بهینه سازی فرایند فنتون جهت حذف کل کربن آلی از محیط آبی حاوی آنتی بیوتیک آموکسی سیلین با استفاده از روش آماری تاگوچی

شاهین بهزادی[۱]، منصوره دهقانی[۲]، محمد صادق سخاوتجو[۳]، حسن هاشمی[۴]

مقاله پژوهشی

چکیده

مقدمه: امروزه آموکسی‌سیلین یکی از پر مصرف‌ترین آنتی‌بیوتیک‌ها در سراسر دنیا می‌باشد که انتشار آن به محیط زیست اثرات بهداشتی و زیست محیطی متعددی در پی دارد. هدف از این تحقیق بهینه‌سازی فرایند فنتون جهت افزایش میزان معدنی‌سازی آموکسی سیلین موجود در محیط آبی می‌باشد.

روش‌ها: در این مطالعه جهت بررسی تاثیر عوامل و تعیین شرایط بهینه حذف TOC از محلول آبی حاوی آموکسی‌سیلین توسط فرایند فنتون ۵ پارامتر TOC ورودی، غلظت اولیه پراکسید هیدروژن، آهن دوظرفیتی، PH و زمان واکنش هر کدام در ۴ سطح مختلف مورد بررسی قرار گرفتند. آزمایشات هرکدام ۲ بار تکرار شدند و در نهایت شرایط بهینه و درصد تاثیر هر عامل توسط روش آماری تاگوچی به دست آمد.

یافته‌ها: بازده حذف TOC از محیط آبی با غلظت کل کربن آلی ورودی ۶، ۴۰، ۸۷ و ۱۹۳ mg/L به ترتیب برابر ۳۷/۱۶۵، ۳۸/۲۸۵، ۳۵/۱۶ و ۱۷/۲۴٪ بود. بهینه‌سازی با روش تاگوچی نشان داد که عوامل مورد نظر در حذف TOC توسط فرایند فنتون، TOC ورودی ۴۰ mg/L، H2O2 اولیه ۵۰۰ mg/L، Fe2+ اولیه ۵۰ mg/L، PH برابر۳/۵ و زمان واکنش ۱۰ دقیقه با میزان اهمیت به ترتیب ۲/۳۵۷، ۷۳/۵۸، ۱۱/۸۳۷، ۴/۱۳۷و ۸/۰۸۹ ٪ بوده‌اند.

نتیجه‌گیری: در این مطالعه حداکثر راندمان حذف آموکسی‌سیلین و TOC به ترتیب برابر با ۹۹/۶۶ و ۳۸/۲۸۵٪ به دست آمد. نتایج نشان می‌دهد که بر خلاف تجزیه کامل آموکسی سیلین، حذف کامل TOC رخ نداد که این امر می‌تواند به دلیل تولید محصولات جانبی مقاوم به معدنی‌سازی در طی فرایند فنتون باشد. به علاوه از این فرایند می‌توان به عنوان یک واحد پیش تصفیه جهت افزایش میزان معدنی سازی فاضلاب حاوی آموکسی سیلین استفاده نمود.

واژه‌های کلیدی: آموکسی سیلین، فرایند فنتون، معدنی‌سازی، تاگوچی

ارجاع: بهزادی شاهین، دهقانی منصوره، سخاوتجو محمدصادق، هاشمی حسن. **بهینه سازی فرایند فنتون جهت حذف کل کربن آلی از محیط آبی حاوی آنتی بیوتیک آموکسی سیلین با استفاده از روش آماری تاگوچی.** مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۳۹۲؛ ۹(۱۱): ۱۱۸۶-۱۲۰۰

تاریخ دریافت: ۱۳۹۱/۱۱/۲۴ **تاریخ پذیرش: ۱۳۹۲/۰۹/۲۵**

۱. کارشناس، گروه مهندسی محیط زیست-آب و فاضلاب، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات خوزستان، خوزستان، ایران

۲. دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شیراز، فارس، ایران (نویسنده مسؤول)

Email: mdehghany@sums.ac.ir

۳. استادیار، گروه مهندسی محیط زیست-آب و فاضلاب، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات خوزستان، خوزستان، ایران

۴. مربی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهرکرد، شهرکرد، ایران

مقدمه

آموکسی سیلین جز آنتی‌بیوتیک‌های بتالاکتام و از دسته پنی‌سیلین‌های وسیع الطیف می‌باشد که در پزشکی و دامپزشکی استفاده می‌شود و در حال حاضر یکی از پر کاربردترین آنتی‌بیوتیک‌ها در سراسر دنیا است، در نتیجه امکان آلودگی محیط زیست توسط این داروها افزایش یافته است (۱). پس از مصرف این دارو مقدار ناچیزی از آن جذب بدن شد(۲) و بقیه آن از طریق ادرار و مدفوع به محیط زیست تخلیه و باعث آلودگی آن می‌شود (۳). آنتی‌بیوتیک‌ها پایدار و چربی دوست بوده و به دلیل ورود مداوم، می‌توانند برای مدت زمان طولانی در محیط زیست باقی بمانند که حضور آن‌ها در هر دو غلظت کم و زیاد، خطرناک می‌باشد. این ترکیبات نسبت به تجزیه بیولوژیکی بسیار مقاوم می‌باشند (۴). اهمیت عمده آن‌ها به دلیل ایجاد مقاومت باکتریایی بوده و لذا بدین ترتیب تهدیدی برای سلامت بشر به حساب می‌آیند (۵).

روش تاگوچی نخستین بار توسط جنچی تاگوچی ارایه شد که شامل روش طراحی آزمایش‌ها برای تعیین میزان تاثیر عوامل بر پاسخ و به دست آوردن شرایط بهینه سیستم می‌باشد (۶).

اساس کار فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته، بر پایه تولید رادیکال هیدروکسیل (OH°) می‌باشد، که این رادیکال به شدت واکنش‌پذیر بوده و خاصیت انتخابی کمتری نسبت به سایر اکسیدان‌ها دارند. پتانسیل اکسیداسیون استاندارد رادیکال هیدروکسیل(E°=۲/۸ V) بوده که بسیار بیشتر از اکسیدان‌های متداول می‌باشد، به علاوه آن‌ها به طور کاملا موثر و به صورت وسیعی در اکسیداسیون انواع ترکیبات آلی و مقاوم به تجزیه بیولوژیکی استفاده می‌شوند (۷). فرایند فنتون به دلیل کارایی بالا، سادگی تکنولوژی و تجهیزات مورد استفاده، هزینه بسیار کم و سمیت ناچیز واکنش‌گرها کارایی بیشتری نسبت به سایر روش‌های اکسیداسیون پیشرفته دارد (۸). این فرایند بر پایه تولید رادیکال هیدروکسیل از تجزیه اکسیدان پراکسید هیدروژن توسط کاتالیست آهن (II) در شرایط اسیدی استوار است (۹).

