مجله مهندسی بهداشت محیط، تابستان ۱۳۹۶، سال ٤، شماره ٤: ۳۳۵-۳٤۸

تجزیه آموکسی سیلین با استفاده از فرآیند الکتروفنتون گرافیت فلت اصلاح‌شده و نانو کاتالیست Fe_3O_4

معصومه رحمتی نیا[۱] ، روشنک رضایی کلانتری[۲و۳*] ، مهدی فرزاد کیا[۲و۳]، مجید کرمانی[۳و٤]

[۱] دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران
[۲] استاد گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران
[۳] مرکز تحقیقات تکنولوژی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران
[٤] دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۶/۳/۲۶ ؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۶/۶/۲۸

چکیده

سابقه و هدف: آموکسی‌سیلین پرمصرف‌ترین آنتی‌بیوتیکی است که به دلیل ایجاد مقاومت در باکتری ها موردتوجه خاصی قرارگرفته است. این ترکیب از مسیرهای مختلفی مانند دفع مستقیم فاضلاب و زائدات پزشکی ، دامپزشکی و صنعت می‌تواند، وارد محیط‌های آبی شود. هدف از این مطالعه، حذف آموکسی سیلین به‌وسیله فرآیند الکتروفنتون با استفاده از گرافیت فلت اصلاح‌شده و نانو ذرات Fe_3O_4 از محلول‌های آبی بود.

مواد و روش‌ها: نانو ذرات Fe_3O_4 به‌وسیله روش هم ترسیبی شیمیایی سنتز شد. گرافیت فلت نیز به‌منظور اجتناب از هوادهی، اصلاح شد. مشخصات ساختاری و فیزیکی نانوکاتالیست و گرافیت فلت اصلاح‌شده با تکنیک‌های SEM، EDS و BET آنالیز شد. بعد از بهینه‌سازی دو متغیر pH و زمان، پارامتر های شدت جریان ، غلظت آموکسی سیلین، دوز کاتالیست و فاصله بین الکترودها با استفاده از نرم‌افزار Design Expert 7 طراحی و با استفاده از روش سطح پاسخ بهینه‌سازی گردید.

یافته‌ها: اصلاح گرافیت فلت منجر به افزایش سطح موثرآن از ۰/۸۹ به ۱/۹۲ m^2/g شد. حداکثر میزان حذف آموکسی سیلین (۹۷/۱۱ درصد)، در pH= ۳، زمان ٦۰ دقیقه، شدت‌جریان ۱۸۰ mA، غلظت آموکسی سیلین ۲۰ mg/L، غلظت کاتالیست ۱g/L و فاصله بین الکترودها ۲ cm به دست آمد.

استنتاج: نتایج این مطالعه نشان داد، فرایند الکتروفنتون با نانو ذرات Fe_3O_4 و گرافیت اصلاح شده ، بدون هوادهی خارجی یک فرایند مؤثر در حذف آموکسی‌سیلین است.

کلمات کلیدی: آموکسی‌سیلین، الکتروفنتون، محلول‌های آبی، گرافیت اصلاح‌شده،Fe_3O_4

* استاد گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران
ایمیل: rezaei.r@iums.ac.ir – شماره تماس: ۰۹۱۲-۳۲۳۴۵۸۶

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

مقدمه

در جهان امروز با توسعه روزافزون صنایع توجهی به پیامدهای زیست‌محیطی آن‌ها نمی‌شود و تنها بعد اقتصادی آن‌ها مدنظر است . به موازات آن معضلاتی نظیر تولید فاضلاب‌ها و پسماندها، ایجاد آلودگی هوا، خاک و ... ازجمله مواردی است که انسان همواره با آن مواجه بوده است[۱]. امروزه از بین آلاینده‌های متنوع آبی در سرتاسر دنیا داروها به عنوان آلاینده‌های بالقوه منابع آبی شناخته می‌شوند و با قرار گرفتن در دسته آلاینده‌های نوظهور باعث ایجاد نگرانی هایی شده‌اند[۲-۵].

