

# The Optimization of Electrocoagulation Process Efficiency in the Removal of Amoxicillin Antibiotic and COD from Aqueous Solutions and Hospital Wastewater under Optimal Conditions: A Case Study of

Alimoradian Hospital, Nahavand

Gholamreza Karim Mehrabankhahi<sup>1</sup>, Mostafa Leili<sup>2</sup>; Reza Shokooni<sup>3</sup>, Alireza Rahmani<sup>4</sup>, Ghasem Azarian<sup>5</sup>, Nasrin Shirmohammadi Khorram<sup>6</sup>, Mahmood Razavi<sup>7</sup>

1. MSc Student, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. ORCID: 0000-0002-1372-4505

2. Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. (Corresponding Author), Tel: 8138380026, Email: [mostafa.leili@gmail.com](mailto:mostafa.leili@gmail.com). ORCID: 0000-0001-6209-0038

3. Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. ORCID: 0000-0002-5358-8632

4. Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. ORCID: 0000-0001-9321-8073

5. Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. ORCID: 0000-0001-8067-3405

6. Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. ORCID: 0000-0002-3800-9575

7. Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health and Research Center for Health Sciences, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran. ORCID: 0000-0002-5714-5505

## ABSTRACT

**Background and Aim:** Amoxicillin antibiotic is one of the antibiotics which is used in medicine and veterinary medicine to treat bacterial infectious diseases. In this study, a special electrochemical cell design was used as it could integrate the process units and the operation units to reduce COD and amoxicillin antibiotic residues from the wastewater of Alimoradian Hospital. Also, to optimize the operational parameters, the central composite design of response surface methodology (RSM) was used.

**Materials and Methods:** This experimental study was conducted in two parts. In the first stage, synthetic wastewater was prepared from Amoxicillin antibiotics to investigate the effect of various parameters such as reaction time, initial antibiotic concentration, current density, and pH on the efficiency of the method. In the second stage, the efficiency of the method in removing the antibiotic and reducing COD from the actual wastewater of Alimoradian hospital was evaluated.

**Results:** Using the RSM, the optimal conditions of the laboratory findings were determined as follows: reaction time = 30 min, pH = 7.5, current density = 2.31 mA/cm<sup>2</sup>, and initial concentration of amoxicillin = 54.66 mg/L. Under these conditions, the removal amount of amoxicillin was 90.56%. The results also showed that under optimal conditions, the removal rate of COD and TOC from synthetic wastewater is 65.5% and 44.5%, respectively, and in the effluent of Alimoradian hospital is 47.7% and 38%, respectively. The reason for this difference is probably due to the presence of some resistant compounds in the real wastewater.

**Conclusion:** This experimental study showed that the combined electrocoagulation process can be a more effective method in removing the amoxicillin antibiotic and COD from aqueous solutions and hospital wastewater.

**Keywords:** Electrocoagulation process; Optimization; Alimoradian hospital; RSM-CCD

**Received:** Mar 15, 202022

**Accepted:** July 19, 2022

**How to cite the article:** Gholamreza Karim Mehrabankhahi; Mostafa Leili; Reza Shokooni; Alireza Rahmani; Ghasem Azarian; Nasrin Shirmohammadi Khorram; Mahmood Razavi. The Optimization of Electrocoagulation Process Efficiency in the Removal of Amoxicillin Antibiotic and COD from Aqueous Solutions and Hospital Wastewater under Optimal Conditions: A Case Study of Alimoradian Hospital, Nahavand. *ŠJKU* 2023;27(1):135-155.

Copyright © 2018 the Author (s). Published by Kurdistan University of Medical Sciences. This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution-Non Commercial License 4.0 (CCBYNC), where it is permissible to download, share, remix, transform, and buildup the work provided it is properly cited. The work cannot be used commercially without permission from the journal

## بهینه‌سازی کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین و غلظت COD ناشی از آن از محلول‌های آبی و فاضلاب بیمارستانی در شرایط بهینه: مطالعه موردی بیمارستان علیمیرادیان نهاوند

غلامرضا کریم مهربانخواهی<sup>۱</sup>؛ مصطفی لیلی<sup>۲\*</sup>؛ رضا شکوهی<sup>۳</sup>؛ علیرضا رحمانی<sup>۴</sup>؛ قاسم آذریان<sup>۵</sup>؛ نسرين شیرمحمدی خرم<sup>۶</sup>؛ محمود رضوی<sup>۷</sup>

۱. دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، گرایش بهره برداری و نگهداری از تأسیسات بهداشتی شهری، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران. کد ارکید: ۴۵۰۵-۱۳۷۲-۰۰۰۲-۰۰۰۰

۰۰۰۰

۲. استاد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران. کد ارکید: ۰۰۳۸-۰۰۰۹-۰۰۰۱-۰۰۰۰

۳. استاد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران. پست الکترونیک: m.leili@umsha.ac.ir mostafa.leili@gmail.com

تلفن/ فکس: ۰۸۱۱۸۳۸۰۳۹۸؛ کد ارکید: ۸۶۳۲-۵۳۵۸-۰۰۰۲-۰۰۰۰

۴. استاد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران. کد ارکید: ۳۴۰۵-۸۰۶۷-۰۰۰۱-۰۰۰۰

۵. استادیار، معاونت تحقیقات و فناوری، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران. کد ارکید: ۹۳۲۱-۸۰۷۳-۰۰۰۱-۰۰۰۰

۶. کارشناس ارشد، گروه آمار زیستی و اپیدمیولوژی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران. کد ارکید: ۹۵۷۵-۳۸۰۰-۰۰۰۲-۰۰۰۰

۷. کارشناس بهداشت محیط بیمارستان علیمیرادیان نهاوند. کد ارکید: ۵۵۰۵-۵۷۱۴-۰۰۰۲-۰۰۰۰

### چکیده

**زمینه و هدف:** آموکسی سیلین آنتی بیوتیکی است که در پزشکی و دامپزشکی برای درمان عفونت‌های باکتریایی استفاده می‌شود. هدف این مطالعه طراحی سل الکتروشیمیایی ویژه‌ای بود که بتوان واحد فرآیندی و واحد عملیاتی را با هم ادغام نمود تا امکان کاهش غلظت‌های COD و حذف آنتی بیوتیک از فاضلاب بیمارستان علیمیرادیان نهاوند فراهم گردد.

**مواد و روش‌ها:** این پژوهش تجربی در دو بخش انجام گرفت. در مرحله اول فاضلاب سنتتیک تهیه شد و تأثیر پارامترهای مختلف از جمله زمان ماند، غلظت اولیه آنتی بیوتیک، دانسیته جریان، نوع الکترود و pH بر کارایی روش مورد بررسی قرار گرفت. برای بهینه سازی پارامترهای راهبری از روش طرح مرکب مرکزی رویه پاسخ استفاده شد. در مرحله دوم، کارایی روش در حذف آنتی بیوتیک و کاهش COD از فاضلاب واقعی بیمارستان علیمیرادیان نهاوند مورد ارزیابی قرار گرفت.

**یافته‌ها:** با استفاده از روش طرح مرکب مرکزی، شرایط بهینه با استفاده از داده‌های آزمایشگاهی به صورت زیر تعیین شد: زمان واکنش ۳۰ دقیقه، pH = ۷/۵، دانسیته‌ی جریان (CD) ۲/۳۱ میلی آمپر بر سانتیمتر مربع و غلظت اولیه‌ی آموکسی سیلین ۵۴/۶۶ میلی گرم بر لیتر. کارایی حذف آزمایشگاهی آنتی بیوتیک آموکسی سیلین ۹۰/۵۶٪ بدست آمد. همچنین نتایج نشان داد که در شرایط بهینه، میزان حذف COD و TOC از فاضلاب سنتتیک به ترتیب ۶۵/۵ و ۴۴/۵ درصد و در پساب واقعی بیمارستان علیمیرادیان نهاوند به ترتیب ۴۷/۷ و ۳۸ درصد بدست آمد.

**نتیجه گیری:** نتایج نشان داد میزان حذف COD و TOC از فاضلاب سنتتیک بیشتر از پساب واقعی می‌باشد که دلیل این اختلاف راندمان، احتمالاً به خاطر وجود برخی از ترکیبات مقاوم در پساب واقعی می‌باشد. این مطالعه تجربی نشان داد فرآیند الکتروکواگولاسیون یکجا می‌تواند روش موثرتری در حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین و غلظت COD ناشی از آن از محلول‌های آبی و فاضلاب بیمارستانی باشد.

**کلمات کلیدی:** فرآیند الکتروشیمیایی، بهینه سازی، بیمارستان علیمیرادیان، روش پاسخ سطح-طرح مرکب مرکزی (RSM-CCD)

وصول مقاله: ۱۴۰۰/۱۲/۱۴ اصلاحیه نهایی: ۱۴۰۱/۴/۱۹ پذیرش: ۱۴۰۱/۴/۲۸

## مقدمه

با رشد فزاینده جمعیت و گسترش صنعت و کشاورزی در سال‌های اخیر و کمبود آب سالم در جهان، ضرورت تصفیه و بازیابی مجدد آب‌های مصرفی اهمیت خاصی پیدا کرده است. در سال‌های اخیر، حضور ترکیبات فعال دارویی از جمله آنتی‌بیوتیک‌ها به عنوان آلاینده‌های نوظهور در محیط به خصوص منابع آبی نگرانی‌هایی را ایجاد نموده است (۱). آنتی‌بیوتیک‌ها حدود ۱۵٪ کل داروها را به خود اختصاص می‌دهند. سالانه صد هزار تا دویست هزار تن آنتی‌بیوتیک به‌طور گسترده در پزشکی، دامپزشکی و پرورش آبزیان به‌منظور پیشگیری، درمان عفونت‌های میکروبی و افزایش رشد دام‌ها و آبزیان در جهان مصرف می‌شود، که ورود آنتی‌بیوتیک‌ها و همچنین متابولیت‌های حاصل از آن‌ها در محیط‌های آبی در سال‌های اخیر نگرانی‌های زیادی را به دنبال داشته است (۲ و ۳). حضور آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط‌های آبی به عنوان یک نگرانی اصلی دیگر در ارتباط با آسیب به اکوسیستم‌ها مطرح است، زیرا پتانسیل اکوسیستم را دچار دگرگونی می‌نماید. مطالعات گوناگون نیز نشان داده‌اند که آنتی‌بیوتیک‌ها تقریباً غیرقابل تجزیه بیولوژیکی هستند. 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 محسوب می‌شوند (۴). این آنتی‌بیوتیک‌ها می‌توانند پس از ورود به محیط‌زیست به زنجیره غذایی وارد شده و بر سلامت انسان تأثیرگذار باشند و موجب ایجاد مقاومت باکتریایی گردند (۵). اگرچه غلظت آنتی‌بیوتیک‌ها و مواد دارویی در آب شرب در حد نانوگرم و میکروگرم است، اما بیشتر از ۸۰ نوع مختلف مواد دارویی فعال در محیط‌زیست در غلظت‌های تا حد میکروگرم در خروجی واحدهای تصفیه فاضلاب، آب‌های سطحی،

آب‌های زیرزمینی و آب شرب یافت شده است (۶). حدود ۹۰-۳۰٪ آنتی‌بیوتیک‌ها در بدن انسان و حیوانات متابولیزه نمی‌شوند و در نهایت از طریق ادرار و مدفوع به شکل فعال به محیط‌زیست وارد می‌شوند. همچنین درصد بالایی از ترکیبات آنتی‌بیوتیک مورد مصرف انسان، دام و همچنین آبزیان به‌صورت تغییرنیافته و یا به صورت متابولیت‌های دارویی از طریق ادرار و مدفوع به محیط تخلیه می‌شوند (۷). بنابراین لازم است این نوع فاضلاب‌ها قبل از تخلیه به محیط زیست یا بدنه‌های آبی مورد تصفیه قرار گیرند.