رادیکال هیدروکسیل از طریق مکانیسم شماره ۱ باعث تجزیه و تخریب آلاینده‌ها به محصولات جانبی با خطر کمتر می‌شود (۱۰):

$$OH^{\circ} + \text{Organic Matter} \rightarrow H_2O + \text{Analysis Products} \rightarrow CO_2 + H_2O \quad (1)$$

جانگ و همکاران مطالعه‌ای تحت عنوان حذف آموکسی سیلین توسط فرایندهای UV و UV/ H_2O_2 انجام دادند. اگرچه معدنی‌سازی کمی در هر دو فرایند بدست آمد ولی مشخص شد با اضافه نمودن ۱۰ میلی مول پراکسید هیدروژن به واکنش UV/ H_2O_2 و گذشت ۸۰ دقیقه از واکنش، میزان حذف TOC به ۵۰٪ افزایش می‌یابد (۱۱). آی و کارگی دریافتند که تحت شرایط بهینه فرایند فنتون بعد از ۲ دقیقه تجزیه کامل آموکسی سیلین اتفاق می‌افتد اما بعد از ۱۵ دقیقه تنها ۳۷٪ از TOC قابل دستیابی است (۱۲). جیرالدو و همکاران در پژوهشی که بر روی حذف آنتی بیوتیک اوکسولینیک اسید توسط روش تجزیه فتوکاتالیستی با TiO_2 انجام دادند دریافتند که تحت شرایط بهینه بعد از ۳۰ دقیقه نزدیک به ۵۵٪ DOC و COD اولیه در محلول باقی می‌ماند و حذف نمی‌شود (۱۳). فان و همکاران تجزیه سولفالازین را توسط فرایند شبه فنتون بررسی نمودند. آن‌ها پی بردند که تحت شرایط بهینه و بعد از ۶۰ دقیقه درصد حذف آنتی‌بیوتیک، COD و TOC به ترتیب برابر ۹۹/۵، ۸۴/۲ و ۴۱٪ است (۱۴).

هدف از این تحقیق بهینه‌سازی پارامترهای موثر بر فرایند فنتون جهت حذف موثر TOC از محیط آبی حاوی آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین توسط روش آماری تاگوچی می‌باشد. در این مطالعه با بررسی‌های صورت گرفته مشخص شد که روش طراحی آزمایشات تاگوچی، برای نخستین بار جهت بهینه‌سازی فرایند فنتون برای حذف TOC استفاده شده است.

روش‌ها

مواد شیمیایی

آموکسی سیلین‌تری هیدرات خالص از شرکت آنتی بیوتیک سازی ایران واقع در کیلومتر ۵ جاده خزر آباد ساری خریداری شد. محلول اکسیدان پراکسید هیدروژن (30% W/W) و کاتالیست سولفات فروس ($FeSO_4.7H_2O$) (Merck, Germany) در فرایند فنتون استفاده شدند. جهت تنظیم PH از اسید سولفوریک (۱نرمال) و هیدروکسیدسدیم مرک استفاده شد. پتاسیم دی هیدروژن فسفات (KH_2PO_4) و استونیتریل مخصوص HPLC (Merck, Germany) به عنوان فاز سیال دستگاه HPLC استفاده شدند. در تمامی آزمایشات از آب مقطر ۲ بار تقطیر تولید شده توسط دستگاه آب مقطرگیر روتاری با پمپ خلاء استفاده شد.

ساخت محلول‌ها و فاضلاب مصنوعی

محلول مادر آهن (II) در غلظت ۵۰۰۰ppm به صورت هفتگی ساخته شده و جهت جلوگیری از اکسیداسیون در ظروف تیره و در محیط تاریک ذخیره گردید. محلول استوک آموکسی‌سیلین در غلظت ۱۰۰۰ppm نیز به صورت هفتگی تهیه شده و در دمای ۴ درجه سانتیگراد نگهداری شد. همچنین محلول ۱۰۰۰۰ppm از H_2O_2 نیز به صورت هفتگی ساخته شده ودر ظروف تیره و در محیط تاریک نگهداری شد. جهت شبیه‌سازی فاضلاب مصنوعی حاوی آموکسی سیلین، پودر آموکسی سیلین خالص در آب مقطر بسیار خالص حل گردید. برای انجام آزمایشات، از ۴ غلظت TOC ورودی ۶، ۴۰، ۸۷ و ۱۹۳ mg/L استفاده گردیدکه برای ساخت فاضلاب مصنوعی متناظر با این غلظت‌ها، به ترتیب از ۴ غلظت ۱۰، ۱۰۰، ۲۰۰ و ۵۰۰ mg/L آموکسی سیلین استفاده شد.

جدول ۱: TOC متناظر با غلظت های آموکسی سیلین جهت انجام آزمایشات

TOC متناظر با هر غلظت (mg/L)	غلظت آموکسی سیلین جهت ساخت فاضلاب مصنوعی(mg/L)
۶	۱۰
۴۰	۱۰۰
۸۷	۲۰۰
۱۹۳	۵۰۰

طراحی آزمایشات

در این مطالعه از بین روش‌های مختلف طراحی آزمایش‌ها روش تاگوچی انتخاب گردید. برای بررسی تاثیر عوامل و تعیین شرایط بهینه حذف TOC از محلول آبی حاوی آموکسی سیلین ۵ عامل غلظت اولیه TOC، غلظت اولیه پراکسید هیدروژن، غلظت اولیه آهن(II)، PH و زمان هر کدام در ۴ سطح مختلف مورد بررسی قرار گرفتند که جدول۲ مقادیر هریک را با نماد گذاری در ۴ سطح ۱، ۲، ۳ و ۴ نشان می‌دهد. در نهایت جهت طراحی آزمایش‌ها به روش تاگوچی، با قرار دادن این متغیرها و سطوح آن‌ها در نرم‌افزار Qualitek-4 (w32b) آزمایشات طراحی شدند. فاکتورها و سطوح مورد نظر با توجه به محدوده عملیاتی متداول که در منابع مختلف ذکر گردیده انتخاب شدند(۱۲،۱۶)

جدول ۲: فاکتورها و سطوح در نظر گرفته شده در طراحی آزمایش‌ها جهت بهینه‌سازی نرخ تجزیه TOC

سطوح / متغیر	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳	سطح ۴
غلظت Fe^{2+} (mg/L)	۰	۵	۲۵	۵۰
غلظت H_2O_2 (mg/L)	۱۰	۵۰	۲۵۰	۵۰۰
pH	۳	۳/۵	۴	۴/۵
زمان واکنش	۲	۵	۱۰	۱۵
TOC ورودی (mg/L)	۶	۴۰	۸۷	۱۹۳

نرم‌افزار مذکور تحت ویندوز و نسخه ۴/۷۵ بوده (محصول ۱۹۹۱) و تنها قادر به طراحی و آنالیز آزمایش‌های بهینه‌سازی به روش تاگوچی می‌باشد. آزمایش‌های طراحی شده به صورت یک جدول با ۱۶ آزمایش (L_{16}) با شرایط مختلف در جدول ۳ ارایه شده است.

روش کار آزمایشگاهی

آزمایشات به صورت ناپیوسته در بشرهای ۲ لیتری از جنس پیرکس و زیر دستگاه جار تست ۶ خانه‌ای ساخت شرکت هک آمریکا و در آزمایشگاه آب شرکت آب و فاضلاب شیراز انجام شد. تعداد ۱۶ آزمایش طراحی شده هر کدام ۲ بار تکرار شدند. در هر آزمایش بشرها در زیر دستگاه جارتست با با ۱ لیتر از محلول آموکسی سیلین و با غلظت‌های از قبل مشخص شده برای هر آزمایش پر گردید. مقدار TOC متناظر با غلظت‌های آموکسی‌سیلین قبل از شروع تمامی آزمایشات به صورت جداگانه برای هر آزمایش اندازه‌گیری شد. سپس مقدار مورد نیاز و از قبل تعیین شده کاتالیست آهن (II) موجود در $FeSO_4.7H_2O$ به محلول اضافه و پس از تنظیم PH با اسید سولفوریک و سدیم هیدروکسید، نمونه‌ها با همزن‌های مکانیکی دستگاه جارتست و با سرعت ۱۸۵ دور در دقیقه به خوبی مخلوط شدند. سپس غلظت‌های از قبل تعیین شده اکسیدان پر اکسید هیدروژن برای هر آزمایش به محلول اضافه شد. زمانی که پراکسید هیدروژن به محلول اضافه گردید به عنوان زمان شروع واکنش در نظر گرفته شد. بشرها به صورت روباز بوده و آزمایش‌ها در دمای آزمایشگاه انجام شدند. جهت بررسی میزان معدنی‌سازی آموکسی سیلین در طول واکنش، نمونه‌ها در زمان‌های از قبل تعیین شده برای هر آزمایش برداشت شده و پس از عبور از فیلترهای غشایی واتمن با اندازه منافذ ۰/۴۵ میکرون، میزان TOC اندازه‌گیری شد. همچنین جهت اندازه‌گیری غلظت باقیمانده آموکسی سیلین، نمونه‌ها از فیلترهای غشایی واتمن با اندازه روزنه‌های ۰/۲۰ میکرون عبور داده شدند.