اگرچه باقیمانده آنتی بیوتیک ها در طبیعت در مقادیر کم وجود دارد، اما به علت مصرف بسیار زیاد در پزشکی و دامپزشکی جایگاه مهمی در آلودگی محیط زیست دارند و به‌مرورزمان ممکن است باعث ایجاد مقاومت در جمعیت‌های باکتریایی شده و آنتی بیوتیک ها را در درمان بیماری های مختلف بی‌اثر سازند[۶و۷]. بیش از ٦٥ درصد از آنتی‌بیوتیک‌ها ی مصرفی در جهان مربوط به آنتی‌بیوتیک‌ها ی گروه β –لاکتام می‌باشد که آموکسی سیلین نیز متعلق به همین دسته است [۸]. آموکسی سیلین آنتی‌بیوتیک وسیع الطیف β- لاکتام (فرمول شیمیایی: $C_{16}H_{19}N_3O_5S_3$) با وزن مولکولی ٣٦٥/٤١ گرم بر مول متعلق به گروه پنی‌سیلین ها می باشد که در پزشکی و دامپزشکی برای درمان عفونت‌های باکتریایی معده‌ای – روده‌ای و سیستماتیک استفاده می‌شود[۹]. آنتی‌بیوتیک‌های این گروه در آب‌های سطحی ٤٨ نانوگرم در لیتر و غلظت آموکسی سیلین در فاضلاب ها ی بیمارستانی در محدوده بین ٢٨ تا ٨٢/٧ میلی گرم در لیتر گزارش شده است [۱۰]. جهت حذف آنتی‌بیوتیک‌ها از منابع آبی از فرایندهای متعددی استفاده‌شده‌اند که از آن جمله می‌توان به فرایندهای تبادل یون [۱۱]، جذب با کربن فعال [۱۲]، فرایندهای غشایی مثل اسمز معکوس و نانوفیلتراسیون[۱۳و۱٤] و فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته از قبیل فنتون و فوتوفنتون [۱۵]، الکتروشیمیایی [۱٦]،ازن زنی و تابش الکترونی اشاره کرد [۱۷]. برای حذف آنتی بیوتیک ها تصفیه بیولوژیکی چندان مؤثر نمی‌باشد، زیرا آنتی‌بیوتیک ها باعث حذف میکروارگانیسم‌های مؤثر در تصفیه می‌گردد . مطالعات انجام‌شده نیز نشان می‌دهد اغلب این آنتی‌بیوتیک ها غیرقابل تجزیه بیولوژیکی بوده و بدون تغییر و دست نخورده از تصفیه‌خانه‌های فاضلاب خارج می شوند [۱۰]. امروزه از بین فرآیندهای حذف آنتی بیوتیک ها فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته برای تصفیه این‌گونه فاضلاب‌ها بیشتر استفاده می‌شود، زیرا این روش‌ها آلاینده‌های دارویی را کاملاً حذف می‌کنند [۱۸]. فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته مجموعه گسترده ای از فرآیندهای اکسیداسیون شیمیایی بوده که با استفاده از گونه های رادیکال گذار همچون رادیکال‌های آزاد هیدروکسیل (°OH)، پرسولفات و غیره باعث تجزیه انواع آلاینده‌ها می شود . این رادیکال‌ها در فرآیند AOPs دارای ویژگی واکنش‌پذیری بالا و حالت غیرانتخابی بوده و باعث تجزیه آلاینده ها (R) به مواد واسطه با وزن مولکولی پایین یا معدنی سازی آن‌ها می‌شود[۱۹و۲۰]. یکی از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته، فرآیند فنتون می‌باشد که در تصفیه محلول‌های آبی آلوده به مواد آلی مقاوم یک روش مؤثرمی باشد[۲۰]. واکنشگر فنتون در مقایسه با فرایند الکتروفنتون دارای محدودیت‌هایی از قبیل حلالیت کم H_2O_2، استفاده از مقادیر زیادی معرف شیمیایی، مصرف سریع یون‌های فروس و تولید لجن هیدروکسیدفریک م ی‌باشد ،که خود مستلزم هزینه و فرایند اضافی برای جداسازی و دفع لجن، واکنش‌ها ی مزاحم و راندمان معدنی سازی متوسط است[۲۱-۲۳]. به‌منظور غالب شدن بر این محدودیت‌ها، اصلاحات مختلفی مطرح‌شده است که یک نمونه ساده آن استفاده از فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته الکتروشیمیایی (EAOPs) و از

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

میان آن‌ها فرآیند الکترو- فنتون می‌باشد[۲۴].

مکانیسم واکنش‌هایی که در فرایند الکتروفنتون رخ می‌دهد به‌صورت زیر می‌باشد[۲۵]:

$$O_2 (g) + 2H^+ + 2e \rightarrow H_2O_2 \quad (۱)$$

$$Fe^{2+} + H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+} + {}^{\circ}OH + OH^- \quad (۲)$$

$$Fe^{3+} + e^- \rightarrow Fe^{2+} \quad (۳)$$

پراکسید هیدروژن طبق واکنش ۱ از طریق کاهش دو الکترون اکسیژن روی کاتدی از جنس کربن به دست می‌آید و رادیکال هیدروکسیل از طریق واکنش فنتون بر اساس رابطه ۲ تولید می‌شود. Fe^{2+} نیز از کاهش Fe^{3+} در سطح کاتد دوباره بازسازی می‌شود[۲۵]. به‌طورکلی از مزایای این فرآیند می‌توان به تجزیه بالای مواد آلاینده با حداکثر مدیریت منابع انرژی، کنترل آسان‌بر روی فرآیند الکتروشیمیایی، دقت بالا و همچنین اندازه کوچک راکتور، مساحت کم زمین موردنیاز و سهولت اجرا اشاره کرد[۲۶و۲۷]. Panizza و همکاران در سال ۲۰۱٤ عملکرد فرآیند الکتروفنتون با آندهای پلاتین و BDD و کاتد گرافیت فلت را در معدنی سازی کامل آنتی‌بیوتیک آموکسی سیلین در محیط‌های آبی را موردمطالعه قراردادند. نتایج این تحقیق نشان داد که معدنی سازی با BDD در مقایسه با پلاتین سریع‌تر صورت می‌گیرد[۲۸]. Ozcan و همکاران در سال ۲۰۱٦ با استفاده از فرایند الکتروفنتون به بررسی معدنی سازی و کینتیک تجزیه آنتی‌بیوتیک نورفلوکساسین پرداختند. نتایج این تحقیق راندمان معدنی سازی بالایی (۹۷/۷ درصد) را طی مدت‌زمان ۵ ساعت نشان داد[۲۹]. Yahya و همکاران در سال ۲۰۱٤ به بررسی تجزیه سیپروفلوکساسین با استفاده از فرایند الکتروفنتون پرداختند. نتایج نشان‌دهنده راندمان قابل توجه بالای ۹٤ درصد طی مدت‌زمان ٦ ساعت بود[۳۰]. ازجمله معایب فرایندهای معمول الکتروفنتون نیاز به هوادهی است تا اکسیژن موردنیاز در کاتد را برای تولید بیشتر H_2O_2 فراهم گردد، بااین‌وجود راندمان بهره‌وری از اکسیژن در این فرایندها بسیار پایین بوده و حتی کمتر از ۰/۱ درصد است[۳۱]. بنابراین در این تحقیق به منظور حذف آموکسی سیلین از محلول های آبی، از یک فرآیند الکتروفنتون هزینه- اثربخش استفاده‌شده است . از نوآوری‌های این روش نسبت به فرایندهای معمول الکتروفنتون تولید بیشتر پراکسید هیدروژن بدون هوادهی است ، بنوای این منظور از گرافیت فلت اصلاح‌شده (با استفاده از کربن بلک و پلی تترا فلوئورواتیلن) به‌عنوان کاتد استفاده‌شده است. اصلاح کاتد با افزایش آب‌گریزی آن باعث تسهیل توزیع اکسیژن در سطح شده و علاوه بر آن محل های مؤثر برای واکنش های الکتروشیمیایی را افزایش می‌دهد[۳۲]. از دیگر مزایای فرایند الکتروفنتون موردمطالعه، استفاده از نانو ذرات Fe_3O_4 به جای ترکیبات معمول آهن به‌عنوان یک کاتالیزور مناسب می‌باشد که مزایایی از قبیل امکان تولید بیشتر پراکسید هیدروژن، پایداری بیشتر و قابلیت استفاده مجدد را دارد . نانو ذرات Fe_3O_4 دارا خاصیت پارامغناطیسی فوق‌العاده‌ای می‌باشند و به آسانی، با اعمال یک جریان مغناطیسی کم از محلول جدا می شوند[۳۳]. متغیرهای موردبررسی در این تحقیق شامل شدت جریان الکتریکی، دوز کاتالیست، زمان تماس، pH ، غلظت آموکسی سیلین و فاصله بین الکترودها است . هدف از این مطالعه، ارزیابی فرآیند الکتروفنتون با گرافیت فلت اصلاح شده و نانو ذرات Fe_3O_4 در حذف آموکسی‌سیلین از محیط‌های آبی است.

