Archive of SID

بررسی کارائی فرایند ترکیبی انعقاد و اکسیداسیون پیشرفته شبه فنتون در حذف COD فاضلاب سنتتیک آنتی‌بیوتیک کلاریترومایسین از فاضلاب

احمدرضا یزدانبخش[1]، امیر شیخ محمدی[2]، مهدیه سردار[3]، محمد منشوری[4]

۱-دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط ،دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی

۲-مربی ،گروه مهندسی بهداشت محیط ،دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی لرستان

۳ -کارشناس ارشد گروه مهندسی بهداشت محیط ،دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی لرستان

۴-استادیار، گروه مهندسی بهداشت محیط ،دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی

یافته / دوره سیزدهم / شماره ۱ / بهار ۹۰ / مسلسل ۴۷

چکیده

دریافت مقاله: ۸۹/۹/۸ ، پذیرش مقاله: ۸۹/۱۰/۱

* **مقدمه:** آنتی بیوتیک‌ها جزو آلاینده‌های مهم محیط‌های آبی به حساب می‌آیند.در این مطالعه حذف COD آنتی بیوتیک کلاریترومایسن از فاضلاب سنتتیک ازطریق فرایند ترکیبی انعقاد و اکسیداسیون پیشرفته با شبه فنتون مورد بررسی قرار گرفته است.

* **مواد و روش‌ها:** این تحقیق در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت ناپیوسته انجام گرفت. فاضلاب سنتتیک از آنتی بیوتیک کلاریترو مایسین با غلظت ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر ساخته شد. شاخص COD به عنوان پارامتر مورد بررسی در این تحقیق انتخاب گردید. ابتدا فرایند انعقاد بر روی فاضلاب سنتتیک انجام شد و پس از حصول شرایط بهینه برای منعقدکننده مناسب ،پساب این مرحله وارد فرایند اکسیداسیون شبه فنتون گردید. در فرایندشبه فنتون تاثیر تغییرات pH، پراکسید هیدروژن و Fe^0 برکارایی حذف COD فاضلاب حاوی آنتی بیوتیک کلاریترو مایسین، مورد ارزیابی قرار گرفت و شرایط بهینه برای هر کدام از پارامترها تعیین شد.

* **یافته‌ها:** براساس نتایج حاصل از این تحقیق، منعقده‌کننده پلی‌آلومنیوم کلراید به عنوان بهترین منعقدکننده انتخاب گردید. برای این منعقدکننده در pH بهینه برابر ۷ و بامقدار ماده منعقدکننده برابر ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر میزان حذف COD فاضلاب برابر ۸۴/۳۷٪ حاصل شد. پارامترهای اپتیمم در فرایندشبه فنتون، برای حذف کلاریترو مایسین نیز، به ترتیب pH برابر۷ ، Fe^0 برابر ۰/۳میلی‌مول بر لیتر، پر اکسید هیدروژن ۰/۳ میلی مول بر لیتر و زمان ماند۰/۵ ساعت تعیین شد. در ضمن نسبت بهینه H_2O_2/Fe^0 برابر ۱ بدست آمد. با اعمال این شرایط میزان حذف CODفاضلاب با فرایند تلفیقی انعقاد و اکسیداسیون پیشرفته با شبه فنتون ، ۹۷/۹۵٪ تعیین شد.

* **بحث و نتیجه‌گیری:** در مجموع با توجه به آزمایشات انجام شده، نتایج آزمایشات حاکی از آن است که فرایند ترکیبی انعقاد و شبه فنتون کارایی مناسبی در حذف COD فاضلاب حاوی آنتی‌بیوتیک دارد. ولی کاربرد این روش در صنعت باید مورد بررسی قرار گیرد.

* **واژه‌های کلیدی:** فاضلاب، کلاریترو مایسین،انعقاد، شبه فنتون، COD

آدرس مکاتبه: خرم آباد، خیابان گلدشت، دانشگاه علوم پزشکی لرستان، دانشکده بهداشت

پست الکترونیک: amir.sheikh123@yahoo.com

www.SID.ir

Archive of SID

مقدمه

آنتی‌بیوتیک‌ها گروه بزرگی از مواد دارویی می‌باشند. این گروه از مواد دارای اثرات پایدار در محیط زیست بوده و لذا از اهمیت بالایی برخوردار هستند. ورود مواد دارویی و آنتی‌بیوتیک‌ها و همچنین متابولیت‌های حاصل ازآنها در محیط‌های آبی در سال‌های اخیر نگرانی‌های زیادی را به دنبال داشته است(۱). طبقه‌بندی آنتی‌بیوتیکها بر حسب ساختمان موجود در آنها به صورت‌های مختلف می‌باشد. یکی از طبقه‌بندی‌های مهم وجود حلقه بتا لاکتامی[1] در ساختمان آنها است، بر این اساس آنتی بیوتیک‌ها را به دو دسته بتالاکتام و غیر بتالاکتام[2] تقسیم‌بندی می‌کنند (۲).