جدول ۳: ریز آزمایش های طراحی شده به روش تاگوچی با جزئیات آن

شماره آزمایش	غلظت TOC (mg/L)	غلظت پراکسید هیدروژن (mg/L)	غلظت Fe(II) (mg/L)	pH	زمان (min)
۱	۶	۱۰	۰	۳	۲
۲	۶	۵۰	۵	۳/۵	۵
۳	۶	۲۵۰	۲۵	۴	۱۰
۴	۶	۵۰۰	۵۰	۴/۵	۱۵
۵	۴۰	۱۰	۵	۴	۱۵
۶	۴۰	۵۰	۰	۴/۵	۱۰
۷	۴۰	۲۵۰	۵۰	۳	۵
۸	۴۰	۵۰۰	۲۵	۳/۵	۲
۹	۸۷	۱۰	۲۵	۴/۵	۵
۱۰	۸۷	۵۰	۵۰	۴	۲
۱۱	۸۷	۲۵۰	۰	۳/۵	۱۵
۱۲	۸۷	۵۰۰	۵	۳	۱۰
۱۳	۱۹۳	۱۰	۵۰	۳/۵	۱۰
۱۴	۱۹۳	۵۰	۲۵	۳	۱۵
۱۵	۱۹۳	۲۵۰	۵	۴/۵	۲
۱۶	۱۹۳	۵۰۰	۰	۴	۵

روش‌های اندازه‌گیری

غلظت باقیمانده آموکسی سیلین توسط دستگاه HPLC با دتکتور UV مدل Wellchrom k-2600 (Knauer, Germany)اندازه‌گیری شد. کل کربن آلی محلول (TOC) جهت سنجش میزان معدنی شدن آموکسی سیلین توسط دستگاه TOC Analyzer مدل N/C 3000 (analytic grade) و (Merck, Germany) اندازه‌گیری شد. سنجش TOC طبق استاندارد متد شماره 5310 B انجام شد (۱۵). جهت اندازه‌گیری PH از PH متر مدل 780 PH Meter (Metrohm, Switzerland) استفاده شد.

یافته‌ها

راندمان حذف TOC

در این مطالعه مقدار TOC قبل و بعد از انجام هر آزمایش اندازه‌گیری شد. در جدول ۴ راندمان حذف TOC توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته فنتون و طی ۱۶ آزمایش طراحی شده به روش تاگوچی و با ۲ بار تکرار هر آزمون نشان داده شده است. همان‌گونه که در این جدول نشان داده شده است حداکثر راندمان حذف TOC برای غلظت‌های TOC ورودی ۶، ۴۰، ۸۷ و ۱۹۳ mg/L به ترتیب برابر ۳۷/۱۶۵، ۳۸/۲۸۵، ۳۵/۱۶ و ۱۷/۲۴٪ به دست آمد. با تحلیل نتایج جدول ۴ طبق روش آماری تاگوچی میزان تاثیر هر پارامتر بر درصد حذف TOC و همچنین شرایط بهینه برای فرایند فنتون به دست می‌آید.

تابع پاسخ تبدیل یافته

برای تجزیه و تحلیل دقیق‌تر نتایج توسط روش تاگوچی، از یک تابع تبدیل پاسخ که به صورت نسبت علامت هر اثر (S) به اثرات ناشی از خطا (N) تعریف می‌گردد، استفاده می‌شود (۶). نحوه محاسبه نسبت S/N بسته به نوع هدف بهینه‌سازی، متفاوت است. از آنجا که در این پژوهش، هدف بررسی حذف TOC (بررسی میزان معدنی‌سازی) از محیط آبی حاوی آموکسی سیلین می‌باشد، بنابراین S/N از طریق رابطه ۱ محاسبه می‌شود (۶).

$$\frac{S}{N}=-10\log\frac{(1/Y_1^{\,2}+1/Y_2^{\,2}+\ldots+1/Y_n)^{\,2}}{n} \qquad (۱)$$

در این فرمول Y_n مقدار پاسخ به دست آمده برای هر آزمایش در هر آزمون و n تعداد تکرار آزمایش‌ها (در این مطالعه برابر۲) است.

اگر n برابر ۱ در نظر گرفته شود دیگر از روش سینگال به نویز (S/N) که روش دقیق و مطمئن‌تری است نمی‌توان استفاده نمود و فقط از روش میانگین داده‌ها می توان استفاده کرد. S/N محاسبه شده بر حسب درصد حذف TOC از آزمون‌های اول و دوم برای هر آزمایش به صورت جداگانه در جدول ۴ نشان داده شده است. افزایش S/N در این جدول نشان دهنده بهبود شرایط است.

تاثیر عوامل بر راندمان حذف TOC

در این مطالعه پاسخ هر آزمایش با استفاده از فرمول ۱ به نرخ S/N تبدیل شده است. دراین بخش میزان و نحوه تأثیرعوامل مختلف بر پاسخ تبدیل یافته سیستم (به صورت نسبت S/N) برای هریک ازعوامل تجزیه و تحلیل شده و نسبت S/N به دست آمده برای هر سطح در جدول ۴ ارایه شده است. با توجه به این جدول، بیشترین مقدار S/N شرایط بهینه را در بین سطوح مختلف هر عامل نشان می‌دهد.

تاثیر TOC ورودی

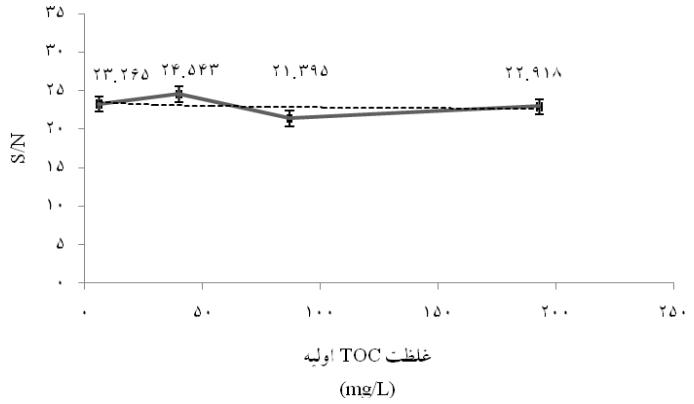
در این بررسی ۴ غلظت ۶، ۴۰، ۸۷ و ۱۹۳ mg/L بعنوان غلظت‌های TOC ورودی در نظر گرفته شدند. در شکل ۱ تاثیر این پارامتر بر میزان معدنی‌سازی آموکسی سیلین نشان داده شده است. در این شکل محور عمودی نشان دهنده نرخ S/N برای هر سطح و محور افقی نشان‌دهنده سطوح در نظر گرفته شده برای مقادیر مختلف TOC است.