مواد و روش‌ها

مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی- آزمایشگاهی بوده که در آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی ایران انجام گرفت . به منظور مطالعه فرآیند الکتروفنتون از یک سل استوانه ای به حجم ۲۵۰ میلی‌لیتر استفاده شد. الکترود آند پلاتین (۱ cm × ۲) در مرکز سل به‌وسیله الکترود کاتد (۹ cm × ۹) احاطه‌شده است. برای تأمین جریان الکتریکی از منبع تغذیه جریان مستقیم (DC POWER) استفاده شد، که هر دو الکترود توسط سیم‌های رابط به منبع جریان برق متصل شدند. گرافیت فلت باضخامت ۳/۲ میلی‌متر(

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

مقدار کربن ۹۹٪، مقدار خاکستر کمتر از ۰/۲ و دانسیته ۰/۰۸ گرم بر مترمکعب) به‌عنوان الکترود کاتد مورداستفاده قرار گرفت . اصلاح الکترود کاتد و همچنین سنتز نانو ذرات مگنتیک در این مطالعه جهت افزایش میزان تولید H_2O_2 (از طریق کاهش بیشتر O_2 روی سطح کاتد) و جداسازی آسان کاتالیست بدون ایجاد آلودگی ثانویه و آزادساز ی آهن انجام گردید[۳۴].

سنتز نانو ذرات مگنتیک (Fe_3O_4)

در این مطالعه نانو ذرات مگنتیک به وسیله روش هم ترسیبی شیمیایی سنتز شد . ابتدا مقدار ۱۱ گرم از ترکیب $FeCl_3.6H_2O$ با ٤ گرم از ترکیب $FeCl_2.4H_2O$ در ۵۰ میلی‌لیتر اسیدکلریدریک ۰/۵ نرمال حل شد. به‌طور هم زمان ۵۰۰ میلی‌لیتر محلول ۱/۵ مولار هیدرکسید سدیم در دمای ۸۰ درجه سلسیوس به‌صورت قطره‌ای تحت جریان نیتروژن اضافه گردید. بعد از گذشت ٦۰ دقیقه، نانو ذرات سنتز شده به‌وسیله مگنت جداسازی شده و چندین بار با آب مقطر تا رسیدن به pH خنثی شستشو داده‌شده و سپس تحت شرایط خلأ خشک گردید [۳٤]. بعد از تهیه نانو ذرات ، مشخصات فیزیکی و ساختاری این نانو ذرات با استفاده از روش‌ها ی استاندارد میکروسکوپ الکترونی SEM-EDS مشخص گردید.

اصلاح الکترود کاتد گرافیتی

گرافیت فلت به ترتیب با استن و آب دیونیزه به مدت نیم ساعت شستشو داده‌شده و سپس در دمای ۱۵۰ درجه سلسیوس به مدت ۲٤ ساعت در اون خشک گردید . سپس مقدار مناسبی از کربن بلک (۱/۲ گرم) ، پلی تترافلوئور واتیلن (٦ گرم) ،آب مقطر (۵۰ میلی‌لیتر) و n – بوتانول(۳ درصد) توسط همزن با یکدیگر مخلوط شدند. این جوهر کربن ی به جهت دی‌پرس شدن مناسب به مدت نیم ساعت در حمام اولتراسونیک گذاشته شد. درنهایت گرافیت فلت خشک‌شده در محلول کربنی غوطه‌ور گردیده و سپس به ترتیب در اون به مدت ۲٤ ساعت و به مدت یک ساعت در کوره در دمای ۳٦۰ درجه سلسیوس جهت خشک شدن گذاشته شد[۳۲].