روش‌های متداول حذف آنتی‌بیوتیک‌ها و باقیمانده‌های دارویی از آب و فاضلاب شامل روش‌های شیمیایی و بیولوژیکی می‌باشند. از روش‌های شیمیایی می‌توان به ازن زنی (۸)، الکتروشیمیایی (۹)، تابش الکترونی (۱۰)، نانوفیلتراسیون (۱۱)، انعقاد شیمیایی (۱۲)، تعویض یونی (۱۳) و فرآیند جذب سطحی (۱۴) اشاره نمود. در فرآیندهای جذب صرفاً انتقال فاز آلاینده صورت می‌گیرد و هزینه بالای روش‌های شیمیایی باعث محدودیت کاربرد این روش‌ها می‌شود. فرآیندهای بیولوژیکی عمده برای حذف آنتی‌بیوتیک‌ها عبارت هستند از: تصفیه با روش لجن فعال، فرآیندهای بیوراکتورهای غشایی (Membrane bioreactor)، فرآیندهای بیوراکتورهای غشایی رشد چسبیده، نیزارهای مصنوعی، زیست راکتورهای نوری جلبکی (Algae photobioreactor) و برکه‌های تثبیت (۱۵). استفاده از فرآیندهای بیولوژیکی در تصفیه فاضلاب بیمارستانی بخاطر مزایای زیاد از جمله دوست دار محیط زیست بودن بسیار مورد توجه قرار گرفته است. از بین روش‌های موجود، فرآیند لجن فعال دارای کاربرد گسترده‌ای در تصفیه فاضلاب بیمارستانی در ایران و جهان می‌باشد، ولی به دلیل کیفیت پایین لجن تصفیه‌خانه و تلقیح نکردن به‌موقع لجن دارای کارکرد مناسبی نیست (۱۷) و (۱۶). همچنین حذف و تصفیه زیستی آنتی‌بیوتیک‌ها به دلیل

وجود حلقه پایدار نفتول (به عنوان ساختار اصلی) و سمیت آن برای میکروارگانیسم ها و همچنین تجزیه پذیری زیستی کم آن ها مشکل است (۱۹ و ۱۸).

بنابراین، پژوهشگران به دنبال استفاده از فرآیندهای جدید هستند که بتوانند با راهبری ساده آلاینده مورد نظر را با درصد بالایی حذف نموده و مشکلات زیست محیطی را کاهش دهند. از روش های جدید و مطرح در زمینه تصفیه آلاینها به ویژه آلایند های آلی، فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی یا الکتروکواگولاسیون است. فرآیند انعقاد الکتروشیمیایی در تصفیه آب و فاضلاب در محدوده و سعی کاربرد دارد و کارایی بالایی در حذف آلودگی های آلی، معدنی، و پاتوژن ها دارد. این فرآیند برای ناپایدار کردن ذرات سوسپانسیون معلق و آلایند های محلول می باشد (۲۱ و ۲۰). در فرآیند الکترو کواگولاسیون، الکترو د آند یون های فلزی را به الکترو لیت وارد می کنند (۲۳ و ۲۲). در مقایسه با انعقاد معمولی الکتروکواگولاسیون دارای چندین مزیت است، که می توان به بهره برداری ساده، مقدار کم لجن تولیدی و حذف سریع آلایند های آلی از فاضلاب اشاره کرد (۲۴).

الکتروکواگولاسیون (Electrocoagulation, EC) توانسته است به عنوان یک روش موثر برای تصفیه انواع فاضلاب های صنعتی مطرح گردد. این فرآیند از جریان الکتریکی مستقیم برای تولید یون های فلزی در محلول استفاده می کند. ماده منعقد کننده در این فرآیند به وسیله انحلال آند قربانی تولید می شود (۲۵). آلایند های موجود در محلول های آبی طی واکنش های شیمیایی و فیزیکی طی مکانیسم انعقاد، جذب و ترسیب آلایند حذف می گردند. در این فرآیند با استفاده از الکترودهای مختلف، یون های فلزی که دارای بار الکتریکی و خاصیت جذب بالا هستند هیدروکسید های فلزی، پلیمرها و مونومرها را تشکیل می دهند و با آلایند ها تشکیل لخته داده و با دو مکانیسم ته نشینی و یا شناور سازی از محلول جدا می گردند.

الکتروکواگولاسیون به طور موفقیت آمیزی برای تصفیه فاضلاب های مختلفی از جمله صنعت آبکاری (۲۲)، شیرابه های محل دفن (۲۶)، و نیز بطور گسترده برای حذف آرسنیک (۲۷)، سولفید، سولفات، و سولفیت (۲۸)، کروم شش ظرفیتی (۲۹)، استفاده شده است. بنابراین EC توانسته است بر عدم موفقیت تکنولوژی های تصفیه آب و فاضلاب معمول غلبه کند و یک روش با هزینه/اثربخشی مناسب، قابل اعتماد، ساده و ارزان را برای تصفیه فاضلاب بدون نیاز به افزودن مواد شیمیایی فراهم نماید (۲۸).

هر چند برخی از بیمارستان های کشور دارای سیستم تصفیه فاضلاب هستند. ولی عمده بیمارستان ها فاقد سیستم تصفیه فاضلاب بوده و فاضلاب آنها بدون تصفیه و یا با یک تصفیه مقدماتی وارد فاضلابرو شهری می گردد. با توجه به قرارگیری بیمارستان ها در محدوده اماکن مسکونی استفاده از برخی سیستم های متداول مانند، سیستم های بیولوژیکی به دلیل تولید و انتشار بوهای نامساعد، مناسب نبوده و برخی از آنها نیز به دلیل نیاز به تجهیزات پیشرفته و یا نیاز به استفاده از مواد شیمیایی مقبولیت ندارند. همچنین برخی از این سیستم ها دارای واحدهای عملیاتی و فرآیندی متعدد بوده که به دلیل وجود محدودیت زمین قابل کاربرد در محوطه بیمارستان نیستند. اخیراً استفاده از روش های انعقاد الکتریکی به دلیل نیاز به زمین کمتر و نیاز کمتر به مواد شیمیایی از مقبولیت بسیار زیادی برای تصفیه آب و فاضلاب برخوردار بوده به نحوی که می توان با طراحی ویژه واحدهای عملیاتی و فرآیندی را در این روش ادغام نمود. لذا در این مطالعه که در مقیاس آزمایشگاهی انجام گرفت به عنوان نوآوری تحقیق از یک طراحی سل الکتروشیمیایی ویژه استفاده شد که بتوان واحد فرآیندی (انعقاد الکتریکی) و واحد عملیاتی (واحد ته نشینی و شناور سازی) را با هم ادغام نمود (الکتروکواگولاسیون یکجا)، تا در شرایط بهینه بدست آمده، میزان کاهش آنتی بیوتیک آموکسی سیلین و COD ناشی از آن از فاضلاب بیمارستان علیمردیان نهاوند مورد

صورت شعاعی (با هدف تولید یون‌های فلزی از سطح آند قربانی و تولید هیدروکسیدهای فلزی جهت لخته‌سازی) در داخل راکتور جانمایی شد. تمام الکترودها با آرایش مونوپلار به طور جداگانه به مولد جریان الکتریسته از نوع مستقیم (ساخت شرکت داژنگ در محدوده کارایی صفر تا ۳۰ ولت) وصل شد. در طول انجام واکنش، محتویات داخل راکتور توسط همزن با سرعت ۱۰۰ دور بر دقیقه (rpm) هم زده شد.

در بخش اول، از فاضلاب سنتتیک جهت بررسی کارایی راکتور در حذف آنتی بیوتیک و به منظور بهینه‌سازی پارامترهای راهبری استفاده شد. همچنین از غلظت ۱/۵-۰/۵ میلی گرم بر لیتر NaCl به عنوان الکترولیت کمکی برای دو جنس الکتروده آهن و آلومینیوم شد. قبل از انجام هر آزمایش ابتدا الکترودها با سنباده نرم (۲۰۰) صیقل داده شد و با محلول اسید کلریدریک ۱۵ درصد و سپس با آب مقطر شستشو شدند. کلیه مراحل انجام آزمایش در دمای اتاق انجام گرفت. در مرحله دوم برای مقایسه کارایی انعقاد الکتریکی ساده (مجزا) و فرآیند تلفیقی انعقاد الکتریکی و شناورسازی (یکجا) از فاضلاب سنتتیک و واقعی استفاده شد. کارایی فرآیند جهت تصفیه فاضلاب مورد مطالعه در شرایط مختلف با بررسی متغیرهای pH (۵-۱۰)، دانسیته جریان ( $1/5-0/5 \text{ A/cm}^2$ )، جنس الکتروده (آهن و آلومینیوم)، زمان واکنش (۵۰-۱۰ دقیقه)، غلظت آنتی بیوتیک (۵-۸۰ mg/L) مورد ارزیابی قرار گرفت (لازم به توضیح است مقادیر پیش فرض بر اساس مطالعات مشابه انتخاب شده، و مقادیر دقیق با انجام آزمایشات پری تست در طول انجام تحقیق مشخص شدند).