ماکرولیدینها در گروه آنتی‌بیوتیک‌های غیر بتا لاکتام قرار می‌گیرند. ماکرو لیدینها[3] در ساختمان خود دارای حلقه لا کتام ماکرو سیکلیک ۱۴، ۱۵ ویا۱۶ اتمی بوده که از طریق زنجیره گلیکوساید به قندها متصل می‌شوند. آنتی‌بیوتیک کلاریترومایسین در دسته ۱۴ اتمی قرار می‌گیرد(۴,۳).ساختار کلاریترومایسین در شکل ۱ نشان داده شده است از راههای انتقال مواد دارویی و ترکیبات آنها به محیط زیست می‌توان به مواردی چون، انتقال از طریق پیش سازهای مواد دارویی به صورت عمدی و یا غیرعمدی درکارخانه تولید کننده این مواد دارویی، انتقال از طریق مصرف و یا دفع مواد دارویی اشاره نمود(۵).

از بیمارستان‌ها نیز می‌توان به عنوان یکی از مهم‌ترین اماکن مصرف کننده آنتی‌بیوتیک‌ها نام برد. البته نباید از کاربرد بسیار زیاد آنتی بیو تیک‌ها دردامپزشکی نیز غافل شد(۶). آنتی‌بیوتیک‌ها پایدار و چربی دوست بوده و می‌توانند ساختار شیمیایی خو د را به مدت طولانی برای اهداف درمانی در بدن حفظ نمایند و سپس از طریق فاضلاب انسانی وکاربرد کود و لجن فاضلاب در خاک سبب آلودگی محیطی شوند. حضور مداوم آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط، زنجیره غذایی ، محیط‌های آبی و حتی تجمع زیستی آنها، سبب مقاوم شدن میکروب‌ها و باکتری‌ها می‌گردد(۷). گروه‌های مختلفی از آنتی‌بیوتیک‌ها در آب‌های زیرزمینی، آب‌های سطحی، فاضلاب شهری، آب آشامیدنی و حتی در خاک یافت می‌شوند. اهمیت عمده آنها ، به دلیل ایجاد مقاومت باکتریایی بوده و لذا به این ترتیب تهدیدی برای سلامتی بشر به حساب می‌آیند. مواد دارویی از طریق مصرف و دفع انسان و یا متابولیت‌های آنها وارد فاضلاب شهری شده وچون عملیات تصفیه در تصفیه خانه های فاضلاب برای حذف این مواد کافی نمی‌باشد در نتیجه این مواد بدون تصفیه ناکافی وارد آبهای پذیرنده می‌شوند، که به نوبه خود باعث آلودگی محیط زیست و در نتیجه آسیب به بهداشت عمومی می‌شوند و حتی ممکن است وارد رودخانه ها و دریاچه ها شده و سبب به خطر انداختن زندگی آبزیان شوند(۱۰-۸). چون درفرایندهای متداول در تصفیه خانه ها پایشی جدی در ارتباط با کنترل آنتی بیو تیکها انجام نمی گیرد و آزمایشهای روتین مثلCOD و BOD نیز پاسخگو نیست و از آنجا که شواهد و نتایج موجود، وجود این تر کیبات را در پساب تایید می نماید، لذا لازم است یک روش دقیق ،حساس و سریع برای تخمین آنها در نظر گرفت (۹). استفاده از فرایند های تلفیقی یکی به دلیل افزایش کارایی حذف مواد آلی و دیگری به دلیل کاهش هزینه های مرتبط بسیار مفید می باشد. در سالهای اخیر فرایند اکسیداسیون پیشرفته که بر مبنای تو لید رادیکال‌های آزاد و فعال بویژه $OH^{\bullet}$ متکی هستند، به دلیل قدرت بالای اکسایش بسیار مطرح بوده است(۱۱).

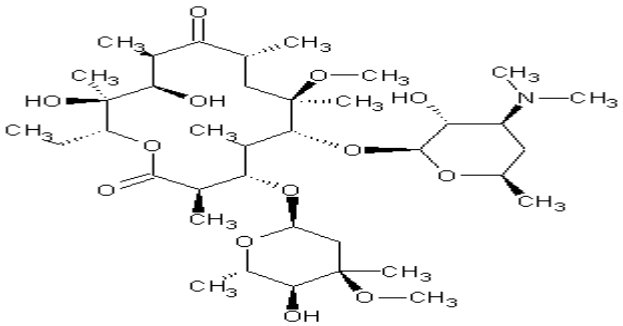
در این تحقیق از فرایند انعقاد به همراه فرایند شبه فنتون استفاده گردید. فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته[4] (AOPs) به فرایندهایی اطلاق می‌شود که همراه با تولید رادیکال‌های آزاد($OH^{\bullet}$)هیدروکسیل است و بیشترین کارایی را در حذف ترکیبات

1. Betalactam
2. Non betalactam
3.Macrolidins
4. Advanced Oxidation Process

www.SID.ir

Archive of SID

آلی دارند . دلیل این کارایی بالا ،پتانسیل اکسیداسیون بالا و غیر که منجر به تولیدرادیکال هیدروکسیل می‌شوند می‌توان به واکنش یون فرو با پراکسید هیدروژن (فنتون)،اشاره نمود (۱۲) .