آزمایش های الکتروفنتون

ابتدا محلول mg/L ۱۰۰۰ از آلاینده موردبررسی به وسیله حل کردن مقدار مناسبی از آموکسی سیلین ($C_{16}H_{19}N_3O_5S$) خالص خریداری‌شده از سیگما آلدریچ در آب دی یونیزه تهیه شد. در این مطالعه ابتدا برای بررسی تأثیر، pH اولیه و زمان با ثابت نگه‌داشتن دیگر فاکتورها آزما یش‌ها ی الکتروفنتون در شرایط غلظت اولیه آموکسی سیلین ۷۰ میلی‌گرم بر لیتر، شدت‌جریان ۱۸۰ میلی‌آمپر، دوز کاتالیست ۰/٦ گرم بر لیتر و فاصله بین الکترودها ۲ سانتی‌متر انجام گردید . پس از تعیین pH و زمان بهینه، برای تعیین تأثیر فاکتورهای دوز نانوذره ، شدت‌جریان ، غلظت اولیه آموکسی سیلین و فاصله بین الکترودها بر روی حذف آموکسی سیلین، طراحی آزما یش‌ها با روش Box- Behnken توسط نرم‌افزار Design Expert انجام گردید(جدول ۱). سدیم سولفات (Na_2SO_4) ۰/۰۵ مولار به‌عنوان الکترولیت حامی در فرآیند الکتروفنتون مورداستفاده قرار گرفت[۲۹]. پس از قرار دادن الکترودهای موردنظر در راکتور جهت اعمال شدت جریان موردنظر هر آزمایش، از طریق سیم‌های رابط، الکترود آند به قطب مثبت منبع تغذیه و الکترود کاتد به قطب منفی آن متصل گردید . آزما یش‌ها برحسب فاکتورهای تعریف شده در جدول ۱ انجام‌شده و پس از اتمام زمان هر آزمایش، نمونه‌های موردنظر به‌وسیله فیلتری از جنس پلی تترافلورواتیلن (۰/٤۵ میکرومتر) صاف شده و جهت آنالیزتوسط دستگاه HPLC در طول‌موج ۲۳۵ nm خوانده شد . در این مطالعه همچنین تمامی آزمایش‌ها ۳ بار تکرار بود.

در همه آزمایش‌ها pH محلول قبل و بعد از انجام فرایند الکتروفنتون به‌صورت pH_{in} و pH_{out} به‌وسیله دستگاه pH متر ثبت گردید. مقدار آموکسی سیلین تجزی‌شده توسط رابطه زیر محاسبه گردید:

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

$$X = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100 \quad (۲)$$

در این معادله X میزان تجزیه، C_0 و C_t به ترتیب غلظت اولیه و نهایی آموکسی سیلین(mg/L) می‌باشد.

آنالیز نمونه‌ها

جهت سنجش غلظت آموکسی سیلین از یک دستگاه HPLC (CE4200-cecil, England) مجهز به ستون C18 (۲۰۰ mm × ٤/٦ mm ×٥ µm) استفاده گردید . دتکتور مورداستفاده در این مطالعه از نوع UV-visible، در طول‌موج ۲۳۵ nm جهت شناسایی پیک آموکسی سیلین مورداستفاده قرار گرفت. فاز متحرک A وB به ترتیب آب مقطر و متانول بود. دبی دستگاه ۱ mL/min و حجم تزریق نمونه ۲۰µL بود. غلظت H_2O_2 تولیدی در فرآیند الکتروفنتون به وسیله روش یدومتری و با استفاده از ماده پتاسیم یدید تعیین گردید[۳۵].

یافته ها

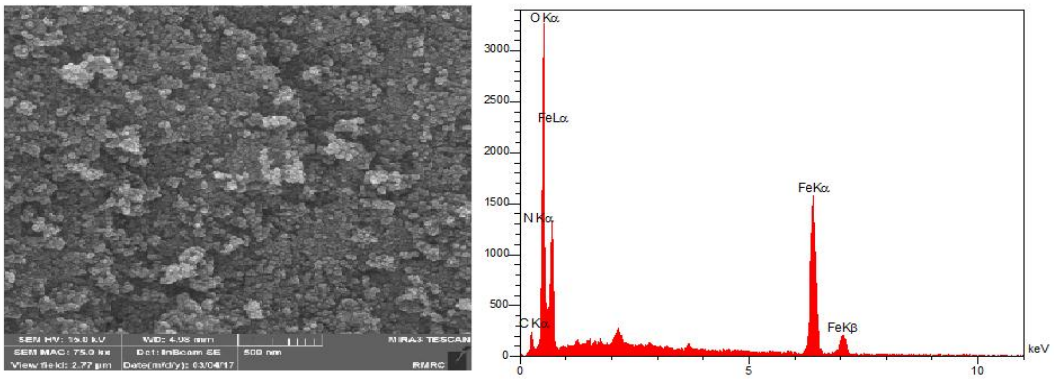
شکل ۱ تصویر SEM-EDS نانو ذرات مگنتیک را نشان می‌دهد. طبق این شکل بیشترین درصد این ترکیبات را نانو ذرات مگنتیک Fe_3O_4 (٤٨٪ <) تشکیل داده است . شکل ۲ تصویر SEM گرافیت فلت قبل و بعد از اصلاح نشان می‌دهد . طبق این شکل سطح BET و حجم منافذ گرافیت فلت به ترتیب از ۰/۸۲ m^2/g ، ۰/۰۰۳ cm^3/g ، به ۱/۹۲ m^2/g، ۰/۰۳٦ cm^3/g بعد از فرآیند اصلاح افزایش یافته است . تأثیر فرآیند اصلاح روی میزان تولید H_2O_2 توسط گرافیت فلت (الکترود کاتد) در نمودار ۱ نشان داد که میزان H_2O_2 تولیدی در شرایط pH= ۳، شدت جریان ۳۰۰ mA و زمان واکنش ۹۰ دقیقه ، ۳۸mg/L بود که بعد از اصلاح گرافیت فلت به mg/L ۱۹۷/٦ افزایش یافت. نمودار ۲ تأثیر pH در زمان واکنش ها ی مختلف در حذف آموکسی سیلین به‌وسیله فرآیند الکتروفنتون را نشان می‌دهد. طبق این نمودار با کاهش pH و افزایش زمان واکنش میزان حذف آموکسی سیلین افزایش می‌یابد . ازآنجایی‌که تفاوت زمان‌های ٦۰ و ۹۰ دقیقه چشمگیر نبود از زمان تماس ٦۰ دقیقه برای بهینه‌سازی سایر متغیرها در نرم‌افزار Design Expert استفاده گردید.

