *RSC Advances*. 2014; 4(13):6738-6745.
17. La Cruz N de, Giménez J, Esplugas S, Grandjean D, Alencastro LF de, Pulgarín C. Degradation of 32 emergent contaminants by UV and neutral photo-fenton in domestic wastewater effluent previously treated by activated sludge. *Water research*. 2012; 46(6):1947-1957.
18. Garoma T, Umamaheshwar SK, Mumper A. Removal of sulfadiazine, sulfamethizole, sulfamethoxazole, and sulfathiazole from aqueous solution by ozonation. *Chemosphere*. 2010; 79(8):814-820.
19. Manshoury M, Yazdanbakhsh AR, Sardar M, Sheykh Mohammadi A. Investigation of effective factors for fenton like process in para-chlorophenol removal from aqueous solutions. *Iranian journal of health and environment*. 2011; 3(4):381-388. [Persian]
20. Aliabadi M, Fazel S, Vahabzadeh F. Application of acid cracking and fenton processes in treating olive mill wastewater. *Iranian journal of water and wastewater*. 2006; 57:30-36. [Persian]
21. Water Environmental Federation and American Public Health Association. Standard methods for the examination of water and wastewater. Washington, DC: American Public Health Association; 2005.
22. Rahmani A, Mehralipour J, Shabamlo A, Majidi S. Efficiency of ciprofloxacin removal by ozonation process with calcium peroxide from aqueous solutions. *The Journal of Qazvin University of Medical Sciences*. 2015; 19(2):55-64. [Persian]
23. Rozas O, Contreras D, Mondaca MA, Pérez-Moya M, Mansilla HD. Experimental design of Fenton and photo-Fenton reactions for the treatment of ampicillin solutions. *Journal of hazardous materials*. 2010; 177(1-3):1025-1030.

## Investigation of using Fenton oxidation process for ampicillin and ciprofloxacin removal from hospital wastewater

Teymoori F<sup>1</sup>, Pesarakloo V<sup>2</sup>, Ghafourian H<sup>3</sup>, \*Kashefiol asl M<sup>4</sup>

### Abstract

**Background:** Antibiotics are one of the most important pollutants of the aqueous environments. In this study, the efficiency of Fenton advanced oxidation process to remove the antibiotics (ciprofloxacin and ampicillin) was investigated.

**Materials and methods:** This study was performed discontinuously in laboratory scale on the wastewater of one a military hospital. The values of chemical oxygen demand (COD), biochemical oxygen demand (BOD) of wastewater, mixed liquor suspended solids (MLSS), and mixed liquor volatile suspended solids (MLVSS) were measured in summer, winter and spring. Also, efficiency of activated sludge process and Fenton oxidation for removal of BOD, COD, ciprofloxacin, and ampicillin was investigated. Effects of changes of pH, hydrogen peroxide and Fe (II) in efficiency of antibiotics removal in Fenton process were evaluated.

**Results:** The results showed that the input COD of the wastewater had similar values in the winter and summer. The maximum and minimum concentration of BOD was in late winter and early spring, respectively. The maximum efficiency for elimination of ampicillin antibiotic with 66% was achieved by activated sludge process in early spring. Removal efficacy for ciprofloxacin antibiotics was partially equal to ampicillin. The efficacy of Fenton process for ciprofloxacin and ampicillin removal was 82% and 80%, respectively. The optimum conditions for all parameters were determined. In the Fenton process, the optimum pH was 3.5, Fe (II) and hydrogen peroxide concentrations were 0.7 and 0.45 mmol/L respectively, and retention time was determined one hour. The optimum ratio of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> / Fe (II) was obtained 0.64.

**Conclusion:** The results of this study showed that the Fenton process is a suitable process for removal of ciprofloxacin and ampicillin antibiotics from wastewater.

**Keywords:** Hospital, Antibiotic, Ampicillin, Ciprofloxacin

1. MSc, Department of environment, School of marine science and technology, Tehran North Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

2. MSc, Faculty of Environment and Energy, Science and Research Branch, Islamic Azad University, BandarAbbas, Iran

3. Professor, Department of environment, School of marine science and technology, Tehran North Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

4. Assistant professor, Department of environment, School of marine science and technology, Tehran North Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran (\*Corresponding Author) mortezakashefiolasl@gmail.com