از این شکل چنین بر می‌آید که در ابتدا با افزایش غلظت اولیه TOC از ۶ به ۴۰ mg/L نرخ S/N که شاخصی از پاسخ سیستم به تغییرات غلظت TOC است و به تبع آن

بازده حذف TOC توسط فرایند فنتون افزایش می‌یابد. اما در سطوح ۳ (TOC معادل ۸۷ mg/L) و سطح ۴ با غلظت اولیه TOC برابر ۱۹۳ میلی‌گرم بر لیتر نرخ S/N نسبت به سطح ۲ کاهش می‌یابد. همان‌گونه که در این شکل آمده است سطح۱ (نرخ S/N برابر۲۳/۲۶۵)، سطح ۲ (نرخS/N برابر۲۴/۵۴۳)، سطح۳ (نرخ S/N برابر۲۱/۳۹۵)، سطح ۴ (نرخ S/N برابر۲۲/۹۱۸) می‌باشند.

جدول ۴: آزمایش های طراحی شده با روش تاگوچی، درصد حذف TOC ، آموکسی‌سیلین و S/N

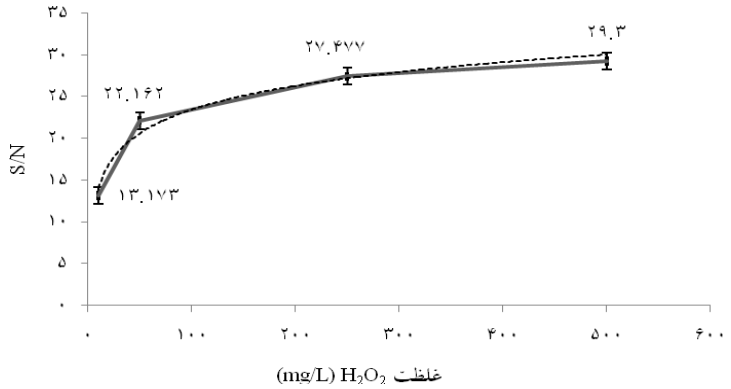
شماره آزمایش	درصد حذف TOC			میانگین درصد حذف آموکسی سیلین	S/N
	آزمون اول	آزمون دوم	میانگین دو آزمون		
۱	۲/۸۱	۲/۸۲	۲/۸	۶۴	۸/۹۷۳
۲	۱۱/۸۲	۱۱/۸۴	۱۱/۸	۶۷/۶	۲۱/۴۵۲
۳	۳۶/۳	۳۶/۳	۳۶/۳	۶۵/۵	۳۱/۱۹۸
۴	۳۷/۱۶۵	۳۷/۱۲	۳۷/۲۱	۶۸/۶۴	۳۱/۴۰۲
۵	۴/۸۵	۴/۳	۵/۴	۹۰/۱۳	۱۳/۵۴۶
۶	۱۱/۶۶	۱۱/۴۲	۱۱/۹	۸۷/۷۵	۲۱/۳۲۸
۷	۳۸/۲۸۵	۳۸/۳۳	۳۸/۲۴	۹۵/۳۸۵	۳۱/۶۶
۸	۳۸/۱۸۷	۳۸/۱۹۵	۳۸/۱۸	۹۵/۷	۳۱/۶۳۸
۹	۲/۷۸۵	۲/۷۲	۲/۸۵	۶۲	۸/۸۸۹
۱۰	۱۱/۳۴	۱۱/۳۸	۱۱/۳	۸۰/۴	۲۱/۰۹۲
۱۱	۱۷/۱۶	۱۷/۱	۱۷/۲۱	۹۸/۵۵	۲۴/۶۸۷
۱۲	۳۵/۱۶	۳۴/۳۲	۳۶	۹۹/۲۲۵	۳۰/۹۱۳
۱۳	۱۱/۶	۱۱/۳۳	۱۱/۸۸	۷۵/۵	۲۱/۲۸۵
۱۴	۱۷/۳۳	۱۷/۴۲	۱۷/۲۴	۹۷/۱	۲۴/۷۷۵
۱۵	۱۳/۱۳	۱۳/۱۵	۱۳/۱۱	۹۹/۶۶	۲۲/۳۶۵
۱۶	۱۴/۵۶	۱۴/۴۷	۱۴/۶	۹۹/۳	۲۳/۲۴۸



شکل ۱: تغییرات نرخ S/N محاسبه شده برای حذف TOC بر حسب TOC ورودی

تاثیر غلظت پراکسید هیدروژن

در این مطالعه از ۴ سطح پراکسید هیدروژن ۱۰، ۵۰، ۲۵۰ و ۵۰۰mg/L جهت بهینه‌سازی این پارامتر برای افزایش میزان معدنی‌سازی آموکسی سیلین استفاده شد. نتایج پاسخ‌های سیستم به تغییرات غلظت پراکسید هیدروژن در سطوح معرفی شده در شکل ۲ نشان داده شده است. همان گونه که از این شکل بر می‌آید نرخ S/N برای سطوح ۱، ۲، ۳ و ۴ به تر تیب برابر ۱۳/۱۷۳، ۲۲/۱۶۲، ۲۷/۴۷۷ و ۲۹/۳ می‌باشد.

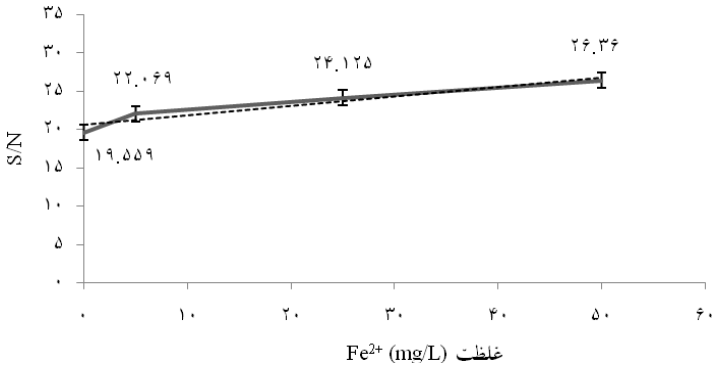


شکل ۲: تغییرات نرخ S/N محاسبه شده برای حذف TOC بر حسب پراکسید هیدروژن

در این مطالعه حداکثر راندمان حذف TOC برای غلظت‌های آموکسی سیلین ۱۰، ۱۰۰، ۲۰۰ و ۵۰۰ mg/L به ترتیب برابر ۳۷/۲۱، ۳۸/۲۴، ۳۶ و ۱۷/۲۴٪ به دست آمد.

تاثیر غلظت Fe^{2+}

در این مطالعه از غلظت‌های، ۵، ۲۵ و ۵۰ mg/L آهن دوظرفیتی به عنوان کاتالیزور در فرایند فنتون استفاده گردید. نتایج تغییرات نرخ S/N برای سطوح مختلف آهن در شکل ۳ نشان داده شده است.

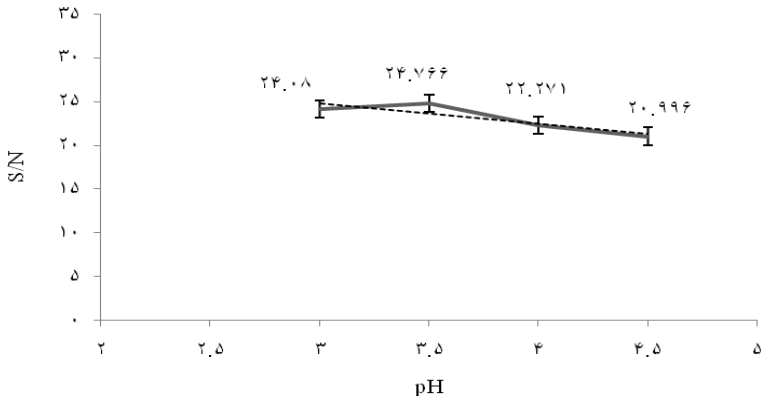


شکل ۳: تغییرات نرخ S/N محاسبه شده برای حذف TOC بر حسب Fe^{2+}

با توجه به این شکل، افزایش غلظت آهن از ۰ به ۵۰mg/L باعث افزایش میزان S/N و همچنین راندمان حذف TOC توسط فرایند فنتون می‌شود. نرخ S/N برای سطوح ۱، ۲، ۳ و ۴ Fe^{2+} به ترتیب برابر ۱۹/۵۹۹، ۲۲/۰۶۹، ۲۴/۱۲۵ و ۲۶/۳۶ می‌باشد.