شکل۱-ساختمان مولکولی آنتی بیو تیک کلاریترو مایسین

دربین فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته، فرآیند فنتون یکی از جالبترین رو های مورد مطالعه است. فرایندفنتون به انواع مختلفی تقسیم می‌گردد که شامل فنتون تاریک، شبه فنتون، فوتوفنتون و غیره می‌باشد.تنها تفاوت فنتون با فرایند شبه فنتون در این است که در فرایند شبه فنتون به جای استفاده از آهن دو ظرفیتی از آهن صفر و یا سه ظرفیتی استفاده می‌کنند(۱۳). فرآیند فنتون یک سیستم الکتروشیمیایی است که در آن یون های Fe^{2+} به عنوان احیاءکننده و مولکو های H_2O_2 به عنوان اکسنده می‌باشند(۱۴). تحقیقات گوناگونی در ارتباط با آنتی بیوتیک‌ها صورت گرفته است.

آنجلا و همکاران تحقیقی را بر روی چهار آنتی بیوتیک سیپرو فلاکسین[1]، سولفا متو گزازول[2]، تترا سیکلین[3] و تری متیو پرین[4] درچهار تصفیه خانه مختلف با روش‌های تصفیه متفاوت بررسی نمودند متدهای انجام شده در این تصفیه خانه‌ها به صورت تصفیه ثانویه (لجن فعال دو مرحله ای همراه با تانک نیتریفیکاسیون، هوادهی گسترده ،تماس دهنده‌های بیولوژیکی چرخان(RBC) و لجن فعال با اکسیژن خالص انجام می‌شد (۱۵). تسانگ و همکاران در تحقیق دیگری برای حذف آنتی بیوتیک‌ها از فرایند بیولوژیکی با سن لجن بالا استفاده نمودند (۱۶). Arslan-Alaton در سال ۲۰۰۴ کارایی انتخابی بودن آن است. از مهمترین واکنش‌های اکسایش و کاهش فرایند فوتو شبه فنتون (Fe3+/H2O2/UV-A) را در اکسیداسیون پنی‌سیلین نوع G از پساب مورد بررسی قرار داد. (۱۷) Kavitha و همکاران در سال ۲۰۰۴ و۲۰۰۵ کارایی فرایند فوتو فنتون را بر روی مواد آلی فنول و نیترو فنول مورد ارزیابی قرار دادند (۱۸).

بنابراین با توجه به مطالعات انجام شده در ارتباط با اثرات مضر آنتی بیوتیک‌ها در محیط ، حذف آنها از محیط زیست امری ضروری می باشد . در این مطالعه نیز بدلیل قدرت بالای فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته در حذف مواد آلی مقاوم از فاضلاب، ازفرایند انعقاد(بعنوان فرایند پیش تصفیه در جهت کاهش بار آلی ورودی به فرایند اکسیداسیون پیشرفته)در ترکیب با فرایند اکسیداسیون پیشرفته شبه فنتون برای حذف COD مربوط به آنتی بیوتیک کلاریترومایسین استفاده شد.

مواد و روش‌ها

این تحقیق در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت نا پیوسته انجام گرفت. در این تحقیق شاخص COD به عنوان شاخص تعیین کننده میزان آلودگی فاضلاب به آنتی‌بیوتیک انتخاب شد. برای انجام تحقیق در هر مرحله، محلول سنتتیک از آنتی‌بیوتیک کلاریترومایسین با غلظت ۲۰۰میلی گرم بر لیتر ساخته شد. در مرحله اول با انجام فرایند انعقاد با استفاده از دستگاه جارتست، کارایی چهار منعقد کننده کلرور فریک،آلوم، سولفات فرو و پلی کلرید آلومینیوم کلراید در حذف COD فاضلاب آنتی بیوتیک با هم مقایسه شد و از بین این چهار منعقد کننده، بهترین منعقد کننده انتخاب گردید.

1.Ciproflaxine
2.Sulphametogezazole
3.Tetracycline
4.Trymetioprine

www.SID.ir

Archive of SID

در مرحله اول فرایند انعقاد ابتدا PH بهینه برای هر یک از منعقد کننده‌ها تعیین شد و سپس در مرحله بعد مقدار بهینه هر یک از منعقد کننده‌ها تعیین شد و با توجه به راندمان حذف COD توسط هر یک از منعقدکننده‌ها در شرایط بهینه، بهترین منعقدکننده انتخاب شد. بر روی پساب حاصل از مرحله انعقاد، COD پساب تعیین گردید.