متغیرها در این مطالعه به روش طرح مرکب مرکزی رویه پاسخ جهت مدل‌بندی و بهینه‌سازی طراحی شد. در این مطالعه از آنتی بیوتیک آموکسی سیلین با درجه خلوص ۱۰۰ درصد استفاده شد. فرمول شیمیایی آنتی بیوتیک مورد استفاده بصورت  $\text{C}_{16}\text{H}_{19}\text{N}_3\text{O}_5\text{S}$  با وزن مولکولی

بررسی قرار گیرد و کارایی آن با روش الکتروکواگولاسیون مجزا مورد مقایسه قرار گیرد. روش‌های رویه پاسخ مجموعه‌ای از تکنیک‌های آماری و ریاضی مبتنی بر برازش معادله چند جمله‌ای به داده‌های آزمایش است که با ساخت نمودارهای رویه پاسخ در ناحیه‌ی مورد مطالعه می‌تواند چگونگی رفتار متغیرها را نشان دهد. بنابراین این روش شامل مجموعه‌ای از تکنیک‌ها جهت جستجوی مقادیر بهینه پارامترهای موثر بر پاسخ می‌باشد (۳۰). لذا هدف اصلی این مطالعه طراحی سل الکتروشیمیایی ویژه‌ای بود که بتوان واحد فرآیندی و واحد عملیاتی را با هم ادغام نمود تا امکان کاهش غلظت‌های COD و حذف آنتی بیوتیک از فاضلاب بیمارستان علیم‌رادیان نهاوند فراهم گردد. هدف دیگر این مطالعه، بهینه‌سازی پارامترهای راهبری در حذف آن از محلول‌های آبی با استفاده از روش رویه - پاسخ بود.

## مواد و روش‌ها

مشخصات راکتور مورد مطالعه:

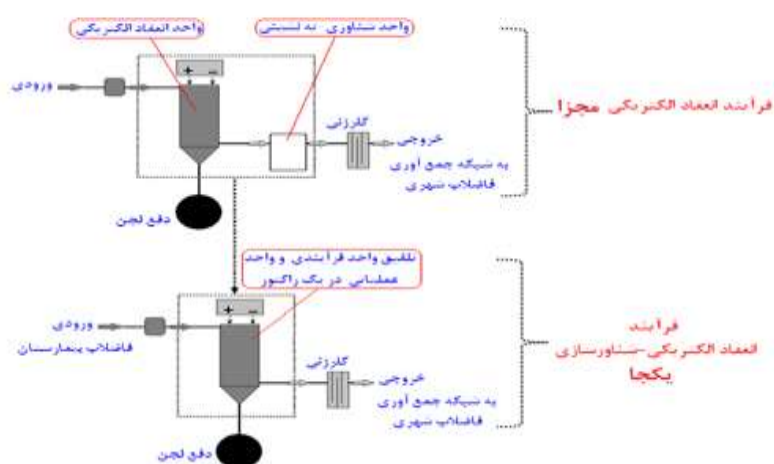
راکتورهای مورد استفاده در این مطالعه شامل دو راکتور مجزا و تلفیقی بود که در مقیاس آزمایشگاهی و با جریان هیدرولیکی منقطع مورد بهره‌برداری قرار گرفت. در راکتور تلفیقی (یا یکجا) واحدهای الکتروشیمیایی و شناورسازی مشترک است. راکتور انعقاد الکتریکی-شناورسازی الکتریکی به صورت استوانه‌ای و به حجم مفید ۱ لیتر بود. جفت الکترودهای انعقاد الکتریکی در بالای راکتور و از جنس آلومینیوم و یا آهن با سطح موثر ۴۳۲ سانتی‌متر مربع و با فاصله ۱ سانتیمتر از هم (با هدف تولید یون‌های فلزی از سطح آند قربانی و تولید هیدروکسیدهای فلزی جهت لخته‌سازی) در داخل راکتور جانمایی شد. با هدف تسریع شناورسازی بیشتر لخته‌های تولیدی و برای تولید گاز هیدروژن و اکسیژن بیشتر از جفت الکتروده استیل زنگ‌زن در نزدیک کف راکتور استفاده شد. (شکل ۱). جفت الکترودهای انعقاد الکتریکی با فاصله ۱ سانتیمتر از هم و به

محلول آنتی بیوتیک، ۱ گرم از آنرا با ترازوی دیجیتال وزن کرده و در آب دوبار تقطیر حل کرده و حجم محلول به یک لیتر رسید و به این ترتیب محلول مادر آنتی بیوتیک سنتتیک یک گرم بر لیتر تهیه شد و با تکنیک رقیق سازی محلول‌هایی با غلظت‌های مورد نظر در غلظت‌های بین (۵-۸۰ mg/L)، از آن تهیه می‌شود. برای تعیین غلظت آنتی بیوتیک در محلول‌های مایبی از دستگاه اسپکتروفتومتر UV استفاده شد (۸). به این ترتیب که با ترسیم منحنی کالیبراسیون در غلظت‌های مختلف، معادله خط مربوط به جذب و غلظت تعیین شد و غلظت‌های مختلف ورودی و خروجی فرآیند از طریق معادله خط بدست آمده، محاسبه شد. برای راه اندازی راکتور در هر مرحله ۱۰۰۰ mL فاضلاب سنتتیک با غلظت‌های معین آموکسی سیلین و پس از تنظیم pH در محدوده ۵-۱۰ وارد راکتور شد، و زمان ماند نیز در پنج سطح در نظر گرفته شد، و بعد از بکار انداختن راکتور جهت تعیین پارامترهای بهینه راه اندازی شد. شاخص بار آلی در این مطالعه، COD می‌باشد. برای اندازه گیری COD از روش رنگ سنجی (رفلاکس بسته) طبق روش 5220D کتاب استاندارد متد و برای اندازه-

گیری TSS از روش وزن سنجی بر اساس روش استاندارد کتاب استاندارد متد آزمایشات آب و فاضلاب استفاده شد (۳۱). جهت تنظیم pH از pH متر پرتابل مدل Sensl Hach ساخت آلمان استفاده شد. در بخش دوم، کارایی راکتور در کاهش غلظت COD، TSS و TDS فاضلاب واقعی برداشت شده از بیمارستان علیمردیان نهاوند تحت شرایط بهینه بدست آمده در مرحله قبل مورد ارزیابی قرار گرفت. نمونه بردای از پساب خروجی تصفیه خانه فاضلاب بیمارستان علیمردیان بصورت ساده انجام شد. با توجه به تنوع آنتی بیوتیک‌های استفاده شده در بیمارستان علیمردیان و همچنین غلظت پایین آنها در پساب خروجی از تصفیه خانه بیمارستان و نیاز به اندازه گیری دقیق آن توسط دستگاه‌های پیشرفته آنالیز دستگاهی مثل HPLC، امکان استفاده از آن در این پایان نامه مقدور نبود لذا برای رفع این مشکل از شاخص COD و TOC جهت بررسی کارایی روش استفاده شد که به عنوان شاخص در تحقیقات مشابه مورد استفاده قرار گرفته است. راکتور مورد استفاده در تحقیق در شکل (۱) نشان داده شده است.



(الف)



(ب)

شکل ۱. (الف) راکتور انعقاد الکتریکی، (ب) جفت الکترودهای فرآیند انعقاد الکتریکی، (ج) راکتور انعقاد الکتریکی-شناورسازی الکتریکی.

تجزیه و تحلیل داده‌ها:

کارایی سیستم مورد مطالعه در حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین و کاهش غلظت COD با استفاده از معادله زیر مورد ارزیابی قرار گرفت:

$$\text{کارایی (\%)} = \left( \frac{X_i - X_t}{X_i} \right) \times 100$$

(۱)

در معادله بالا، کارایی راکتور (%)، و  $X_i$  و  $X_t$  به ترتیب غلظت در ورودی (یا زمان صفر) و غلظت در زمان  $t$  می‌باشد.

بهینه‌سازی آماری:

طرح مرکب مرکزی رویه پاسخ جهت مدل‌بندی و بهینه‌سازی استفاده شد. با توجه به سلسله مراتبی بودن اجرای طرح مرکب مرکزی تعداد آزمایشات بر اساس نقاط اصلی،

نقاط محوری و نقاط مرکزی در طول اجرا مشخص شد. درجه‌ی مدل بر اساس بهترین مدل برازش شده در هر مرحله از آزمایش و مرحله‌ی نهایی مشخص شد. تحلیل و طراحی آزمایشات با استفاده از نرم افزارهای  $R$  ۳/۲ و Design Expert 7 و در سطح اطمینان ۹۵٪ انجام شد. مقادیر محدوده‌های پیش فرض متغیرهای مستقل، مقادیر گذشته و مقادیر واقعی آنها در جدول ۱ نشان داده شده است. با در نظر گرفتن محدوده زمان ۴ سطح، تعداد سطوح شدت جریان الکتریکی ۴ سطح، تعداد ۴ سطح pH و ۴ سطح غلظت آموکسی سیلین و با در نظر گرفتن طرح مرکب مرکزی و به روش سلسله مراتبی آزمایشات در هر مرحله مشخص و تعداد نمونه‌ی مورد نیاز در این تحقیق در طول آزمایش مشخص شد (جدول ۲).

جدول ۱. مقادیر محدوده‌های متغیرهای مستقل، مقادیر کد شده و مقادیر واقعی آنها

نماد	متغیر مستقل	سطح کد شده متغیرها				
		-۲	-۱	۰	+۱	+۲
$X_1$	زمان (دقیقه)	۱۰	۲۰	۳۰	۴۰	۵۰
$X_2$	pH	۵	۶/۲۵	۷/۵	۸/۷۵	۱۰
$X_3$	دانسیته جریان ( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )	۰/۵	۰/۷۵	۱	۱/۲۵	۱/۵
$X_4$	غلظت آموکسی سیلین ( $\text{mg}/\text{L}$ )	۵	۲۳/۷۵	۴۲/۵۰	۶۱/۲۵	۸۰

جدول ۲. تعداد آزمایشات بر اساس محدوده‌های تعریف شده در جدول ۱

#run	Coded variable level			
	Time	pH	CD	Conc.
1	1	1	-1	-1
2	1	1	1	-1
3	-1	1	1	1
4	-1	-1	-1	1
5	1	-1	1	-1
6	-1	-1	1	-1
7	-1	1	1	-1
8	1	1	1	1
9	-1	-1	1	1
10	1	1	-1	1
11	1	-1	1	1
12	1	1	-1	-1
13	-1	1	-1	1
14	1	-1	-1	-1
15	1	-1	-1	1
16	-1	-1	-1	-1
17	0	-2	0	0
18	0	2	0	0
19	0	0	0	-2
20	0	0	0	0
21	-2	0	0	0
22	0	0	0	0
23	0	0	-2	0
24	0	0	2	0
25	0	0	0	2
26	2	0	0	0
27	0	0	0	0
28	0	0	0	0