تاثیر PH

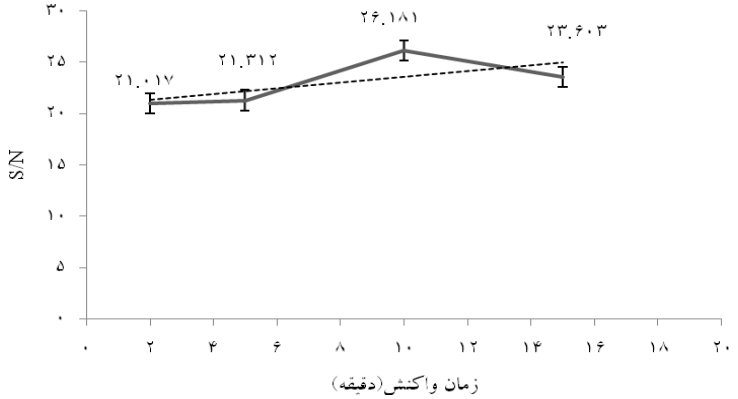
در این پژوهش از PH در ۴ سطح ۳، ۳/۵، ۴ و ۴/۵ استفاده شد. نتایج تغییرات نرخ S/N بر حسب PH در شکل ۴ نشان داده شده است. با توجه به شکل ۴، نرخ S/N برای PHهای ۳، ۳/۵، ۴ و ۴/۵ به ترتیب برابر ۲۴/۰۸، ۲۴/۷۶۶، ۲۲/۲۷۱ و ۲۰/۹۹۶ می‌باشد.



شکل ۴: تغییرات نرخ S/N محاسبه شده برای حذف TOC بر حسب PH

تاثیر زمان واکنش

در این مطالعه ۴ سطح۲، ۵، ۱۰ و ۱۵ دقیقه به عنوان زمان واکنش فرایند فنتون جهت حذف TOC از فاضلاب حاوی آموکسی سیلین در نظر گرفته شد. تاثیر پارامتر زمان واکنش بر راندمان حذف TOC در شکل ۵ نشان داده شده است. با توجه به این شکل، نرخ S/N برای سطوح ۱، ۲، ۳ و۴ زمان، به ترتیب برابر ۲۱/۰۱۷، ۲۱/۳۱۲، ۲۶/۱۸۱ و۲۳/۶۰۳ می‌باشد. از این نتایج چنین استنباط می‌شود که با افزایش زمان تا ۱۰ دقیقه نرخ S/N و متعاقب آن میزان معدنی سازی آموکسی سیلین افزایش می‌یابد



شکل ۵: تغییرات نرخ S/N محاسبه شده برای حذف TOC بر حسب pH

تحلیل واریانس نتایج و تعیین شرایط بهینه نسبی با توجه به میزان حذف TOC

تحلیل واریانس بعد از انجام تحلیل نسبت سیگنال به نویز به منظور برآورد واریانس خطا و اهمیت نسبی هر یک از عوامل انجام می‌شود. داده‌های به دست آمده از درصد حذف TOC توسط جدول ANOVA تجزیه و تحلیل آماری گردیدند. هدف از آنالیز ANOVA به دست آوردن نسبت واریانس هر فاکتور به واریانس کل بود (۶). درجه آزادی محاسبه شده برای هر فاکتور در این مطالعه برابر۳ بوده وکل DOF برابر ۱۵ محاسبه گردید، بنابراین میزان DOF برای خطا صفرمحاسبه و واریانس خطا توسط محاسبه مجموع مربع خطا و تقسیم آن بر درجه آزادی به دست آمد. نسبت F از تقسیم واریانس هر فاکتور به دوره خطا محاسبه می‌گردد. چون دوره خطا در این مطالعه برابر صفر محاسبه شده است، در نتیجه محاسبه F- Ratio غیرممکن است. جدول ۵ نتایج تحلیل واریانس (ANOVA) نتایج را بر حسب درصد حذف TOC نشان می‌دهد. از آنجا که در این تحقیق هر ۵ متغیر در ۴ سطح در نظر گرفته شده‌اند، میزان درجه آزادی برای مقایسه مقادیر پاسخ در ۴ سطح از هر عامل برابر ۳ می‌باشد. ستون آخر سمت چپ که معرف درصد تأثیر هر عامل بر پاسخ می‌باشد، مفهوم ملموس‌تری دارد.

جدول ۵: تاثیر عوامل مداخله کننده در کارایی حذف TOC برحسب درصد

فاکتورها	درجه آزادی (DOF)	واریانس (V)	Pure sum (S')	نسبت F	مجموع مربعات(S)	درصد تاثیر هر فاکتور
TOC ورودی	۳	۶/۷	۲۰/۱۰۲	–	۲۰/۱۰۲	۲/۳۵۷
غلظت H_2O_2	۳	۲۰۹/۳۳۳	۶۲۷/۹۹۹	–	۶۲۷/۹۹۹	۷۳/۵۸
غلظت Fe^{2+}	۳	۳۳/۶۷۵	۱۰۱/۰۲۷	–	۱۰۱/۰۲۷	۱۱/۸۳۷
PH	۳	۱۱/۷۷۱	۳۵/۳۱۵	–	۳۵/۳۱۵	۴/۱۳۷
زمان واکنش	۳	۲۳/۰۱۳	۶۹/۰۳۹	–	۶۹/۰۳۹	۸/۰۸۹
خطاهای دیگر	۰					
مجموع	۱۵				۸۵۳/۴۸۶	۱۰۰

درصد تاثیر عوامل مختلف بر میزان حذف TOC در محدوده سطوح در نظر گرفته شده نشان می‌دهد که همه عوامل دارای اهمیت نسبی برای تاثیر بر حذف TOC می‌باشند. موثرترین عوامل به ترتیب غلظت اولیه H_2O_2، غلظت Fe^{2+}، زمان واکنش ، pH و TOC ورودی می‌باشند. همان گونه که در جدول ۵ آمده است غلظت اولیه H_2O_2 با میزان تاثیر ۷۳/۵۸٪ بیشترین تاثیر را در حذف TOC دارد. همچنین غلظت Fe^{2+} با ۱۱/۸۳۷٪ ، زمان واکنش با ۸/۰۸۹، PH با ۴/۱۳۷ و غلظت TOC ورودی با ۲/۳۵۵٪ در رده‌های بعدی قرار دارند. باتوجه شکل‌های تاثیر عوامل و نتایج جدول ANOVA می‌توان شرایط بهینه نسبی برای رسیدن به بهترین کارایی فرایند فنتون و در نتیجه بیشترین درصد حذف TOC را نسبت به سه سطح دیگر هر عامل به دست آورد. جدول ۶ شرایط بهینه نسبی تعیین شده برای حذف TOC توسط روش تاگوچی را نشان می‌دهد. دراین جدول همچنین میزان سهم مقدار بهینه هر یک از عوامل در بهبود پاسخ تبدیل یافته (S/N) در ستون آخر نشان داده شده است. در صورت اعمال شرایط بهینه، مقدار پاسخ تبدیل یافته بیش از ۱۶/۰۰۶ واحد نسبت به مقدار متوسط پاسخ‌های فعلی (۲۳/۰۲۸) بهبود خواهد یافت و در نتیجه پاسخی معادل با ۳۹/۰۳۴ حاصل خواهد شد. از طریق مقایسه مقدار پاسخ پیش بینی شده با مقادیر پاسخ‌های به دست آمده در جدول۴، می‌توان میزان بهبود پاسخ تحت شرایط بهینه را تعیین کرد. مزیت استفاده از این پاسخ جدید در تحلیل آماری، نسبت به

شکل اولیه پاسخ، مقایسه بزرگی اثرات ناشی از هر عامل اصلی با اثرات ناشی از عوامل خطا و اغتشاش در اندازه‌گیری است که در نتیجه منجر به برداشت دقیق‌تری از تأثیر واقعی عوامل بر سیستم خواهد شد (۶).