جدول ۱: فاکتورها و سطوح مربوط به آزمایش حذف آموکسی سیلین

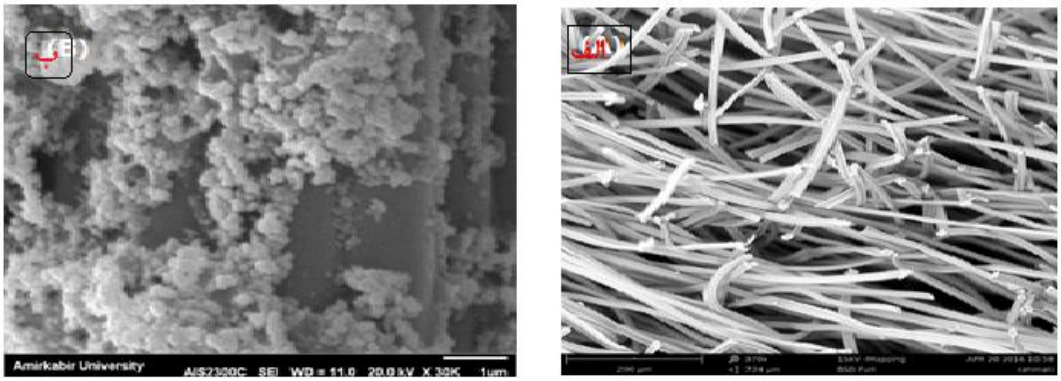
فاکتورها	اسم متغیرها	سطح پایین	متوسط	سطح بالا
A	غلظت اولیه دارو (mg/L)	۲۰	۷۰	۱۲۰
B	دوز کاتالیست (g/L)	۰/۲	۰/٦	۱
C	دانسیته جریان (mA)	٦۰	۱۸۰	۳۰۰
D	فاصله بین الکترودها (cm)	۱	۲	۳

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

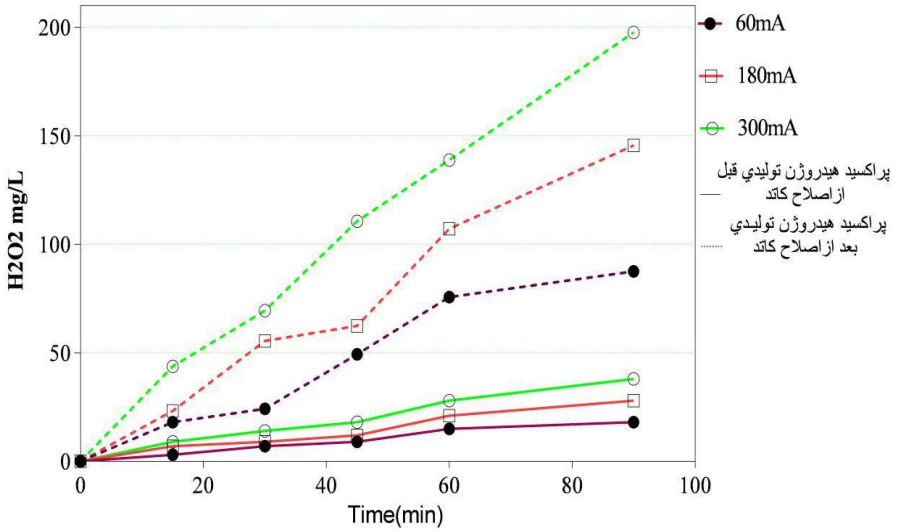
[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]



شکل ۱: عکس SEM-EDS نانو ذرات مگنتیک سنتز شده



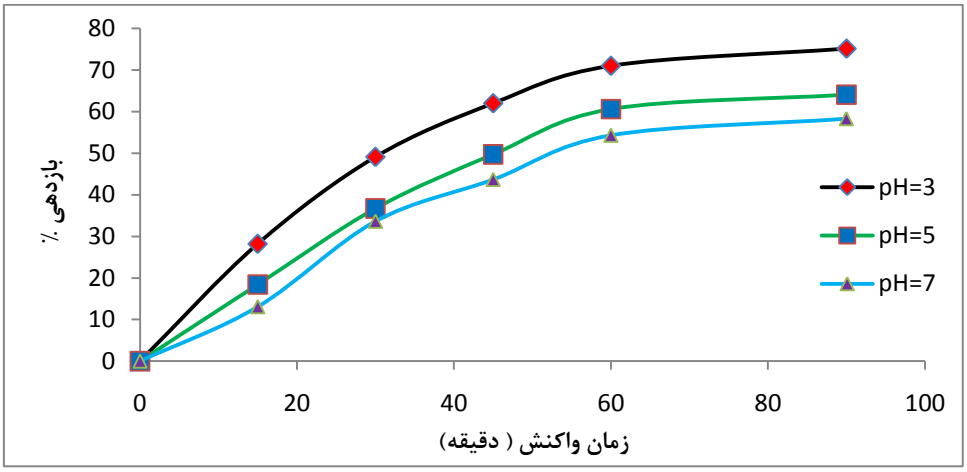
شکل ۲: عکس SEM گرافیت فلت قبل (الف) و بعد از اصلاح (ب)