## یافته‌ها

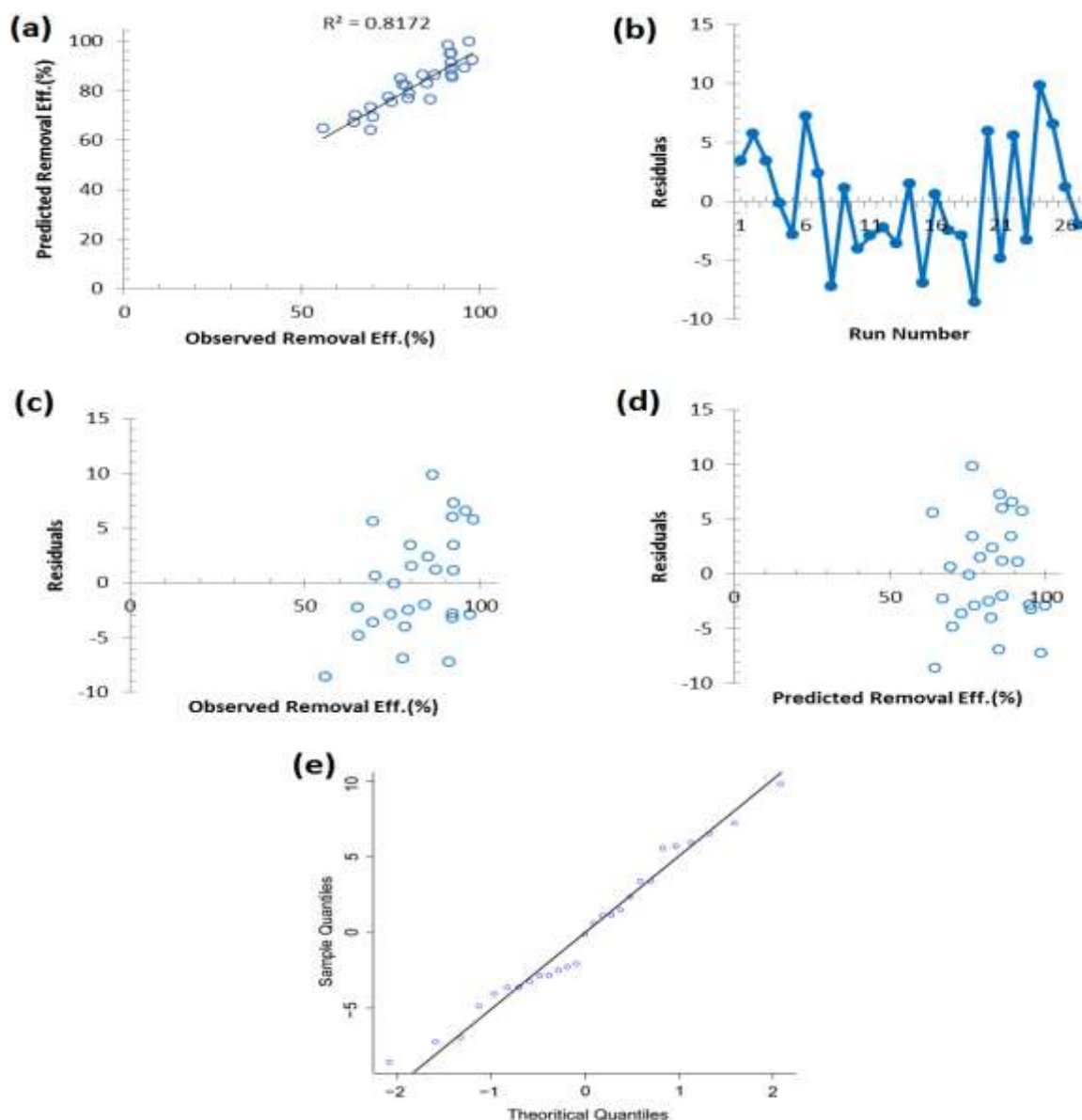
نتایج طراحی آزمایش:

به منظور ارزیابی اثرات چهار متغیر روی درصد حذف آموکسی سیلین روش رویه پاسخ طراحی مرکب مرکزی به کار گرفته شد. یک مدل درجه دو که رابطه بین پارامترها و درصد حذف را توصیف می کند به صورت معادله زیر به دست آمد:

$$Y = 86.23 - 6.55(\text{Block}) + 4.76(X_1) - 1.15(X_2) + 7.89(X_3) + 2.97(X_4) - 2.29(X_4)^2 \quad (2)$$

که در آن Y درصد حذف، Block یکی از دو مرحله طرح مرکب مرکزی،  $X_1$ ،  $X_2$ ،  $X_3$ ،  $X_4$  پارامترهای کدبندی شده پارامترها،  $(X_4)^2$  اثر درجه دوم پارامتر غلظت اولیه است.

به منظور بررسی کفایت مدل تحلیل واریانس انجام شد. مدل نهایی پیشنهادی برای پیش بینی درصد حذف تحت شرایط مختلف پارامترهای مورد بررسی، ضریب تعیین مطلوبی  $R^2=0.82$  را نشان داد. ضریب تعیین تعدیل شده  $\text{adjusted } R^2=0.76$  نیز قابل قبول و نزدیک به ضریب تعیین بود. ارزیابی مفروضات رگرسیونی با استفاده از نمودارهای زیر انجام شد. نمودار ۲a نشان می دهد توافق مطلوبی بین درصد حذف مشاهده شده و برآورد شده وجود دارد. نمودار ۲b، الگوی تصادفی برای توزیع باقیمانده ها و در نتیجه آزمایشات را نشان می دهد. نمودارهای ۲c و ۲d الگوی تصادفی پراکندگی نقاط حول خط راست را نشان می دهد. نمودار ۲e نمودار وزیع احتمال نرمال باقیمانده ها را نشان می دهد. بنابراین مدل درجه دو پیشنهادی مناسب است.



شکل ۲. ترسیم باقیمانده‌ها برای ارزیابی کفایت مدل

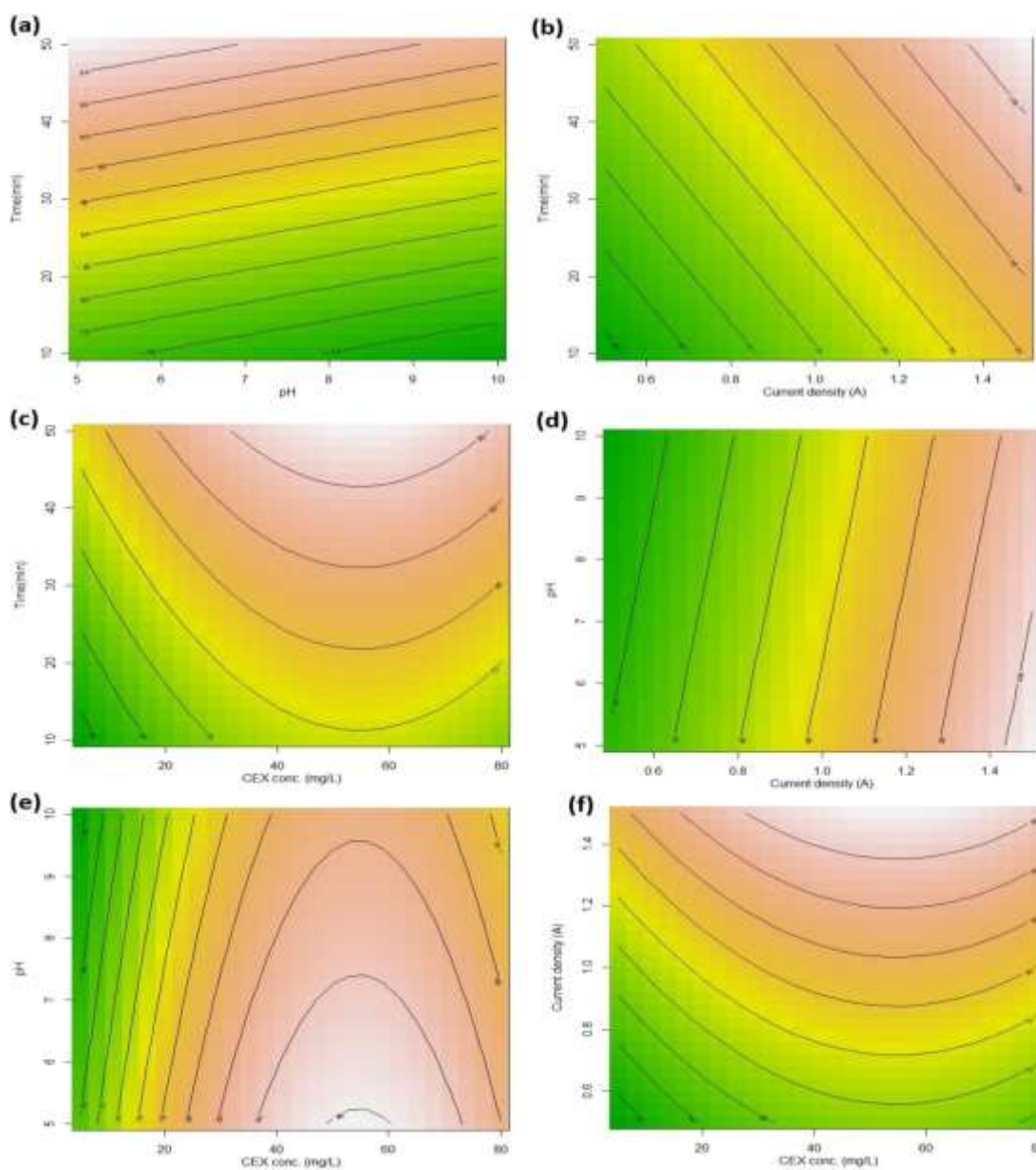
اثرات متقابل پارامترهای راهبری:

نمودارهای سطح پاسخ و کانتر برای حذف آموکسی سیلین به عنوان تابعی از متغیرهای مورد مطالعه در شکل ۳ نشان داده شده است. هر منحنی کانتر یک عدد مؤثر از ترکیبی از دو متغیر آزمایش را نشان می‌دهد که با دو متغیر دیگر در سطح صفر خود نگهداشته شده‌اند. حداکثر مقدار پیش بینی شده توسط سطح محدود شده در کوچکترین بیضی در نمودار کانتر مشخص شده است. در این روش مشخص

شده است که در صورت وجود برهمکنش خوب بین متغیرهای مستقل، خطوط بیضوی بدست می‌آیند. همانگونه که در شکل‌ها مشاهده می‌شود نقاط بهینه برای متغیرهای مختلف، متفاوت بوده و بستگی به سطح و مقادیر متغیر تغییر می‌کند.