پساب فرایند انعقاد(با بالاترین کارائی)، وارد فرایند اکسیداسیون پیشرفته با شبه فنتون شد. در این فرایند نیز تاثیر هر یک از پارامترهای PH، Fe^0 و H_2O_2 بر فرایند شبه فنتون تعیین گردید. بدین ترتیب که ابتدا با ثابت نگه داشتن مقدار Fe^0 وH_2O_2 مصرفی وتغییر دادن pH ، میزان بهینهPH تعیین شد وسپس در مرحله دوم با تنظیم PH بهینه در تمامی ظروف و ثابت نگه داشتنFe^0 در تمامی ظروف و تغییر میزان H_2O_2 ،مقداربهینه H_2O_2، تعیین گردید و سپس در مرحله سوم با ثابت نگه داشتن مقادیر H_2O_2 وPH درتمامی ظروف و تغییر دادن میزان Fe^0 در ظروف، مقدار بهینه Fe^0 نیز تعیین گردید.

لازم به ذکر است که در این تحقیق در هر مرحله از اطلاعات مر بوط به مرحله قبل استفاده شد. بعد از انجام فرایند شبه فنتون بر روی پساب خروجی از فرایند انعقاد، COD خروجی از فرایند شبه فنتون نیز تعیین شد و سپس از روی اختلاف میان COD ورودی به فرایند انعقاد وCOD خروجی از فرایند شبه فنتون، راندمان حذف فرایند ترکیبی انعقاد و اکسیداسیون پیشرفته بدست آمد.

یافته‌ها

انعقاد: تعیین PH بهینه برای هر یک از منعقد کننده‌ها: دراین تحقیق COD اولیه مربوط به فاضلاب سنتتیک کلاریترو مایسین با غلظت ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر برابر ۳۵۰ میلی‌گرم بر لیتر تعیین شد. فاضلاب با این COD وارد فرایند انعقاد شد. در مرحله اول PH بهینه مربوط به هر منعقدکننده تعیین گردید. مقدار ماده منعقد کننده مصرفی در این مرحله، ثابت و برابر ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر بود. در نمودار(۲)نتایج مربوط به تاثیر PH بر کارایی انعقاد برای منعقدکننده‌های مورد استفاده در این تحقیق ارائه شده است. با توجه به نمودار، همانطور که مشخص است منعقد کننده پلی‌کلرید آلومینیوم در PH بهینه برابر ۷ دارای راندمان حذف COD بالاتر نسبت به سایر منعقد کننده‌ها می‌باشد.

تعیین تاثیرمیزان ماده منعقده کننده بر کارائی حذفCOD آنتی‌بیوتیک: در این مرحله بعد از اعمال PH های بهینه بدست آمده از مرحله قبل ، تاثیر میزان ماده منعقده کننده بر راندمان حذف مورد بررسی قرار گرفت. در این مرحله با تغییر دادن مقدار منعقد کننده مصرفی و اعمال PH های بهینه مربوط به هر منعقدکننده، مقدار بهینه آن منعقد کننده تعیین شد(نمودار۳).

همانطور که در شکل نیز مشخص است پلی‌کلرید آلومینیوم در بین منعقدکننده‌های مورد استفاده در این تحقیق در PH بهینه برابر ۷ و مقدار منعقدکننده برابر ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر با داشتن راندمان ۸۴/۳۷٪ دارای بالاترین راندمان می‌باشد بنابراین منعقدکننده پلی‌کلریدآلومینیوم به عنوان منعقدکننده مناسب انتخاب شد .

فرایندشبه فنتون:تاثیرPH بر فرایندشبه فنتون:نمودار شماره ۴ تاثیر PH بر راندمان حذفCOD را نشان می‌دهد. با توجه به نتایج حاصله در pH برابر۷ و زمان ماند بهینه ۳۰ دقیقه بالاترین راندمان حاصل شده است.

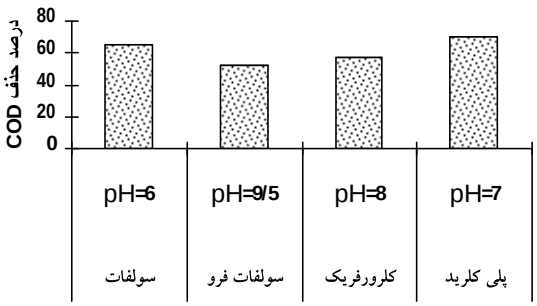
تاثیر میزان پراکسیدهیدروژن بر فرایندشبه فنتون: نمودار۵ تاثیر مقادیر متفاوت پراکسیدهیدروژن را بر فرایندشبه فنتون نشان می‌دهد. نتایج حاصله حاکی است که افزایش پراکسید هیدروژن تا ۰/۳ میلی مول بر لیتر سبب افزایش راندمان حذف می‌گردد ولی

www.SID.ir

Archive of SID

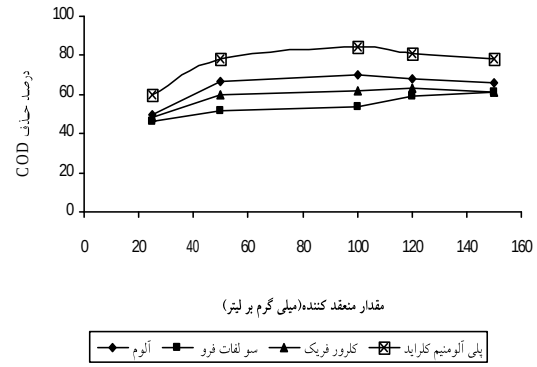
افزایش آن به ۰/۶ میلی‌مول بر لیتر تاثیر چندانی در کارایی حذف COD فاضلاب کلاریتروماییسین ندارد.بنابراین مقدار بهینه پراکسیدهیدروژن در فرایندشبه فنتون ۰/۳ میلی‌مول بر لیتر انتخاب شد(نمودار۵).