جدول۶: شرایط بهینه نسبی تعیین شده برای حذف TOC توسط روش تاگوچی

عامل	بهترین سطوح	مشخصات هر سطح	میزان سهم در بهبودپاسخ(S/N)
TOC ورودی	۲	۴۰	۱/۵۱۴
غلظت H_2O_2	۴	۵۰۰	۶/۲۷۲
غلظت Fe^{2+}	۴	۵۰	۳/۳۳۱
PH	۲	۳/۵	۱/۷۳۷
زمان واکنش	۳	۱۰	۳/۱۵۲
سهم کل عوامل در بهبود پاسخ			۱۶/۰۰۶
متوسط پاسخ‌های فعلی در آزمایش‌های انجام شده			۲۳/۰۲۸
پاسخ پیش‌بینی شده در شرایط بهینه (S/N)			۳۹/۰۳۴

بحث

با توجه به شکل ۱و همچنین با توجه به جدول ۴ مشخص می‌شود که با افزایش غلظت آموکسی سیلین از ۱۰ به ۱۰۰ mg/L و به تبع آن افزایش TOC از ۶ به ۴۰mg/L راندمان حذف TOC افزایش می‌یابد ولی با افزایش غلظت آموکسی سیلین از ۱۰۰ به ۲۰۰ و ۵۰۰mg/L و همچنین تغییر غلظت TOC به ترتیب از۴۰ به ۸۷ و ۱۹۳ mg/L میزان حذف TOC و مقدار معدنی‌سازی آموکسی سیلین کاهش می‌یابد. با توجه به نتایج طراحی آزمایشات، سطح ۲ با غلظت آموکسی‌سیلین ۱۰۰ mg/L (TOC معادل ۴۰ mg/L) به عنوان غلظت بهینه فرایند گزارش می‌شود. آی و کارگی نیز غلظت ۱۰۵ mg/L آموکسی سیلین را به عنوان غلظت بهینه جهت حذف موثر TOC گزارش نمودند (۱۲).

تاثیر غلظت پراکسید هیدروژن

اساس فرایند اکسیداسیون پیشرفته فنتون بر پایه تولید رادیکال‌های بسیار قوی هیدروکسیل از تجزیه پراکسید هیدروژن در حضور کاتالیزور آهن دوظرفیتی طبق واکنش ۱ استوار است (۱۰).

$$Fe^{2+}+H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+}+OH^- +OH^\circ \qquad (۱)$$

با توجه به این نتایج نسبت S/N که شاخصی از پاسخ سیستم به تغییرات غلظت TOC است افزایش می‌یابد در نتیجه راندمان حذف TOC که بیانگر نرخ معدنی‌سازی آموکسی سیلین توسط فرایند فنتون است، نیز افزایش می‌یابد. از این نتایج چنین استنباط می‌شود که با افزایش دوز پراکسید هیدروژن راندمان حذف TOC نیز افزایش می‌یابد. میزان معدنی‌سازی با افزایش غلظت آنتی بیوتیک کاهش می‌یابد. در غلظت‌های بالای پراکسید درصد حذف TOC افزایش می‌یابد، بنابراین در دوزهای کم پراکسید، این پارامتر به عنوان عامل محدود کننده معدنی‌سازی مطرح است. همچنین کاهش درصد حذف TOC در غلظت‌های بالای پراکسید، به دلیل تجزیه رادیکال‌های هیدروکسیل در غلظت‌های بالای پراکسید هیدروژن است. بر خلاف تجزیه کامل آموکسی‌سیلین در این پژوهش، حذف کامل TOC رخ نداد (با حداکثر راندمان حذف TOC ۳۸/۲۴٪) که دلیل آن تشکیل بعضی از ترکیبات جانبی مقاوم بعد از تجزیه آموکسی سیلین توسط فرایند فنتون است که در برابر معدنی‌سازی مقاوم هستند. همچنین معدنی‌سازی کامل آموکسی سیلین توسط فرایند فنتون را می‌توان توسط واکنش زیر نشان داد (۱۲):

$$C_{16}H_{19}N_3O_5S + 47H_2O_2 + Fe^{2+} \rightarrow 16CO_2 + 54H_2O + 3HNO_3 + H_2SO_4 + Fe^{2+} \qquad (۲)$$

بر اساس واکنش استوکیومتری معدنی‌سازی کامل (واکنش ۲) جهت معدنی‌سازی کامل آموکسی سیلین، به ازای هر میلی

گرم آموکسی سیلین به ۴/۳۸ میلی‌گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن نیازاست. مثلا در غیاب تشکیل ترکیبات جانبی، در غلظت آموکسی سیلین ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر، جهت معدنی‌سازی کامل آموکسی سیلین به ۴۳۸ میلی‌گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن نیاز است. هر چند در این مطالعه هنگامی که غلظت آموکسی سیلین ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر، پراکسید ۵۰۰ بود حداکثر میزان معدنی‌سازی برابر ۳۸/۱۸ ٪ اتفاق افتاد. این تفاوت به دلیل کامل نبودن معدنی‌سازی و تشکیل ترکیبات جانبی مقاوم است. با توجه به این نتایج، سطح ۴ یعنی غلظت ۵۰۰mg/L، به عنوان سطح بهینه پراکسید هیدروژن جهت افزایش معدنی‌سازی آموکسی سیلین گزارش می‌شود. ال مولا و چائودوری نیز به این نتیجه رسیدند که با افزایش غلظت پراکسید هیدروژن راندمان حذف آنتی بیوتیک و TOC افزایش می‌یابد (۱۶).

تاثیر غلظت Fe^{2+}

آهن دوظرفیتی به عنوان کاتالیزور در فرایند فنتون با تبدیل شدن به آهن سه ظرفیتی باعث تولید رادیکال‌های هیدروکسیل از پراکسید هیدروژن در این فرایند می‌شود.

در جاهایی که غلظت آهن صفر می‌باشد راندمان حذف TOC کاهش می‌یابد که این امر نشان دهنده آن است که پراکسید هیدروژن در غیاب کاتالیزور آهن توانایی کمی در حذف TOC دارد. همچنین تحلیل نتایج نشان می‌دهد که با افزایش غلظت آهن راندمان تجزیه آموکسی سیلین توسط فرایند فنتون افزایش می‌یابد ولی بر خلاف تجزیه کامل آنتی بیوتیک، معدنی‌سازی به طور کامل اتفاق نمی‌افتد، مثلا همان گونه که در جدول ۴ آمده است در غلظت ۵۰mg/L از Fe^{2+} حداکثر میزان حذف TOC برابر ۳۸/۲۸۵ ٪ است که علت آن تشکیل محصولات جانبی مقاوم به معدنی‌سازی در طول فرایند فنتون می‌باشد. نتایج تحلیل تاگوچی نشان می‌دهد که سطح ۴ یعنی غلظت ۵۰mg/L آهن دارای بیشترین میزان نرخ S/N است، به همین علت این مقدار به عنوان سطح بهینه آهن بیان می‌شود. یافته‌های این پژوهش با نتایج هومم و همکاران و آی و کارگی مطابقت دارد (۱،۱۲).