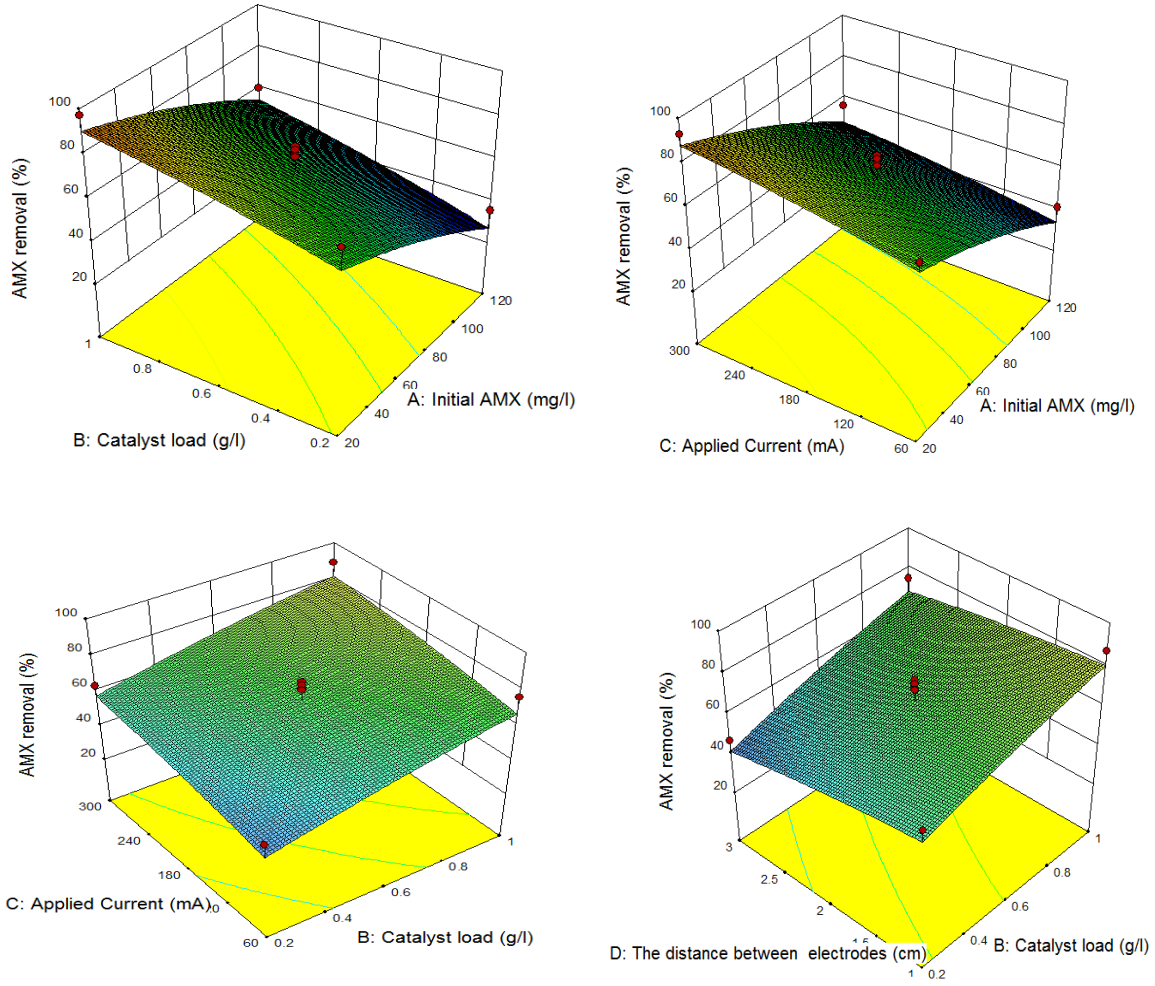
نمودار ۱: میزان H_2O_2 تولیدی قبل و بعد از اصلاح گرافیت فلت

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]



نمودار ۲: تأثیر pH در زمان‌های مختلف واکنش بر روی حذف آموکسی سیلین



نمودار ۳: تأثیر فاکتورهای مختلف در حذف آموکسی سیلین به‌وسیله فرآیند الکتروفنتون

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

طبق نتایج جدول ۲ بیشترین حذف آموکسی سیلین طی فرآیند الکتروفنتون(۹۷/۱۱ درصد) در غلظت اولیه آموکسی سیلین ۲۰ mg/L، غلظت کاتالیست ۱ mg/L، شدت‌جریان mA ۱۸۰، فاصله بین الکترودها ۲ cm اتفاق افتاد. نمودار ۳ تداخل اثرمتغیرهای مختلف را بر میزان حذف آموکسی سیلین نشان می‌دهد. طبق این نمودار با کاهش غلظت اموکسی سیلین، افزایش غلظت کاتالیست (Fe_3O_4)، افزایش شدت جریان و کاهش فاصله بین الکترودها میزان حذف آموکسی سیلین توسط فرآیند الکتروفنتون افزایش یافت. علاوه بر این جدول ۳ نشان می‌دهد که چهار فاکتور مؤثر در حذف آموکسی سیلین دارای اثر قابل‌توجه‌ی هستند، که درای‌ن‌بین بیشترین اثر را غلظت اولیه آموکسی سیلین با سه م ٪ ۵۹/۵ (F=۷۰۵/۵٤) در حذف آن توسط الکتروفنتون دارد.

جدول ۲: حذف آموکسی سیلین توسط الکتروفنتون در شرایط مختلف

آزمایش	غلظت دارو (mg/l)	غلظت کاتالیست (g/l)	شدت‌جریان(mA)	فاصله بین الکترودها(cm)	بازدهی (٪)
۱	۱۲۰	۰/٦	۱۸۰	۱	٥٥/٤٨
۲	۱۲۰	۰/٦	٦۰	۲	٤۱/۳۲
۳	۷۰	۰/۲	۱۸۰	۱	٦٤/۲۳
٤	۱۲۰	۰/٦	۳۰۰	۲	٥٦/۳٦
٥	۲۰	۰/٦	۱۸۰	۱	۹۱/۲۱
٦	۷۰	۱	۳۰۰	۲	۸۹/۲۱
۷	۷۰	۱	۱۸۰	۱	۸۷/۱٥
۸	۷۰	۰/٦	٦۰	۳	٥۳/۹٤
۹	۲۰	۱	۱۸۰	۲	۹۷/۱۱
۱۰	۲۰	۰/٦	۱۸۰	۳	۸٦/۱۱
۱۱	۷۰	۰/٦	۳۰۰	۱	۸۷/۲۱
۱۲	۷۰	۰/۲	٦۰	۲	٤۹/٥٤
۱۳	۱۲۰	۱	۱۸۰	۲	٦۰/۲۹
۱٤	۷۰	۱	٦۰	۲	۷٦/۲
۱٥	۱۲۰	۰/۲	۱۸۰	۲	۳٥/۷۲
۱٦	۷۰	۰/٦	۱۸۰	۲	۷۳/۳۲
۱۸	۷۰	۰/٦	۱۸۰	۲	۷۰/٦
۱۸	۱۲۰	۰/٦	۱۸۰	۳	٤۰/۱۷
۱۹	۷۰	۰/٦	٦۰	۱	۷۰/٦۹
۲۰	۷۰	۰/۲	۱۸۰	۳	٤۷/۱۳
۲۱	۲۰	۰/٦	۳۰۰	۲	۹۳
۲۲	۲۰	۰/۲	۱۸۰	۲	۷۹/۳٤