تاثیرمیزان پودر آهن بر فرایندشبه فنتون: با توجه به نقش بارز آهن در واکنش با پراکسیدهیدروژن که سبب افزایش تولید $HO^{\bullet}$ می‌گردد، تعیین مقدار بهینه آن بسیار حائز اهمیت است.در نمودار ۶ تاثیر مقادیرمتفاوت آهن بر فرایندشبه فنتون مشخص شده است . افزایش آهن تا ۰/۳ میلی‌مول بر لیترسبب افزایش کارایی فرایند شده و افزایش بیش ازاین مقدار تاثیری بر فرایند نداشته است. لذا مقدار بهینه Fe^0 برای کلاریترو مایسین برابر۰/۳ میلی‌مول بر لیتر مشخص شد.

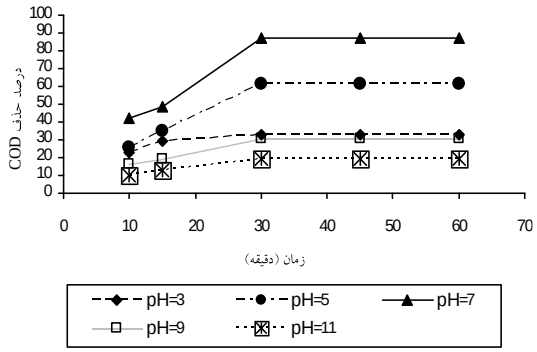


بهینه pH مربوط به هر یک از منعقد کننده ها

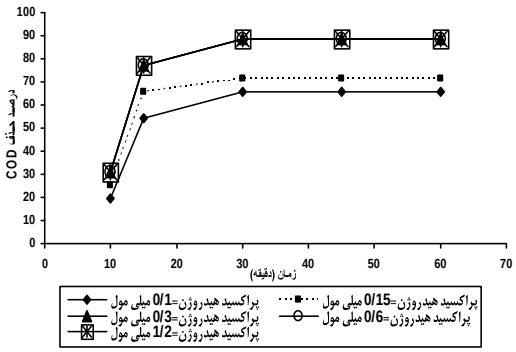
نمودار۲- pH بهینه مربوط به هر یک از منعقد کننده ها و راندمان حذف COD



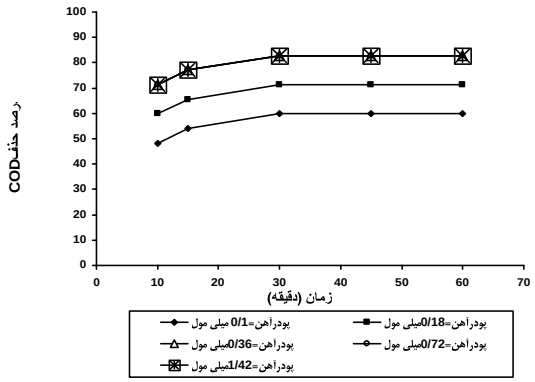
نمودار۳- تاثیرمقدار منعقد کننده بر کارایی فرایند انعقاد



نمودار۴- تغییراتpH وراندمان حذف COD برای فرایندشبه فنتون در زمان‌های مختلف (پودر آهن برابر۰/۱میلی مول بر لیتر ، پراکسید هیدروژن برابر۰/۱میلی مول بر لیتر)



نمودار۵- تغییرات میزان پراکسید هیدروژن بر راندمان حذف COD در زمان‌های مختلف (پودر آهن برابر۰/۱میلی مول بر لیتر ، pH=۷)



نمودار۶- تغییرات پودر آهن وراندمان حذف COD برای فرایند شبه فنتون در زمان‌های مختلف(پراکسید هیدروژن برابر۰/۳میلی مول بر لیتر ،pH=۷)

www.SID.ir

Archive of SID

بحث و نتیجه‌گیری

امروزه اکثر محققان در تلاش هستند تا روش‌های موثر و در عین حال مناسب از لحاظ اقتصادی را در جهت تصفیه فاضلاب‌های صنعتی ارائه دهند. پلی‌کلریدآلومینیوم جزو مواد منعقد کننده‌های جدید و با راندمان بالاست که دراکثر قسمت‌های دنیا و بخصوص در کشورهای اروپای غربی از آن استفاده بیشتری شده است(۲۰،۱۹). نمک‌های پلیمری فلزی نظیر پلی‌کلرید آلومینیوم از طریق پل‌سازی بین ذرات و فشرده نمودن لایه دو گانه الکتریکی باعث ناپایدار نمودن ذرات کلوئیدی می‌گردد، این امر منجر به بهبود وپیشرفت عمل ناپایدار سازی می‌گردد (۲۱).