با استفاده از طرح مرکب مرکزی رویه پاسخ و مدل پیشنهادی شرایط بهینه بیشینه سازی درصد حذف به صورت زیر به دست آمد:

زمان (دقیقه)	pH	دانشیته جریان (آمپر)	غلظت (mg/L)
۳۰	۷/۵	۱	۵۴/۶۶



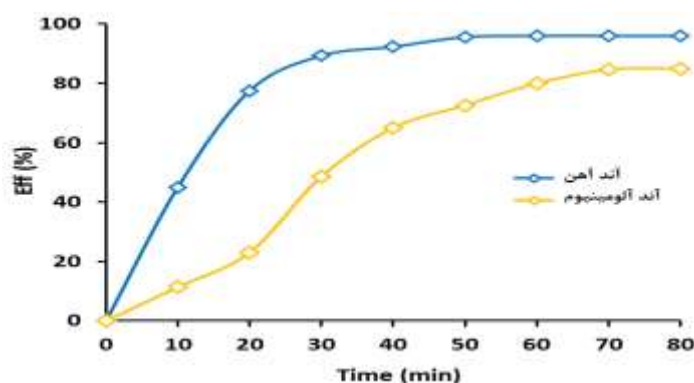
شکل ۳. نمودار کانتور بازده حذف آموکسی سیلین، به عنوان تابعی از برهم کنش زمان (دقیقه)، pH، دانشیته ی جریان ( $\text{mA/cm}^2$ ) و غلظت آموکسی سیلین (میلی گرم در لیتر) در مرکز (بهینه) سایر پارامترها

بین دانسیته جریان و غلظت اولیه را در شرایط بهینه سایر پارامترها را نشان می‌دهد. درصد حذف از مینیمم مقدار ۵۵ در سمت چپ پایین نمودار به ماکزیمم مقدار ۹۵ در سمت راست بالای نمودار افزایش یافته است.

مقایسه کارایی آند آهن و آلومینیوم:

از نقاط بهینه بدست آمده از طرح مرکب مرکزی رویه پاسخ و مدل پیشنهادی استفاده شد و کارایی دو الکترود آهن و آلومینیوم برای حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین مورد بررسی قرار گرفت. همان‌طوری که در شکل ۴ مشاهده می‌شود کارایی الکترود آهن بهتر از الکترود آلومینیوم می‌باشد. بیشترین راندمان حذف آنتی‌بیوتیک با استفاده از الکترود آهن و آلومینیوم به ترتیب در مدت زمان بهینه ۳۰ دقیقه و به ترتیب به میزان ۹۰ و ۸۴ درصد بدست آمد. هنگام استفاده از الکترود آلومینیوم برای حذف کامل آنتی‌بیوتیک به مدت زمان طولانی‌تر نیاز است. همچنین لجنی با حجم بالا با خصوصیات شناورسازی پایین تولید می‌گردد. همچنین، فلوک‌های تولید شده متراکم نبوده و لجن ژله‌ای با خصوصیات جذب پایین تولید می‌کنند که توانایی لازم برای به دام اندازی آلاینده‌ها را به طور کامل ندارد (۳۰). البته نتایج بستگی به ماهیت فاضلاب خواهد داشت.

شکل ۳ (a) اثر متقابل بین pH و زمان را در شرایط بهینه سایر پارامترها نشان می‌دهد. درصد حذف از مینیمم مقدار ۷۴ در سمت راست پایین نمودار به ماکزیمم مقدار ۹۴ در سمت چپ بالای نمودار افزایش یافته است. شکل ۳ (b) اثر متقابل بین دانسیته جریان و زمان را در شرایط بهینه سایر پارامترها نشان می‌دهد. درصد حذف از مینیمم مقدار ۶۰ در سمت چپ پایین نمودار به ماکزیمم مقدار ۱۰۰ در سمت راست بالای نمودار افزایش یافته است. شکل ۳ (c) اثر متقابل بین غلظت اولیه و زمان را در شرایط بهینه سایر پارامترها نشان می‌دهد همانگونه که مشاهده می‌شود درصد حذف از مینیمم مقدار ۶۰ در سمت چپ پایین نمودار به ماکزیمم مقدار ۹۰ در سمت راست بالای نمودار افزایش یافته است. اثر متقابل بین pH و دانسیته جریان را در شرایط بهینه سایر پارامترها در شکل ۳ (d) نشان داده شده است. در اینجا نیز درصد حذف از کمترین مقدار ۷۰ در سمت چپ نمودار به بیشترین مقدار ۱۰۰ در سمت راست نمودار افزایش یافته است. شکل ۳ (e) اثر متقابل بین pH و غلظت اولیه را در شرایط بهینه سایر پارامترها نشان می‌دهد. همانگونه که مشاهده می‌شود درصد حذف از کمترین مقدار ۶۶ در سمت چپ نمودار به ماکزیمم مقدار ۸۶ در مرکز نمودار افزایش یافته است و شکل ۳ (f) نیز اثر متقابل

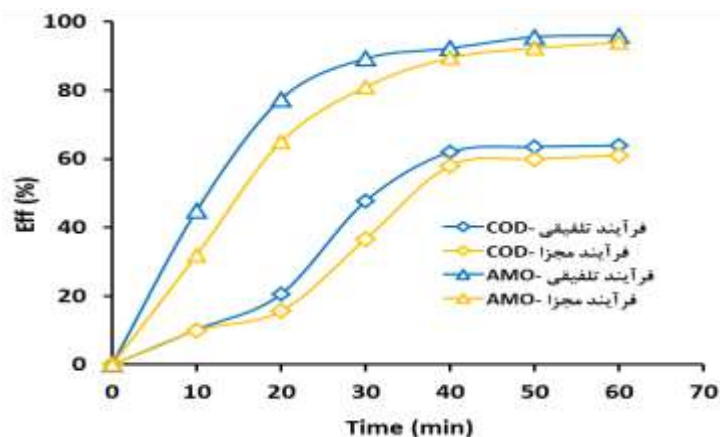


شکل ۴. مقایسه کارایی الکترود آهن و آلومینیوم طی فرآیند انعقاد الکتریکی یکجا جهت حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین در شرایط بهینه، pH=۷/۵، دانسیته‌ی جریان الکتریکی (1A) و غلظت آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین (۵۴mg/L).

حذف COD به مدت زمان بیشتری نیاز بوده و در مدت زمان ۴۰ دقیقه و به میزان ۶۲ درصد بدست آمد. هرچند در فرآیند انعقاد الکتریکی مکانیسم اصلی حذف آلاینده انعقاد می باشد اما احتمال تخریب ملکول آلاینده به ملکول های کوچکتر نیز وجود دارد که نمی توانند به روش لخته سازی و ترسیب حذف گردد لذا مقدار حذف آنتی بیوتیک بیشتر از مقدار حذف COD بدست آمد (۸). حذف آنتی بیوتیک و COD در فرآیند انعقاد الکتریکی مجزا تقریباً مشابه فرآیند تلفیقی بوده و به مقدار جزیی از فرآیند انعقاد الکتریکی یکجا کمتر است و در مدت زمان ۳۰ دقیقه به ترتیب به میزان ۸۱/۰ و ۳۶/۶ درصد می باشد این درحالی است که برای حذف COD به مدت زمان بیشتری نیاز بوده و در مدت زمان ۴۰ دقیقه و به میزان ۵۸ درصد بدست آمد.

از نقاط بهینه بدست آمده، از طرح مرکب مرکزی رویه پاسخ و مدل پیشنهادی استفاده شده، و کارایی راکتور در تصفیه فاضلاب واقعی (پساب تصفیه خانه فاضلاب بیمارستان علیمردیان) مورد ارزیابی قرار گرفت. مقایسه کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی مجزا و انعقاد الکتریکی یک:

کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی مجزا و انعقاد الکتریکی یکجا در حذف COD، آنتی بیوتیک آموکسی سیلین و مواد معلق (TSS) از پساب تصفیه خانه فاضلاب بیمارستان علیمردیان در شکل ۵ نشان داده شده است. همانطوری که ملاحظه می گردد در فرآیند انعقاد الکتریکی یکجا راندمان حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین بیشتر از مقدار حذف COD بوده و در مدت زمان ۳۰ دقیقه به ترتیب به میزان ۸۹/۳ و ۴۷/۷ درصد می باشد. این درحالی است که برای

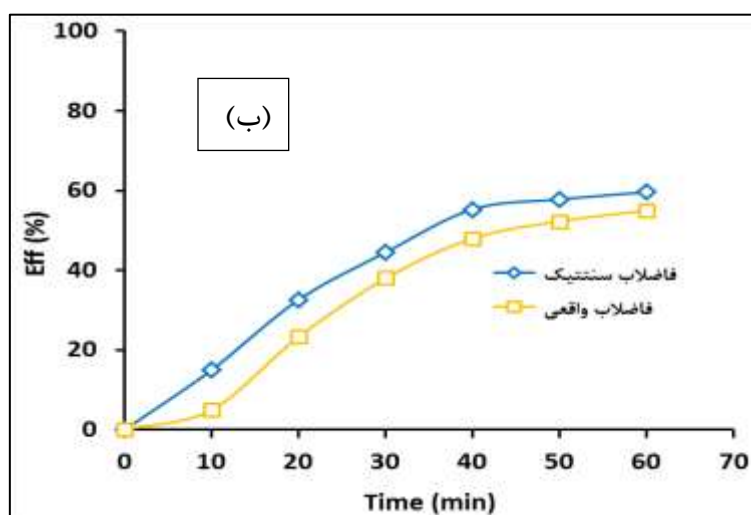
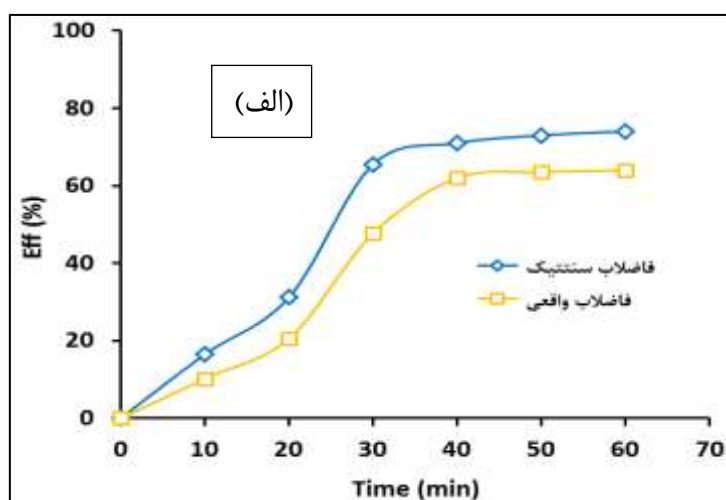


شکل ۵. مقایسه کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی مجزا و یکجا جهت حذف COD و آنتی بیوتیک آموکسی سیلین در پساب واقعی در شرایط بهینه

پساب واقعی می باشد. به طوری که در مدت زمان بهینه ۳۰ دقیقه (برای حذف آنتی بیوتیک) مقدار حذف COD و TOC در فاضلاب سنتتیک به ترتیب برابر با ۶۵/۵ و ۴۴/۵ درصد و در پساب واقعی ترتیب برابر با ۴۷/۷ و ۳۸ درصد می باشد. هرچند نقطه بهینه برای حذف COD و TOC در زمان ماند ۴۰ دقیقه (برای پساب واقعی) به ترتیب برابر با ۶۲ و ۴۸ درصد بدست آمد.