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

۲۳	۲۰	۰/٦	٦۰	۲	۷٦/۰٦
۲٤	۷۰	۱	۱۸۰	۳	۷۵/۱۸
۲۵	۷۰	۰/۲	۳۰۰	۲	٦۳/٤۵
۲٦	۷۰	۰/٦	۱۸۰	۲	۷۰/۳۸
۲۷	۷۰	۰/٦	۱۸۰	۲	۷۱/۲۸
۲۸	۷۰	۰/٦	۱۸۰	۲	۷۵/۱۸
۲۹	۷۰	۰/٦	۳۰۰	۳	٦۹/۰۸

بحث

آنالیز SEM-EDS در مورد نانو ذرات مگنتیک نشان می دهد که تهیه Fe_3O_4 به روش هم ترسیبی شیمیایی به طور مؤثری انجام‌شده و بیشترین درصد ترکیبات را نانو ذرات Fe_3O_4 (بیش از ٤۸٪) تشکیل می‌دهد. این نتایج با یافته‌های مطالعات Shen و همکاران که بر روی تهیه Fe_3O_4 از طریق روش هم ترسیبی شیمیایی انجام داده‌اند، مطابقت می‌کند[۳٦و۳۷].

جدول ۳: آنالیز واریانس برای مدل درجه دو حذف آموکسی سیلین توسط فرآیند الکتروفنتون

فاکتور- برهمکنش	Sum of squares	DF	Mean squares	F value	Prob>F	Contribution %
مدل	۷۷۰۷/۵٤	۱٤	۵۵۰/۵٤	۸۵/۵۰	<۰/۰۰۰۱	۱۰۰
A: غلظت اولیه دارو (mg/L)	٤۵٤۳/۱۳	۱	٤۵٤۳/۱۳	۷۰۵/۵٤	<۰/۰۰۰۱	۵۹/۵۰
B: غلظت کاتالیست (g/L)	۱۷٦۹/۷۷	۱	۱۷٦۹/۷۷	۲۷٤/۸٤	<۰/۰۰۰۱	۲۳/۱۸
C: شدت‌جریان (mA)	٦۸۳/٤۳	۱	٦۸۳/٤۳	۱۰۳/۱۳	<۰/۰۰۰۱	۸/۹۵
D: فاصله بین الکترودها (cm)	۵۹۳/۰۵	۱	۵۹۳/۰۵	۹۲/۱۰	<۰/۰۰۰۱	۷/۷۷
AB	۱۱/۵٦	۱	۱۱/۵٦	۱/۸۰	۰/۲۰۱٦	۰/۰۰۱
AC	۰/۹۰	۱	۰/۹۰	۰/۱٤	۰/۷۱۳۷	۰/۰۰۰۱
AD	۲٦/۰٦	۱	۲٦/۰٦	٤/۰۵	۰/۰٦۳۹	۰/۰۰۳
BC	۰/۲	۱	۰/۲	۰/۰۳۱	۰/۸٦۱۸	۰
BD	٦/۵۸	۱	٦/۵۸	۱/۰۲	۰/۳۲۹۳	۰/۰۰۰۸
CD	۰/٤۸	۱	۰/٤۸	۰/۰۷٤	۰/۷۸۹۷	۰
A^2	٦۲/٤۹	۱	٦۲/٤۹	۹/۷۱	۰/۰۰۷٦	۰/۰۰۸
Residuals	۹۰/۱۵	۱٤	٦/٤٤			
Lack of fit	۷۳/۳۱	۱۰	۷/۳۳	۱/۷٤	۰/۳۱۲۳	
Pure Error	۱٦/۸٤	٤	٤/۲۱			
core total	۷۷۹۷/٦۹	۲۸				
R-squared	۰/۹۸۸٤					
Adj R-squared	۰/۹۷٦۹					
Pred R-squared	۰/۹٤۲۵					
Adequate precision	۳٤/٦۳۲					

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

طبق نتایج حاصل از شکل ۲ قبل از اصلاح، گرافیت فلت دارای شکل منظم با اندازه‌های یکنواخت بوده، درحالی‌که بعد از اصلاح ذرات به هم پیوسته روی فیبرهای گرافیت فلت مشاهده‌شده که به‌طورکلی تغییر خصوصیات سطح کاتد را نشان می‌دهد. علاوه بر این اصلاح کاتد به ترتیب باعث افزایش ۲ و ۱۲ برابری سطح ویژه و حجم منافذ شده است .. همچنین نتایج حاصل از میزان H_2O_2 تولید ی قبل و بعد از اصلاح گرافیت فلت در نمودار ۱ نشان می‌دهد که با افزایش زمان واکنش و شدت‌جریان میزان تولید H_2O_2 بعد از اصلاح به بیش از ۵ برابر نسبت به گرافیت فلت اصلاح‌نشده می‌رسد . این افزایش H_2O_2 تولیدی در فرآیند الکتروفنتون به دلیل اصلاح گرافیت فلت با پلی تترافلوئورواتیلن و کربن بلک می‌باشد. Yu و همکاران با بررسی اصلاح گرافیت فلت با ماده پلی تترافلوئورواتیلن جهت افزایش تولید الکتروشیمیایی H_2O_2 به این نتیجه رسیدند که حضور این ماده باعث افزایش سایت‌های مؤثر برای انجام واکنش الکتروشیمیایی م ی‌شود [۳۲]. Zhou و همکاران نیز با بررسی روش الکتروفنتون در حذف رنگ متیل رد نشان دادند که کربن بلک به دلیل فعالیت کاتالیتیکی، احیاء اکسیژن را افـزایش داده و این باعث تولید بیشتر H_2O_2 می‌شود [۳۸].