تاثیر PH

مقدار PH بر میزان تولید رادیکال‌های هیدروکسیل و همچنین بر نرخ اکسیداسیون فرایند فنتون موثر است (۱۶). با توجه به شکل ۴ می‌توان گفت که تفاوت راندمان سطوح ۱ و ۲ چندان محسوس نیست و این سطوح بیشترین نرخ S/N را دارا می‌باشند ولی راندمان فرایند فنتون برای حذف TOC در سطوح ۳ و ۴ کاهش می‌یابد.کاهش تجزیه TOC، در PHهای بیشتر از ۳/۵ ممکن است به دلیل کاهش آهن محلول،کاهش اکسیداسیون رادیکال‌های هیدروکسیل و همچنین به علت از هم گسستگی و تجزیه خودبه خودی پراکسید هیدروژن باشد (۱۷).در PH بالای ۴، رسوب اکسی هیدروکسیدها رخ می‌دهد، که از تولید مجدد گونه‌های فعال Fe^{2+} و رادیکال‌های هیدروکسیل جلوگیری می‌کند (۱۸). به علاوه افزایش بیش از حد PH، باعث تقویت تشکیل یون‌های HO_2^- و تخریب رادیکال‌های هیدروکسیل توسط یون‌های کربنات و بیکربنات می‌شود (۱۹). با توجه به این شکل سطح ۲ بیشترین مقدار S/N را به خود اختصاص داده است، بنابراین PH برابر ۳/۵ به عنوان PH بهینه برای حذف TOC توسط فرایند فنتون در نظر گرفته می‌شود. آی و کارگی و ال مولا و چائودوری نیز محدوده بهینه PH جهت حداکثر حذف آنتی بیوتیک توسط فرایند فنتون را ۳/۵-۳ گزارش نمودند (۱۲، ۱۶).

تاثیر زمان واکنش

بهینه‌سازی زمان در واکنش‌های حذف، باعث صرفه‌جویی در هزینه‌های بهره‌برداری و انرژی مصرفی می‌شود. نتایج نشان داد که راندمان حذف هنگامی که از غلظت های بالای TOC و پراکسید هیدروژن استفاده می‌شود در زمان‌های ۲دقیقه بیشتر از زمان‌های ۵، ۱۰ و ۱۵ دقیقه است که این امر ممکن است به دلیل تخریب وتجزیه رادیکال‌های هیدروکسیل باشد زیرا با افزایش زمان، این رادیکال‌ها با پراکسید هیدروژن تجزیه نشده موجود در محلول واکنش داده و باعث تخریب آن‌ها می‌گردد. همچنین در غلظت‌های کم آموکسی سیلین و پراکسید هیدروژن، افزایش زمان واکنش

باعث ادامه تولید رادیکال‌های هیدروکسیل و تماس بیشتر این رادیکال‌ها با آنتی بیوتیک و در نهایت تجزیه بیشتر آموکسی سیلین می‌شود. به علاوه کاهش بازده حذف TOC با افزایش زمان از ۱۰به ۱۵ دقیقه ممکن است به دلیل محدودیت‌های ایجاد شده توسط پراکسید، آهن و PH باشد. نتایج حاصل از تجزیه و تحلیل آماری تاگوچی نشان دادکه بیشترین میزان پاسخ S/N مربوط به سطح ۳ یعنی زمان ۱۰ دقیقه است. بنابراین می‌توان گفت که زمان واکنش بهینه برای این فرآیند ۱۰ دقیقه است. در مطالعات مشابه محدوده زمانی ۸۰-۲ دقیقه به عنوان زمان بهینه جهت حذف موثر TOC گزارش شده است که این امر نشان دهنده مطابقت نتایج این تحقیق با مطالعه دیگر پژوهشگران است (۱۱-۱۴).

نتیجه‌گیری

نتایج این تحقیق نشان می‌دهد که فرایند فنتون جهت تصفیه فاضلاب‌های دارای TOC موثر می‌باشد. حداکثر بازده حذف TOC برای غلظت‌های ۱۰، ۱۰۰، ۲۰۰ و ۵۰۰ میلی‌گرم بر لیتر آموکسی سیلین توسط فرایند فنتون به ترتیب برابر ۳۷/۱۶۵، ۳۸/۲۸۵، ۳۵/۱۶ و ۱۷/۲۴٪ بود.

کارایی میزان معدنی‌سازی آموکسی سیلین توسط فرایند فنتون به پارامترهای مختلفی بستگی دارد. در این مطالعه برای بررسی تاثیر عوامل و تعیین شرایط بهینه حذف TOC توسط فرایند فنتون ۵ پارامتر غلظت اولیه TOC، غلظت اولیه پراکسید هیدروژن، غلظت اولیه آهن(II)، PH و زمان هرکدام در ۴ سطح مختلف مورد بررسی قرار گرفتند و در این رابطه از روش طراحی آزمایش تاگوچی استفاده گردید. پس از تحلیل آماری شرایط بهینه محاسبه گشت. نتایج این مطالعه نشان می‌دهد که هر ۵ عامل مورد نظر برای بهینه‌سازی فرایند فنتون بر کارایی آن موثر بوده و ترتیب الویت و درصد تاثیر هر یک از آن‌ها به صورت ۱- غلظت اولیه پراکسید هیدروژن (۷۳/۵۸٪) ۲- غلظت Fe^{2+} (۱۱/۸۳۷٪) ۳- زمان واکنش (۸/۰۸۹) ۴- PH (۴/۱۳۷٪) ۵- TOC ورودی (۲/۳۵۷٪) است. نتایج بهینه‌سازی نسبی به روش تاگوچی نشان داد سطوح مناسب برای هر یک از عوامل به صورت زیر است: غلظت اولیه TOC برابر ۴۰ mg/L، غلظت H_2O_2 برابر ۵۰۰ mg/L، غلظت آهن(II) ۵۰ mg/L، PH برابر ۳/۵ و زمان ۱۰ دقیقه. یعنی شرایط بهینه درنسبت H_2O_2/Fe^{2+}/ TOC = ۵۰۰/۵۰/۴۰ mg/L، PH برابر ۳/۵ و زمان واکنش ۱۰دقیقه اتفاق می‌افتد.

جهت دستیابی به میزان حذف TOC موثر باید به تناسب افزایش غلظت TOC، غلظت پراکسید هیدروژن و آهن (II) نیز افزایش یابد. درصد حذف TOC را می‌توان با کاربرد روش‌های اکسداسیون پیشرفته تلفیقی مثل فتو فنتون، ازناسیون و $TiO_2 - UV$ ، الکتروفنتون و فتوالکتروفنتون افزایش داد.

شرایط بهینه به دست آمده در این پژوهش جهت دستیابی به راندمان بالاتر حذف TOC در مطالعات دیگر مد نظر قرار گیرند.

نتایج حاصل از این مطالعه نشان می‌دهد که می‌توان از فرایند فنتون به عنوان یک واحد پیش تصفیه جهت افزایش میزان معدنی‌سازی فاضلاب حاوی آموکسی سیلین استفاده نمود.