بررسی حذف COD و TOC :

تاثیر تلفیق واحد فرآیندی با واحد عملیاتی در یک راکتور (انعقاد الکتریکی یکجا) در حذف COD (شکل ۶-الف) و TOC (شکل ۶-ب) از فاضلاب سنتتیک و پساب تصفیه خانه فاضلاب بیمارستان علیمردیان نهانند در شرایط بهینه، pH=۷/۵، دانسیته ی جریان الکتریکی (1A) و غلظت آنتی بیوتیک آموکسی سیلین (۵۴mg/L) نشان داد، که حذف COD و TOC در فاضلاب سنتتیک بیشتر از



شکل ۶. تأثیر تلفیق واحد فرآیندی با واحد عملیاتی در یک راکتور (انعقاد الکتریکی یکجا) در حذف COD (الف) و TOC

(ب)

شده است. همانطوری که ملاحظه می گردد مقادیر میانگین TDS و EC قبل و بعد از فرآیند از تغییرات بسیار کمی برخوردار بوده و به مقدار جزیی در پساب تصفیه شده کاهش می یابد. مقدار EC به طور متوسط از مقدار  $1319 \mu\text{S}/\text{cm}^2$  به  $1178 \mu\text{S}/\text{cm}^2$  و مقدار TDS نیز به

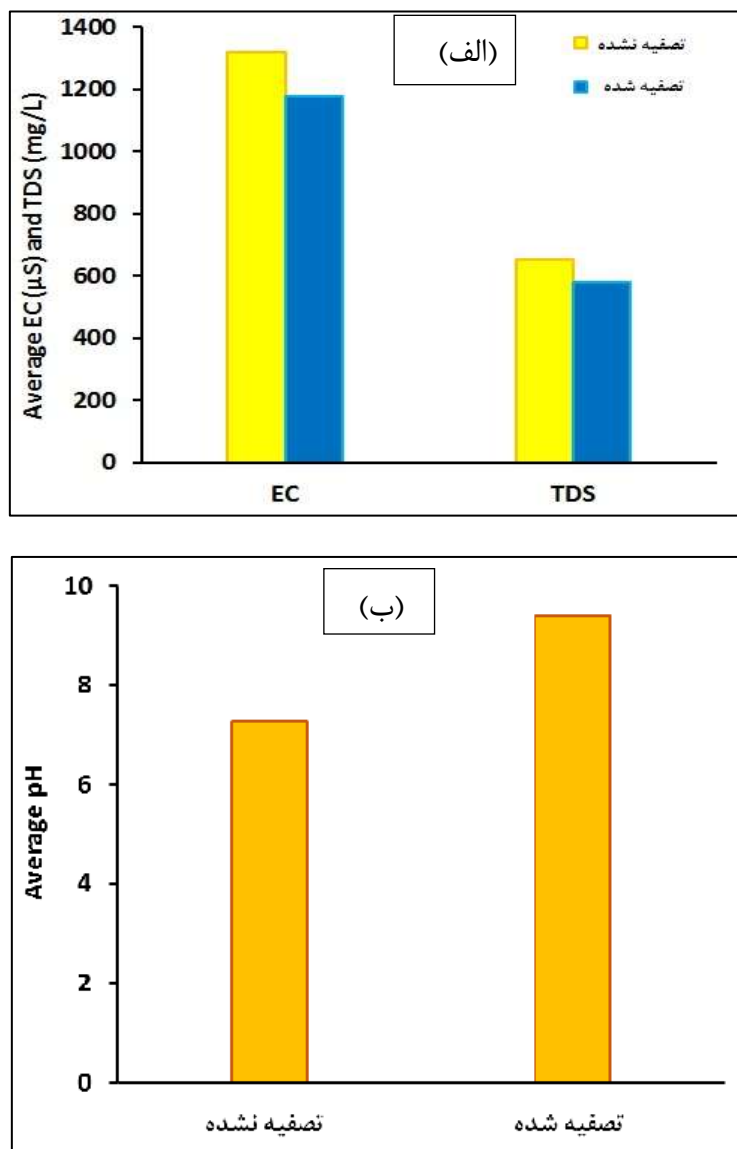
بررسی تغییرات TDS، EC و pH:

تغییرات TDS، EC و pH قبل و بعد از تصفیه پساب تصفیه خانه فاضلاب بیمارستان علیمزادیان نهاوند با استفاده از فرآیند انعقاد الکتریکی یکجا مورد بررسی قرار گرفت. مقادیر به صورت میانگین (در تعداد کل ۷ نمونه) مورد بررسی گزارش گردیده و نتایج در شکل ۷ (الف) نشان داده

واکنش انعقاد الکتریکی افزایش می‌یابد. به طوری که پس از طی ۴۰ دقیقه واکنش به طور متوسط از مقدار اولیه ۷/۳ به مقدار ۹/۴ افزایش یافت (شکل ۷ (ب))

طور متوسط از مقدار ۶۵۴ mg/L به ۵۸۱ mg/L کاهش یافت.

همچنین در این مطالعه مقدار تغییرات pH نیز مورد بررسی قرار گرفت. نتایج مطالعه نشان داد pH فاضلاب پس از طی



شکل ۷. تغییرات (الف) EC و TDS و (ب) pH قبل و بعد از تصفیه پساب تصفیه خانه فاضلاب بیمارستان علیمیرادیان نهاوند

بر اساس نتایج ارائه شده، مقادیر حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی سیلین برای سطوح مختلف متغیرها متفاوت بوده، و برهم‌کنش متغیرها نیز برای سطوح مختلف نتایج متفاوتی به همراه دارد. روش CCD و RSM امکان بررسی و تفسیر

## بحث

بررسی نتایج حاصل از مدل برای بهینه‌سازی پارامترهای بهره‌برداری:

هر دو اثر اصلی و برهم کنشی را فراهم می آورد. این تفسیر با استفاده از اشکال غیرخطی در فضایی چند بعدی ایجاد می شود (۳۰). در مورد تأثیر pH محلول و برهم کنش آن با سایر متغیرها می توان گفت pH اولیه محلول آبی به عنوان یکی از فاکتورهای اصلی بهره برداری، به علت تأثیر در عملکرد انعقاد الکتروشیمیایی، مورد توجه است (۳۲). رادیکال های هیدروکسیدهای فلزی تولید شده در pH خنثی و کمی بازی نسبت به سایر pH ها مهمترین عامل انعقاد و شناورسازی محسوب می شود، بنابراین شرایط خنثی برای حذف این آنتی بیوتیک طی فرآیند انعقاد الکتریکی مطلوب تر است (۳۳). هر چند که در سایر سطوح pH نیز کارایی حذف قابل قبول می باشد که می تواند ناشی از اکسیداسیون مستقیم آنتی بیوتیک باشد. در این مطالعه بین غلظت اولیه و pH رابطه ای معنی دار آماری مشاهده نشد ( $P=0/317$ ). نتایج مشابه در سایر مطالعات در مورد تأثیر pH در ارتباط با تجزیه ی سایر آلاینده های دارای ترکیب حلقوی مشابه مثل حشره کش ها گزارش شده است. در مطالعه ی Garrett جهت تجزیه ی الکتروشیمیایی سموم مالاتیون، ایمیداکلوپرید و کلروپیرفوس مشاهده شد که بیشترین راندمان حذف COD در شرایط نسبتاً اسیدی بدست می آید (۳۴). در مطالعه ی Abdel-Gawad و همکاران جهت حذف حشره کش های مالاتیون، ایمیداکلوپرید و کلروپیرفوس با استفاده از الکتروآهن مشخص گردید که pH بهینه بین محدوده ی ۵ تا ۷ قرار دارد، که می تواند ناشی از اکسیداسیون مستقیم آلاینده باشد (۳۵). در مطالعه ی دیگر همین محقق جهت حذف حشره کش های فوق الذکر از فاضلاب های کشاورزی با استفاده از الکترودهای  $Ti/TiO_2/Rh_2O_3$  مناسب بودن شرایط اسیدی برای تجزیه را تأیید کرده و مشخص گردید که pH بهینه حذف برابر ۳ می باشد (۳۶). پارامتر مهم دیگر در فرآیندهای انعقاد الکتریکی، زمان الکترولیز می باشد. همان گونه که در فصل قبل نشان داده شد آنتی بیوتیک

آموکسی سیلین به طور موثری در زمان تماس حدود ۳۰ دقیقه حذف می شود.

لازم به ذکر است که اگر چه با افزایش زمان ماند، کارایی حذف نیز افزایش می یابد، اما به دلیل مصرف انرژی بیشتر و حجم راکتور بزرگتر، افزایش زمان تماس فراتر از محدوده های بهینه مطلوب نمی باشد. با این حال راندمان معدنی سازی مطلوبی در ۳۰ دقیقه بدست می آید. بر اساس نتایج بدست آمده، بیشترین ارتباط بین زمان تماس و شدت جریان وجود داشته و این رابطه معنی دار بود ( $P<0/001$ ). همچنین با توجه به نمودار ۳ (c)، بین زمان تماس و غلظت اولیه ی آموکسی سیلین ارتباط وجود دارد ولی این ارتباط معنی دار نمی باشد ( $P>0/05$ ). در مطالعه ی Abdel-Gawad و همکاران جهت حذف حشره کش های مالاتیون، ایمیداکلوپرید و کلروپیرفوس با استفاده از الکتروآهن مشخص گردید که مدت زمان بهینه جهت حذف این حشره کش ها ۱۰ دقیقه می باشد (۳۵). یکی دیگر از پارامترهای مهم در این فرآیندها، شدت جریان می باشد. شدت جریان تأثیر مهمی روی کارایی حذف آلاینده های مانند آنتی بیوتیک داشته و فاکتور مهمی در کنترل سرعت واکنش الکتروشیمیایی می باشد (۳۷). همان گونه که در شکل ۳ (f) نشان داده شد در سطح ثابت و مرکزی زمان تماس برابر ۳۰ دقیقه و  $pH=7/5$ ، تغییر در میانگین حذف آموکسی سیلین به سطح CD و غلظت اولیه ی آموکسی سیلین بستگی دارد. بعلاوه اینکه، برای سطوح پائین دانسیته ی جریان، این افزایش شیب تندی دارد و برعکس. این یافته ها با نتایج بدست آمده از سایر مطالعات همخوانی دارد (۳۵ و ۳۴).