در تحقیقی ماترا کاربالاو همکاران[1] از فرایند انعقاد و لخته‌سازی در کنار فرایند شناورسازی برای حذف داروها از فاضلاب استفاده نمودند. میزان COD این فاضلاب ۳۰۰ تا ۸۰۰ میلی گرم بر لیتر بود. منعقد کننده‌های مورد استفاده در این تحقیق شامل کلرید فریک، آلوم و پلی‌کلریدآلومینیوم بود. محدوده پلی‌کلرید آلومینیوم اولیه مورد استفاده برابر ۲۵۰ تا ۱۲۵۰ میلی‌گرم بر لیتر بود،که ۷۰۰ تا ۹۵۰ میلی‌گرم بر لیتر کارایی بالایی را در حذف مواد دارویی داشت.در حذف دو داروی گالاکسولید[2] و تونالید[3] کارایی حذف دو منعقدکننده آلوم و کلریدفریک به صورت مشابه و برابر ۵۰٪بود، در حالیکه کارایی حذف پلی‌کلرید آلومینیوم برای حذف گالاکسولید۶۳٪ و برای تونالید۷۱٪بود که نشاندهنده کارایی بالای این منعقدکننده بود (۲۲). نکته قابل توجه در اینجاست که فرایند انعقاد تاثیرخوبی بر حذف کلاریترومایسین دارد و در نتیجه سبب می‌گردد تا فاضلابی باCOD پایین وارد فرایند اکسیداسیون پیشرفته گردد.

این عمل هم از لحاظ اقتصادی و هم از لحاظ کارایی حذف آنتی‌بیوتیک به نفع سیستم است. COD خروجی از فرایند انعقاد، برای آنتی‌بیوتیک‌کلاریترو مایسین، برابر ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر تعیین شد و فاضلاب با COD ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر وارد فرایند شبه فنتون شد. همانطور که مشخص است این مقدار COD بسیار پایین بوده و برای تصفیه با فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته مناسب است. با توجه به نمودار ۴ لازم به ذکر است که در pH های قلیایی H_2O_2 سریعا تجزیه شده واز چرخه فرایند خارج می‌شود و به این دلیل راندمان حذف به شدت پایین می‌آید، در عین حال تبدیل آهن دو ظر فیتی به آهن سه ظرفیتی به سرعت اتفاق افتاده و در نتیجه آهن به سرعت به شکل $Fe(OH)_3$ رسوب کرده و کارایی فرایند کاهش می‌یابد. درpH های پایین نیز تشکیل $Fe(OH)_2$ که با پراکسید هیدروژن به آرامی واکنش می‌دهد، باعث کاهش مقدار تولید رادیکال‌های هیدروکسیل شده و در نتیجه بازدهی فرایند کاهش می‌یابد(۲۳).

ویوی بن و همکاران[4] مطالعه‌ای را در ارتباط با حذف آنتی‌بیوتیک‌های حیوانی انجام دادند. آنها بعد از انجام عمل پیش تصفیه با راکتور ناپیوسته متوالی (SBR) پساب حاصله را وارد فرایند فنتون نمودند. در این تحقیق چهار آنتی‌بیوتیک گروه سولفانامیدها و یک آنتی‌بیوتیک از گروه ماکرولیدینها بررسی شد.

تاثیرpH اولیه، COD و SS وTOC پساب خروجی از SBR بر روی تجزیه آنتی‌بیوتیکها بررسی شد pHاولیه برابر ۵اعمال شد.در نهایت فرایند فنتون توانست به طور موثری تمامی COD وSS با غلظت اولیه به ترتیب ۴۱۹ و ۲۵۰ میلی‌گرم بر لیتر را حذف نماید.معرف فنتون نه تنها کل کربن آلی (TOC)را حذف نمود بلکه فلزات سنگین از جمله As, Cu, Pb و کل فسفر را حذف نموده و کل باکتری‌ها را غیرفعال نمود و سمیت فاضلاب را کاهش داد(۲۴). با توجه به نمودار۵ می‌توان اینگونه بیان نمود که در مقادیر بالاتر از بهینه پراکسید هیدروژن، رادیکال‌های

1. Marta Carballa et el
2. Galaxolide
3. Tonalide
4. Weiwei Ben

www.SID.ir

Archive of SID

اسکاونجر[1] (HO_2^0) تولید می‌گردندکه راند مان حذف را کاهش می‌دهد(مطابق با معادله۱).