همچنین با توجه به نتایج این پژوهش می‌توان اظهار نمود که با روش طراحی آزمایش‌ها به سادگی می‌توان شرایط بهینه فرایند فنتون را جهت حذف TOC تعیین نمود.

تشکر و قدردانی

با کمال تشکر و قدردانی از گروه مهندسی محیط زیست دانشگاه علوم و تحقیقات خوزستان و دانشگاه علوم پزشکی شیراز و همچنین از شرکت آب و فاضلاب شهری شیراز که با کمک‌های مادی و معنوی خود موجبات انجام این مطالعه را فراهم نمودند.

References

1. Homem V, Alves A, Santos L. Amoxicillin degradation at ppb levels by Fenton's oxidation using design of experiments. Sci Total Environ 2010 15;408(24):6272-80.
2. Hernando MD, Mezcua M, Fernández-Alba AR, Barceló D. Environmental risk assessment of pharmaceutical residues in wastewater effluents, surface waters and sediments. Talanta 2006;69(2):334-42.
3. Pan X, Deng C, Zhang D, Wang J, Mu G, Chen Y. Toxic effects of amoxicillin on the photosystem II of Synechocystis sp. characterized by a variety of in vivo chlorophyll fluorescence tests. Aquat Toxicol 2008; 89(4):207-13.
4. Bound JP, Voulvoulis N. Predicted and measured concentrations for selected pharmaceuticals in UK rivers: implications for risk assessment. Water Res. 2006 Aug;40(15):2885-92.
5. Xu WH, Zhang G, Zou SC, Li XD, Liu YC. Determination of selected antibiotics in the Victoria Harbour and the Pearl River, South China using high performance liquid chromatography electrospray ionization tandem mass spectrometry. Environ Pollut 2007 Feb; 145(3):672-9.
6. Daneshvar N, Khataee AR, Rasoulifard M, Pourhassan M. Biodegradation of dye solution containing Malachite Green: Optimization of effective parameters using Taguchi method. J Hazard Mater 2007 May 8;143(1-2):214-9 .
7. Tekin H, Bilkay O, Ataberk SS, Balta TH, Ceribasi IH, Sanin FD, et al. Use of Fenton oxidation to improve biodegradability of a pharmaceutical wastewater. J Hazard Mater 2006;136(2):258-65.
8. Wang S. A comparative study of Fenton and Fenton-like reaction kinetics in decolourisation of wastewater. Dyes Pigm 2008; 76:714-20.
9. Oliveira R, Almeida MF, Santos L, Madeira LM. Experimental design of 2, 4-dichlorophenol oxidation by Fenton's reaction. Ind Eng Chem Res 2006; 45: 1266-76.
10. Britto JM, Rangel MC. Processos avançados de oxidação de compostos fenólicos em effluents industriais. Ind. Eng. Chem. Res 2006, 45 (4): 1266–76.
11. Yeon J, Wan G, YeojoonY, Joon W, Kang Y, Min H, Hyun W. Removal of amoxicillin by UV and UV/H_2O_2 processes. Sci Total Environ 2012 Mar 15; 420:160-7.
12. Filiz AY, Fikret K. Advanced oxidation of amoxicillin by Fenton's reagent treatment. J Hazard Mater 2010; 179: 622-7.
13. Giraldo AL, Penuela GA. Torres-Palma RA, Pino NJ, Palominos RA, Mansilla HD. Degradation of the antibiotic oxolinic acid by photocatalysis with TiO_2 in suspension. Water Res 2010; 44: 5158 -67.
14. Fang Y, Chun H, Xuexiang H, Dongbin W, Yong C, Jiuhui Q. Photodegradation and toxicity changes of antibiotics in UV and UV/H_2O_2 process. J Hazard Mater 2011; 185: 1256-63.
15. American Public Health Association, American Water Works Association, Water Pollution Control Federation. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater. 18th Ed. Washington, DC: American Public Health Association; 1992.
16. Elmolla E, Chaudhuri M. Optimization of Fenton process for treatment of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution. J Hazard Mater 2009;170(2-3):666-72

17. Elmolla E, Chaudhuri M. Improvement of biodegradability of synthetic amoxicillin wastewater by photo-Fenton process. World Appl Sci J 2009a; 5: 53-58.
18. El-Desoky HS, Ghoneim MM, El-Sheikh R, Zidan NM. Oxidation of Levafix CA reactive azo-dyes in industrial Wastewater of textile dyeing by electro-generated Fenton's reagent. J Hazard Mater 2010; 175(1-3):858-65.
19. Bobu M, Yediler A, Siminiceanu I, Schulte-Hostede S. Degradation studies of ciprofloxacin on a pillared iron catalyst. Appl Catal 2008; B (83): 15-23.

Optimization of Fenton process for total organic carbon removal from aqueous solution includes amoxicillin antibiotic by using Taguchi experimental design

Shahin Behzadi[1], Mansooreh Dehghani[2], MohammadSadegh Sekhavatjoo[3], Hassan Hashemi[4]

Original Article

Abstract

Background: Amoxicillin is now one of the most widely used antibiotics which can release to the environment and cause health and environmental effects. This study investigates the optimization of the parameters affecting the advanced oxidation process Fenton for improving TOC removal from aqueous solution includes amoxicillin antibiotic by using Taguchi experimental design.

Methods: In this study for evaluation the effect of factors and determination optimal conditions to removal TOC by Fenton process, 5 parameters such as TOC, Hydrogen peroxide, Fe2+ initial concentrations, PH and reaction time each of in 4 levels was investigated. Optimization experiments were repeated 2 times each and the optimal conditions were obtained after analysis with Taguchi method.

Findings: TOC removal efficiency by Fenton process from aqueous solution via TOC initial concentrations 6, 40, 87 and 193 mg/L was 37.165%, 38.285%, 35.116% and 17.24% respectively. Optimization of the process by Taguchi method showed initial TOC concentration 40 mg/L, H2O2 500mg/L, Fe2+ 50mg/L, PH 3.5 and reaction time 10 min with importance priority of 2.357%, 73.58%, 11.837%, 4.137% and 8.089% were determined as optimum conditions of operational parameters of the Fenton process in TOC degradation respectively.

Conclusion: In this study, Maximum removal efficiency of amoxicillin and TOC were obtained 99.6% and 38.285% respectively. This study indicated that Fenton process can be used for pretreatment of amoxicillin for biological treatment. Unlike complete amoxicillin degradation, TOC removal (mineralization) was not complete in Fenton oxidation due to formation of refractory intermediates. Keywords: compact fluorescent lamp, Ultraviolet radiation, UVA, UVB, UVC

Key words*:* Amoxicillin, Fenton process, Mineralization, Taguchi

Citation: Behzadi Sh, Dehghani M, Sekhavatjoo MS, Hashemi H. **Optimization of Fenton process for total organic carbon removal from aqueous solution includes amoxicillin antibiotic by using Taguchi experimental design.** J Health Syst Res 2013; 9(11): 1186-1200

Received date: 13/02/2013 **Accept date: 25/12/2013**

1. Department of Environmental Engineering- Water and Wastewater, Islamic Azad University Science and Research Branch-Khouzestan, Ahwaz, Iran

2. Associate Professor, Department of Environmental Health, School of Health, Shiraz University of Medical Sciences, Shiraz, Iran (Corresponding Author) Email: mdehghany@sums.ac.ir

3. Assistant Professor, Department of Environmental Engineering- Water and Wastewater, Islamic Azad University Science and Research Branch-Khouzestan, Ahwaz, Iran

4. Lecturer, Department of Environmental Health, School of Health, Shahrekord University of Medical Sciences, Shahrekord, Iran