در شدت جریان های بالاتر از محدوده ی بهینه، کارایی حذف آموکسی سیلین تقریباً ثابت می ماند. طبق قانون فارادی با افزایش شدت جریان، شتاب بیشتر مواد بر سطح الکتروآهن و تولید بیشتر عوامل اکسیدان رخ می دهد که منجر به کارایی بیشتر حذف آنتی بیوتیک می گردد (۳۸). از این



رو شدت جریان حدود  $2/3 \text{ mA/cm}^2$  به عنوان مقدار بهینه برای آزمایشات بعدی در نظر گرفته شد. لازم به ذکر است که در شدت جریان‌های بالاتر از شرایط بهینه، سطح الکتروکاتود تخریب شده و عوامل اکسیدان کافی جهت تجزیه وجود نخواهد داشت، لذا آلاینده‌ها حذف نخواهند شد که با نتایج مطالعه رحمانی و همکاران همخوانی دارد. بر اساس نتایج سایر مطالعات افزایش شدت جریان می‌تواند باعث تخریب رادیکال‌های  $\text{OH}^*$  شود (۳۹). در مطالعه‌ای که توسط Ridruejo و همکاران جهت حذف ماده‌ی بیهوش کننده تتراکائین انجام گرفت از فرآیند اکسیداسیون الکتروشیمیایی با الکترودهای الماس داپت شده با بور (BDD)، پلاتین و آند  $\text{IrO}_2$  استفاده شد. شدت جریان استفاده در این مطالعه برابر  $33/3 \text{ mA/cm}^2$  بود. و هزینه‌ی الکترودهای استفاده شده بیشتر از هزینه‌ی مورد نیاز برای این مطالعه می‌باشد. ضمن اینکه برای دستیابی به ۵۰ درصد حذف TOC به ۳۶۰ دقیقه زمان تماس نیاز می‌باشد که در مقایسه، کارایی مطالعه‌ی حاضر بسیار بیشتر می‌باشد (۴۰). غلظت اولیه‌ی آلاینده پارامتر دیگری است که می‌تواند بر کارایی فرآیند تأثیرگذار باشد. همانگونه که در شکل ۳ مشاهده می‌شود، مقدار غلظت آلاینده رابطه‌ی معکوس با کارایی فرآیند دارد. هر چند که در محدوده‌ی غلظت‌های مطالعه شده، این تأثیر معنی‌دار نمی‌باشد. همچنین با توجه به نمودارهای نشان داده شده، هر چند که هر یک از متغیرهای مورد بررسی یک پارامتر مؤثر در حذف الکتروشیمیایی آموکسی سیلین هستند، افزایش زمان واکنش در غلظت‌های پایین منجر به راندمان‌های بیشتر می‌شود. به عبارت دیگر، وقتی که غلظت آموکسی سیلین بیشتری وجود دارد، مدت زمان واکنش طولانی‌تری تحت شرایط دانسته‌ی جریان بهینه برای همان بازده حذف نیاز است. نتایج نشان می‌دهد که سرعت و کارایی فرآیند رابطه مستقیمی با غلظت اولیه‌ی آنتی‌بیوتیک دارند. اما همانطور که دیده می‌شود، با افزایش غلظت آنتی‌بیوتیک به مقدار بیش از مقدار بهینه‌ی غلظت

اولیه، کارایی حذف کاهش یافته و به زمان الکترولیز طولانی‌تری نیاز است که از لحاظ اقتصادی مطلوب نیست. استفاده از غلظت و شدت جریان الکتریکی بهینه در زمان الکترولیز بهینه بدست آمده برای حذف این آنتی‌بیوتیک می‌تواند تأثیر قابل توجهی داشته باشد. علاوه بر این، نتایج داده‌های آزمایشگاهی نشان داد، که در شدت جریان‌های بیشتر از مقادیر بهینه، به دلیل مصرف بیشتر الکتروکاتود که نقش مهمی در این نوع فرآیندها دارد، در زمان‌های کوتاه باید الکتروکاتود تعویض گردد. نتایج با مطالعات سمرقندی، رحمانی، عسگری، و محوی همخوانی دارد.

مقایسه کارایی آند آهن و آلومینیوم:

همان‌طوری که در شکل ۵ نیز نشان داده شده است عملکرد الکتروکاتود آهن برای حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی سیلین بهتر از الکتروکاتود آلومینیوم می‌باشد و کیک لجنی با تراکم مناسب ایجاد می‌نماید که می‌تواند با یک لجن روب مناسب از سطح راکتور جدا گردد. بیشترین راندمان حذف آنتی-بیوتیک با استفاده از الکتروکاتود آهن و آلومینیوم به ترتیب در مدت زمان بهینه ۳۰ دقیقه و به ترتیب به میزان ۹۰ و ۸۴ درصد بدست آمد. هنگام استفاده از الکتروکاتود آلومینیوم برای حذف کامل آنتی‌بیوتیک به مدت زمان طولانی‌تری نیاز است، همچنین لجنی با حجم بالا با خصوصیات شناورسازی پایین تولید می‌گردد.

مقایسه کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی مجزا و انعقاد الکتریکی یکجا:

بررسی کارایی فرآیند انعقاد الکتریکی مجزا و انعقاد الکتریکی یکجا طبق شکل ۵ برای تصفیه نهایی پساب تصفیه خانه فاضلاب بیمارستان علیمرادیان نشان داد که کارایی انعقاد الکتریکی یکجا برای حذف COD و آنتی-بیوتیک آموکسی سیلین بالاتر از فرآیند انعقاد الکتریکی مجزا است. طی فرآیند انعقاد الکتریکی با استفاده از الکتروکاتود آهن فلوک‌های سبک تشکیل می‌گردد. که بر روی سطح مایع شناور می‌شود، هرچند طی فرآیند انعقاد

الکتروشیمیایی میکرو حباب های گاز هیدروژن بر روی سطح کاتد تشکیل می گردد، که مسئول شناور شدن ذرات می باشد. اما وجود میکرو حباب های بیشتر می تواند، تغلیظ لجن در سطح مایع را افزایش داده، و لجنی متراکم را تشکیل دهد به نحوی که به راحتی از سطح مایع جدا گردد. در این مطالعه یک واحد شناور سازی الکتریکی در پایین راکتور جانمایی گردید. لذا با تولید میکرو حباب های گاز هیدرون و اکسیژن به ترتیب بر روی سطح کاتد و آند شناور سازی ذرات و فلوک های را تسریع کرده، لذا علاوه بر افزایش کارایی سیستم باعث ایجاد دو مزیت نسبت به واحدهای سنتی انعقاد الکتریکی می گردد: ۱. شناوری ذرات و تغلیظ سریع لجن بر روی سطح راکتور و امکان جداسازی آن از سطح راکتور با طراحی مناسب (امکان تلفیق واحد عملیاتی و فرآیندی در یک راکتور)، ۲. کاهش زمان ماند فاضلاب در راکتور و کاهش هزینه های مرتبط با آن. در طراحی راکتورهای انعقاد الکتریکی به صورت سنتی محفظه واکنش الکتروشیمیایی و محفظه جداسازی لجن جدا از هم بوده، و انتقال محصول واکنش انعقاد الکتروشیمیایی به محفظه ته نشینی/شناوری سازی باعث شکستن فلوک ها شده و راندمان افت پیدا می کند.

بررسی حذف COD و TOC :

در یک راکتور (انعقاد الکتریکی یکجا) در حذف COD (شکل ۶ الف) و TOC (شکل ۶ ب) از فاضلاب سنتتیک و پساب تصفیه خانه فاضلاب بیمارستان علیمردیان نهانند در شرایط بهینه، نشان می دهد که حذف COD و TOC در فاضلاب سنتتیک بیشتر از پساب واقعی می باشد. دلیل این امر احتمالاً به خاطر وجود برخی از ترکیبات مقاوم در پساب بیمارستان علیمردیان نهانند می باشد، به طوری که در مدت زمان بهینه ۳۰ دقیقه (برای حذف آنتی بیوتیک) مقدار حذف COD و TOC در فاضلاب سنتتیک به ترتیب برابر با ۶۵/۵ و ۴۴/۵ درصد و در پساب واقعی ترتیب برابر با ۴۷/۷ و ۳۸ درصد می باشد. بررسی ها نشان می دهد زمان بهینه برای

حذف COD و TOC بیشتر از حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین می باشد به طوری که علی رغم اینکه زمان بهینه برای حذف آنتی بیوتیک ۳۰ دقیقه می باشد. نقطه بهینه برای حذف COD و TOC در زمان ماند ۴۰ دقیقه برای پساب واقعی به ترتیب برابر با ۶۲ و ۴۸ درصد بدست آمد.

بررسی تغییرات EC، TDS و pH:

با توجه به تغییرات کم کل جامدات محلول و هدایت الکتریکی پساب واقعی، لذا امکان بررسی تأثیر تغییرات این پارامترها بر کارایی روش وجود نداشت ولی به طور کلی و بر اساس نتایج مربوط به فاضلاب سنتتیک، هر چه غلظت TDS کمتر باشد مقاومت سل افزایش پیدا کرده و بر مصرف انرژی تأثیر گذار می باشد. طی فرآیند انعقاد الکتریکی واکنش آندی عمدتاً مربوط به خوردگی و روین شدن آند است، که طی واکنش های زنجیره وار پلیمرهای فلزی را برای انعقاد ذرات و لخته ها تولید می نماید و به طور جزئی گاز اکسیژن در سطح آند تولید می شود (۳۶ و ۲۵). در طرف مقابل و در سطح کاتد عمده محصول واکنش احیاء آب و تولید رادیکال هیدروکسیل در پساب می باشد. لذا pH محلول حاصل از الکترولیز افزایش می یابد. اما به دلیل تولید توام یون هیدروژن مقداری از افزایش بیش از حد pH محلول ممانعت به عمل می آید اما به دلیل خروج یون های هیدروژن از محیط به صورت گاز  $H_2$  محیط کمی قلیایی می گردد (۳۵).

به طور خلاصه، با توجه به نتایج بدست آمده، این روش به عنوان یک فناوری پاک و دوست دار محیط زیست می تواند به عنوان یک روش امیدوار کننده برای تصفیه فاضلاب های صنایع داروسازی و بیمارستانی باشد که البته نیاز به انجام مطالعات اقتصادی و کاربرد در مقیاس پایلوت جهت دستیابی به اطلاعات فنی در مقیاس واقعی می باشد. به عنوان یک گزینه دیگر، این روش می تواند به عنوان یک روش پیش تصفیه قبل از فرآیندهای معمول موجود در تصفیه خانه های مربوطه مورد استفاده قرار گیرد.

## نتیجه گیری

واقعی به ترتیب برابر با ۶۲ و ۴۸ درصد بدست آمد. یکی از معایب روش انعقاد الکتریکی متداول، شکستن لخته‌های تشکیل شده حین انعقاد می‌باشد که هنگام انتقال به واحد ته‌نشینی/شناورسازی اتفاق می‌گردد. بنابراین در این مطالعه نشان داده شد که با تلفیق واحد عملیاتی و فرآیندی در یک راکتور عمل جداسازی لجن در همان سلول الکتروشیمیایی انجام گرفته، و علاوه بر حذف واحد ته‌نشینی و شناورسازی کیفیت پساب تصفیه شده بهتر می‌شود. بر اساس یافته‌های این مطالعه می‌توان بیان نمود که فرآیند استفاده شده در این مطالعه می‌تواند به طور موثر در حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین از پساب سنتتیک و پساب واقعی به کار گرفته شود.