در حقیقت مازاد پراکسیدهیدروژن موجود به عنوان مصرف‌کننده رادیکال‌های هیدروکسیل موجود در محلول عمل می‌کند و در نتیجه سرعت واکنش را پایین می‌آورد یانگ و همکاران[2] در استفاده از یک روش نو به نام شبه فنتون به همراه امواج مایکروویو برای تصفیه فاضلاب دارو سازی با COD اولیه ۴۹۹۱۲/۵ میلی‌گرم بر لیتر، مقدار پر اکسیدهیدروژن بهینه مصرفی را ۱۳۰۰ میلی‌گرم بر لیتر تعیین نمود. ارسلان آلاتون و گورسس کارایی فرایند فوتو شبه فنتون($Fe^{3+}/H_2O_2/UV\text{-}A$) را در اکسیداسیون پنی‌سیلین نوع G با ۶۰۰ میلی‌گرم بر لیتر COD مورد بررسی قرار دادند و مقدار بهینه پراکسید هیدروژن را ، ۲۵ میلی‌مول بر لیتر تعیین نمودند(۲۵).

$$H_2O_2+OH^0 \longleftrightarrow HO_2^0+H_2O \quad (۱)$$

با در نظر گرفتن تمامی شرایط بهینه برای فرایند شبه فنتون راندمان حذف کلاریترومایسین توسط این فرایند ۸۷ درصد بدست آمد(نمودار۶). ارسلان آلاتون و گورسس کارایی فرایند فوتو شبه فنتون($Fe^{3+}/H_2O_2/UV\text{-}A$) را در اکسیداسیون پنی‌سیلین نوع G با ۶۰۰ میلی‌گرم بر لیتر COD مورد بررسی قرار دادند و مقدار بهینه آهن را ، ۱/۵ میلی‌مول بر لیتر تعیین نمود (۱۷).

زی[3] و همکاران کارایی فرایند تلفیقی انعقاد ،اکسیداسیون توسط فنتون و ته‌نشینی را در حذف آنتی بیوتیک‌های غیر قابل تجزیه از فاضلاب صنایع مورد بررسی قرار دادند،که مقدار بهینه سولفات آهن ۱۲۰ میلی‌گرم بر لیترتعیین شد(۲۶).در نهایت با توجه به مقادیر بهینه بدست آمده برای فرایند شبه فنتون نسبت مولی بهینه H_2O_2/Fe^{2+} برابر ۱ بدست آمد . لازم به ذکر است که با توجه به راندمان حذف آنتی‌بیوتیک کلاریترومایسین توسط فرایند انعقاد و فرایندشبه فنتون، که به ترتیب برابر ۸۴/۳۷ و۸۷ درصد حاصل شد راندمان حذف فرایند ترکیبی برابر۹۷/۹۵٪ بدست آمد. در تحقیقی زی و همکاران کارایی فرایند تلفیقی انعقاد ،اکسیداسیون توسط فنتون و ته‌نشینی را در حذف آنتی‌بیوتیک‌های غیرقابل تجزیه از فاضلاب صنایع مورد بررسی قرار دادند، ماده منعقده‌کننده مناسب در این تحقیق پلی‌سو لفات‌فریک انتخاب شد.pH بهینه برای ماده منعقده‌کننده برابر۴و مقدار بهینه ماده منعقد کننده،۲۰۰میلی گرم بر لیتر انتخاب شد.در ضمن مقدار بهینه سولفات آهن ۱۲۰ میلی‌گرم بر لیتر،پراکسید هیدروژن ۱۵۰ میلی گرم بر لیترو مدت زمان تماس بهینه۱ ساعت انتخاب شد.در نهایت میزان حذف رنگ و درصدCOD حذف شده با فرایند انعقاد تنها و فرایند تلفیقی انعقاد ، فنتون و ته نشینی اندازه‌گیری شد.

راندمان حذف رنگ وCOD با فرایند انعقاد به ترتیب ۶۶/۶٪و۷۲/۴٪و برای فرایند تلفیقی انعقاد و فنتون راند مان حذف رنگ وCOD وSS به ترتیب ۹۷/۳٪،۹۶/۹٪و۸۶/۷٪ به دست آمد(۲۶). لذا با توجه به نتایج بدست آمده می‌توان به این موضوع اشاره نمود که در ارتباط با فاضلاب‌هایی که دارای مواد معلق و کلوئیدی بالا هستند، استفاده از فرایند انعقاد به عنوان یک پیش تصفیه برای فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته بسیارمفید خواهد بودو سبب می‌گردد که بار آلی کمی وارد این فرایندها گردد که هم از لحاظ راندمان و هم از لحاظ اقتصادی توجیه داشته باشد. بنابراین این روش می‌تواند به عنوان روشی موثر درحذف آنتی‌بیوتیک‌هایی با ساختار مشابه مورد استفاده قرار گیرد.