## تشکر و قدردانی

این مقاله برگرفته از پایان نامه مقطع کارشناسی ارشد گرایش بهره‌برداری و نگهداری از تأسیسات بهداشتی شهری می‌باشد و نویسندگان مقاله از معاونت تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی همدان بخاطر حمایت مالی این پایان‌نامه قدردانی می‌نمایند (شماره پایان نامه: ۹۹۰۹۱۱۶۲۱۸). (شناسه اختصاصی کمیته اخلاق: IR.UMSHA.REC.1399.693)

روش‌های الکتروشیمیایی به دلیل انطباق و سازگاری با محیط‌زیست اخیراً مورد توجه ویژه‌ای قرار گرفته‌اند. در مقایسه با روش‌های تصفیه متداول، مزایای آن بیشتر آشکار می‌شود. از آن جمله می‌توان به تجهیزات ساده، بهره‌برداری آسان، زمان تصفیه کوتاه‌تر، مصرف انرژی الکتریکی بهینه، عدم نیاز به الکترولیت، کاهش استفاده از مواد شیمیایی افزودنی، تولید لجن کمتر و سرعت بالای رسوب و یا شناور شدن لخته‌های منعقد شده اشاره کرد. لذا هدف از این پژوهش، تعیین کارایی فرآیند الکتروکواگولاسیون در حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین و کاهش غلظت COD ناشی از آن از محلول‌های آبی و فاضلاب واقعی بیمارستانی (بیمارستان علیمردیان نهاوند) بود. در این مطالعه، مشخص شد روش انعقاد الکتریکی بازده بالای ۹۰٪ برای حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین، در مدت زمان ۳۰ دقیقه را دارد که با توجه به تکنولوژی ساده و بهره‌برداری آسان آن، امکان استفاده از این تکنولوژی در حجم بیشتر بخوبی قابل تعمیم است. هرچند زمان بهینه برای کاهش COD و TOC بیشتر از زمان مورد نیاز برای حذف آنتی‌بیوتیک می‌باشد کارایی روش در کاهش COD و TOC در زمان ماند ۴۰ دقیقه برای پساب

## منابع

1. Githinji LJ, Musey MK, Ankumah RO. Evaluation of the fate of ciprofloxacin and amoxicillin in domestic wastewater. *Water Air Soil Pollut.* 2011;219(1):191-201
2. Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices—a review. *J Environ Manage.* 2011;1;92(10):2304-47.
3. Dimitrakopoulou D, Rethemiotaki I, Frontistis Z, Xekoukoulotakis NP, Venieri D, Mantzavinos D. Degradation, mineralization and antibiotic inactivation of amoxicillin by UV-A/TiO<sub>2</sub> photocatalysis. *J Environ Manage.* 2012;98:168-74.
4. Tsakona M, Anagnostopoulou E, Gidaracos E. Hospital waste management and toxicity evaluation: a case study. *J Waste Manag.* 2007;27(7):912-20.
5. Ghafouri Safa S, Mirzaali A, Ghorbanpour R, Kamali H, Gholizadeh A. Performance evaluation of wastewater treatment facilities in selected hospitals of North Khorasan in 2012-2013. *Journal of North Khorasan University of Medical Sciences.* 2014;6(2):371-9.

6. Zuccato E, Castiglioni S, Bagnati R, Melis M, Fanelli R. Source, occurrence and fate of antibiotics in the Italian aquatic environment. *J Hazard Mater.* 2010;179(1-3):1042-8.
7. Ferrari B, Mons R, Vollat B, Frayssé B, Paxéus N, Giudice RL, et al. Environmental risk assessment of six human pharmaceuticals: are the current environmental risk assessment procedures sufficient for the protection of the aquatic environment?. *Environ Toxicol Chem* 2004;23(5):1344-54.
8. Norabadi E, Panahi AH, Ghanbari R, Meshkinian A, Kamani H, Ashrafi SD. Optimizing the parameters of amoxicillin removal in a photocatalysis/ozonation process using Box-Behnken response surface methodology. *Desalin. Water Treat.* 2020;192(192):234-40.
9. Carabineiro SA, Thavorn-Amornsri T, Pereira MF, Figueiredo JL. Adsorption of ciprofloxacin on surface-modified carbon materials. *Water Res.* 2011;45(15):4583-91.
10. Lin AY, Lin CF, Chiou JM, Hong PA. O<sub>3</sub> and O<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> treatment of sulfonamide and macrolide antibiotics in wastewater. *J Hazard Mater.* 2009;171(1-3):452-8.
11. 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. *J Hazard Mater.* 2010;177(1-3):1025-30.
12. Kim TH, Kim SD, Kim HY, Lim SJ, Lee M, Yu S. Degradation and toxicity assessment of sulfamethoxazole and chlortetracycline using electron beam, ozone and UV. *J Hazard Mater.* 2012;227:237-42.
13. Koyuncu I, Arikian OA, Wiesner MR, Rice C. Removal of hormones and antibiotics by nanofiltration membranes. *J Membr Sci.* 2008;309(1-2):94-101.
14. Choi KJ, Kim SG, Kim SH. Removal of antibiotics by coagulation and granular activated carbon filtration. *J Hazard Mater.* 2008;151(1):38-43.
15. Tiwari B, Sellamuthu B, Ouarda Y, Drogui P, Tyagi RD, Buelna G. Review on fate and mechanism of removal of pharmaceutical pollutants from wastewater using biological approach. *Bioresour Technol.* 2017;224:1-2
16. Bitton G. *Wastewater microbiology.* 3rd ed. John Wiley & Sons; 2005: 125-236.
17. Pell M, Wörmann A. *Biological wastewater treatment systems. Ecosystem Ecology.* 1st ed. The Netherlands: Elsevier, 2008; 26 – 441.
18. Rind FM, Laghari MG, Memon AH, Khuhawar MY, Maheshwari ML. Spectrophotometric determination of ceftriaxone using 4-dimethylaminobenzaldehyde. *Pak J Anal Environ.* 2008;9(1):7.
19. Shen S, Ren J, Chen J, Lu X, Deng C, Jiang X. Development of magnetic multiwalled carbon nanotubes combined with near-infrared radiation-assisted desorption for the determination of tissue distribution of doxorubicin liposome injects in rats. *J Chromatogr A.* 2011;1218(29):4619-26.
20. Gupta V, Gupta B, Rastogi A, Agarwal S, Nayak A. A comparative investigation on adsorption performances of mesoporous activated carbon prepared from waste rubber tire and activated carbon for a hazardous azo dye—Acid Blue 113. *J Hazard Mater.* 2011;186(1):891-901.
21. Wang H, Zheng X-W, Su J-Q, Tian Y, Xiong X-J, Zheng T-L. Biological decolorization of the reactive dyes Reactive Black 5 by a novel isolated bacterial strain *Enterobacter* sp. EC3. *J Hazard. Mater.* 2009;171(1-3):654-9.
22. Adhoum N, Monser L, Bellakhal N, Belgaied J-E. Treatment of electroplating wastewater containing Cu<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup> and Cr (VI) by electrocoagulation. *J. Hazard. Mater.* 2004;112(3):207-13.

23. Feng J-w, Sun Y-b, Zheng Z, Zhang J-b, Li S, Tian Y-c. Treatment of tannery wastewater by electrocoagulation. *J Environ Sci.* 2007;19(12):1409-15.
24. Hanafi F, Assobhei O, Mountadar M. Detoxification and discoloration of Moroccan olive mill wastewater by electrocoagulation. *J Hazard Mater.* 2010;174(1-3):807-12.
25. Merzouk B, Gourich B, Sekki A, Madani K, Vial C, Barkaoui M. Studies on the decolorization of textile dye wastewater by continuous electrocoagulation process. *J Chem Eng.* 2009;149(1-3):207-14.
26. Ilhan F, Kurt U, Apaydin O, Gonullu MT. Treatment of leachate by electrocoagulation using aluminum and iron electrodes. *J Hazard Mater.* 2008;154(1-3):381-9.
27. Gomes JA, Daida P, Kesmez M, Weir M, Moreno H, Parga JR, et al. Arsenic removal by electrocoagulation using combined Al-Fe electrode system and characterization of products. *J Hazard Mater.* 2007;139(2):220-31.
28. Murugananthan M, Raju GB, Prabhakar S. Removal of sulfide, sulfate and sulfite ions by electro coagulation. *J Hazard Mater.* 2004;109(1-3):37-44.
29. Yao X, Deng S, Wu R, Hong S, Wang B, Huang J, et al. Highly efficient removal of hexavalent chromium from electroplating wastewater using aminated wheat straw. *RSC advances.* 2016;6(11):8797-805.
30. Lenth RV. Response-surface methods in R, using rsm. *J Stat Softw.* 2009;32(7):1-17.
31. Bahobail A, Gad El-Rab SMF, Amin GA. American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation. Standard methods for the examination of water and wastewater. 21 st ed. Washington, DC, USA, 2005.
32. Babu BR MK, Venkatesan P. Removal of pesticides from wastewater by electrochemical methods—A comparative approach. *Sustain. Environ. Res.* 2011;12(16):3-12.
33. Su-Myeong Hong CM, Hye-young Kwon, Taek-kyum Kima, and Doo-ho Kim. Aqueous Degradation of Imidacloprid and Fenothiocarb using Contact Glow Discharge Electrolysis: Degradation Behavior and Kinetics. *Food Sci Biotechnol.* 2013;22:1773-8.
34. Garrett P. Electrochemical degradation of some pesticides in agricultural wastewater by using modified electrode. *Int J Agric Res.* 2013;61:1-5.
35. Abdel-Gawad SA BA, Omran KA, Mokhtar MM. Removal of some pesticides from the simulated waste water by electrocoagulation method using iron electrodes. *Int J Electrochem Sci.* 2012;7:6654-65.
36. Abdel-Gawad SA, Omran KA, Mokhtar MM, Baraka AM. Electrochemical degradation of some pesticides in agricultural wastewater by using modified electrode. *J Am Sci.* 2011;7(7):44-50.
37. Rahmani AR, Goodini K, Nematollahi D, Azarian G. Electrochemical oxidation of activated sludge by using direct and indirect anodic oxidation. *Desalin Water Treat.* 2015;56:2234-45.
38. Godini K, Azarian Gh, Rahmani AR, Zolghadrnasab H. Treatment of waste sludge: a comparison between anodic oxidation and electro-Fenton processes. *J Res Health Sci.* 2013;13:188-93.
39. Turabik M, Gözmen B, Oturan MA. Efficient removal of insecticide imidacloprid from water by electrochemical advanced oxidation processes. *Environ Sci Pollut Res.* 2014;21:8387-97.
40. Ridruejo C, Salazar C, Cabot PL, Centellas F, Brillas E, Sirés I. Electrochemical oxidation of anesthetic tetracaine in aqueous medium. Influence of the anode and matrix composition. *J Chem. Eng.* 2017;326:811-9