1. Scavenger
2. Yang et al
3. Zi et al

www.SID.ir

Archive of SID

References

1. Rosario S, Valverde A, Dolores Gil A, Maria G, HectorC. Determination of tetracyclines in surface water by partial least squares using multivariate calibration transfer to correct the effect of solid phase preconcentration in photochemically induced fluorescence signals. Analytica Chimica Acta. 2006; 562: 85–93.
2. Botsoglou N and Fletouris DJ. Drugs Residues in Foods: Pharmacology Food Safety and Analysis Marcel Dekker. Inc New York. 2000 ; p. 41.
3. Elks J and Ganellin CR (Eds). Dictionary of Drugs, Chapman and Hall, London, 1991; pp:1001-1009.
4. Reynolds J .E. F (Ed) Martindale. The Extra Pharmacopoeia, The Pharmaceutical Press 30th ed., London1993; pp: 112-118.
5. Gulkowskaa A, Leunga HW, Soa MK, Taniyasub S, Yamashitab Leo, Richardsona J.A.P. Removal of antibiotics from wastewater by sewage treatment facilities in Hong Kong and Shenzhen, China. Water Research. 2008; 42 :395 – 403.
6. Marcela S, Lucie N. An overview of analytical methodologies for the determination of antibiotics in environmental waters. Analytica Chimica Acta. 2009; 649: 158–179.
7. Drewes J, Shore L, Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Environment. Water research. 2001; 252: 206-228.
8. Angela Yu-Chen, Lin Cheng-Fang, Lin Jia-Ming. O3 and O3/H2O2 treatment of sulfonamide and macrolide antibiotics in wastewater. Journal of Hazardous Materials. 2009; 171: 452-458.
9. Niina M, Vieno AB, Tuula Tuhkanen B, Leif, Kronberg. Analysis of neutral and basic pharmaceuticals in sewage treatment plants and in recipient rivers using solid phase extraction and liquid chromatography–tandem mass spectrometry detection. Journal of Chromatography. 2006; 1134: 101–111.
10. Virender K. Oxidative transformations of environmental pharmaceuticals by Cl2, ClO2, O3, and Fe(VI): Kinetics assessment. Chemosphere. 2008; 73: 1379-1386.
11. KestioSlu K, Yonar T. Feasibility of physico-chemical treatment and advanced oxidation processes (AOPs) as a means of pretreatment of olive mill effluent. J Process Biochemistry. 2005; 40: 2409 – 2416.
12. Yanbiao Liu, Xiaojie Gan, Baoxue Zhou, Bitao Xiong Jinhua Li, Chaoping Dong, Jing. Photoelectrocatalytic degradation of tetracycline by highly effective TiO2 nanopore arrays electrode. Journal of Hazardous Materials. 2009; 171: 678-683.
13. Pude Kadu, Munu samy. Two-stage removal of nitrate from grand water using biological and chemical treatments. J Biotech and Bioeny. 2007; 104:129-134.
14. Pignatell J. Dark and photoassisted Fe3+-catalyzed degradation of chlorophenoxy herbicides by hydrogen peroxide. Environ. Sci. Technol. 1992; 26: 944-951.
15. Angela L, Batt A, Ian B, Bruce B. Evaluating the vulnerability of surface waters to antibiotic contamination from

www.SID.ir

Archive of SID

varying wastewater treatment plant discharges. Environmental Pollution. 2006; 142 :295-302.
16. Tsung-Hsien Yu, Angela Yu-Chen Lin, Shaik Khaja Lateef, Cheng-Fang Lin. Removal of antibiotics and non-steroidal anti-inflammatory drugs by extended sludge age biological process. Chemosphere. 2009; 77: 175-181.
17. Arslan-Alatonand F. Photo-Fenton-like and photo-fenton-like oxidation of Procaine Penicillin Gformulation effluent. Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry. 2004; 165:165-175.
18. Kavita V and Palanivelu K. Degradation of nitrophenol by Fenton and photo fenton processes. J Photochemistry and Photobiology A:Chemistrty. 2005; 170: 83-95.
19. Wang D, Sun W, Xu Y, Tang H. Speciation stability of inorganic polymer flocculant-PACl. Colloids and Surfaces. 2004; 243: 1-10.
20. Parker DR and Bersch PM. Formation of the "Al13" tridecameric polycation under
diverse synthesis conditions. Environ. Sci. Technol. 1992; 26: 914-921.
21. LaMer V K and Healy TW. Adsorption-flocculation reactions of micromolecules at the solid-liquid interface. Rev. Pure App. Chem. 1963; 13:112-132.
22. Marta Carballa, Francisco Omil, Juan M. Removal of cosmetic ingredients and pharmaceuticals in sewage primary treatment. Water Research. 2005; 39: 4790–4796.
23. Farrokhi M, Mesdaghinia AR, Naseri S, Yazdanbakhsh AR. Oxidation of Pentachlorophenol by Fenton's Reagent. Iranian J of Pub Health. 2003; 32: 6-10.
24. Weiwei Ben, Zhimin Qiang, Xun Pan and Meixue Chen. Removal of veterinary antibiotics from sequencing batch reactor (SBR) pretreated swine wastewater by Fenton's reagent. Water Research. 2009; 43: 4392-4402.
25. Yu Yang, Peng Wang, Shujie Shi and Yuan Liu. Microwave enhanced Fenton-like process for the treatment of high concentration pharmaceutical wastewater. Journal of Hazardous materials. 2009; 168: 238-245.
26. Zi-Peng Xing and De-Zhi Sun. Treatment of antibiotic fermentation wastewater by combined polyferric sulfate coagulation Fenton and sedimentation process. Journal of Hazardous Materials. 2009; 229: 321-329.

www.SID.ir