در مطالعه تجزیه آموکسی سیلین، تأثیر pH بر روی کنترل تغییرات آهن و میزان اکسیدان های تولیدی همچون H_2O_2 و رادیکال OH° یک عامل مهم می‌باشد. نتایج حاصل از نمودار ۱ نشان می‌دهد که بازدهی تجزیه آموکسی سیلین به طور قابل‌توجه‌ی با افزایش pH محلول و کاهش زمان تماس کاهش می‌یابد، به‌طوری‌که بالاترین نرخ تجزیه در حالت اسیدی و زمان تماس ۹۰ دقیقه اتفاق م ی‌افتد . ازآنجا یی که تفاوت زمان‌های ۶۰ و ۹۰ دقیقه بسیار چشمگیر نبود از زمان تماس ۶۰ دقیقه برای بهینه‌سازی سایر متغیرها استفاده شد .کاهش بازدهی تجزیه آموکسی سیلین با افزایش pH به دلیل مهار روند همگن فنتون به همراه کاهش غلظت H_2O_2 و غلظت آهن محلول مربوط می‌باشد. علاوه بر این، کاهش مقدار رادیکال هیدروکسیل کاتالیز شده روی سطح Fe_3O_4 و تجزیه خود به خودی H_2O_2 می‌تواند یکی دیگر از فاکتورهای احتمالی در کاهش حذف آموکسی سیلین در pH بالا باشد[۳۹]. افزایش میزان تجزیه آموکسی سیلین در pH اسیدی را م ی‌توان به افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل و H_2O_2 در فرآیند الکتروفنتون مرتبط دانست. He و همکاران بامطالعه نانو ذرات مگنتیک Fe_3O_4 به‌عنوان کاتالیست در فرآیند الکتروفنتون در تجزیه رنگ راکتیو بلو ۱۹ به این نتیجه رسیدند که بیشترین میزان معدنی سازی رنگ در pH برابر ۳ اتفاق می‌افتد[۴۰].

جدول ۳ نشان می دهد که بیشترین حذف آموکسی سیلین(۹۷/۱۱درصد) توسط فرآیند الکتروفنتون در شرایط شدت‌جریان ۱۸۰ mA، غلظت اولیه آموکسی سیلین ۲۰ mg/L، غلظت کاتالیست ۱ g/L و فاصله بین الکترود ۲ cm اتفاق می‌افتد که با یافته‌های George و همکاران مطابقت می کند [۴۱]. همان طور که در جدول ۳ نشان داده‌شده ، ارتباط آماری معنی‌دار بین پارامترها به‌وسیله مقایسه میانگین مربع در برابر خطای آزمایش انجام شد . در این مورد ۵ فاکتور دارای Prob>F کمتر از ۰/۰۵ می‌باشند، که بیانگر ارتباط معناداری این متغیرها در سطح اطمینان ۹۵٪ می‌باشد . مقدار F حاصل در جدول ۳ نشان داد که غلظت اولیه آموکسی سیلین تأثیر قابل‌توجه‌ی در فرآیند الکتروفنتون دارد. از طرفی فاصله بین الکترودها و برهمکنش بین فاکتورها به دلیل داشتن F پایین دارای اثر کم در فرآیند الکتروفنتون می‌باشند . همان طور که انتظار می‌رود، غلظت اولیه آموکسی سیلین (۵۹/۵ ٪) به طور عمده در فرآیند حذف آموکسی سیلین توسط الکتروفنتون مؤثر بوده و به‌عنوان یکی از پارامترهای مهم برا ی تعیین ظرفیت تجزیه آموکسی سیلین از محلول‌های آبی باشد. همان‌گونه که در نمودار ۳ نیز مشاهده می‌شود با افزایش غلظت آموکسی - سیلین از ۲۰ تا ۱۲۰ میلی گرم بر لیتر، کارایی حذف کاهش‌یافته است . کاهش بازده حذف با افزایش غلظت آموکسی‌سیلین را می‌توان این‌گونه تفسیر نمود که در شرایطی که همه پارامترها از قبیل زمان واکنش ، pH، غلظت H_2O_2،

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

غلظت کاتالیزور یکسان هستند، میزان تولید اکسیدکننده ها یی همچون رادیکال هیدروکسیل نیز ثابت است؛ لذا در غلظت‌های بالاتر آموکسی‌سیلین، حذف کامل آلاینده صورت نمی گیرد و این خود سبب کاهش بازده فرآیند می‌گردد[۴۲،۴۳]. در مطالعه‌ای که توسط امرایی و همکاران در خصوص استفاده از روش فنتون در حذف آموکسی‌سیلین صورت گرفت نیز با افزایش غلظت آموکسی‌سیلین راندمان حذف کاهش یافت [۴۴]. ترتیب فاکتورهای در نظر گرفته در تجزیه آموکسی سیلین توسط فرآیند الکتروفنتون بر اساس شدت آن‌ها به‌صورت زیر است:

برهمکنش بین متغیرها < فاصله بین الکترودها < شدت‌جریان < غلظت Fe_3O_4 < غلظت اولیه آموکسی سیلین

بنابراین تجزیه آموکسی سیلین به‌وسیله فرآیند الکتروفنتون را می‌توان به‌صورت معادله ۳ بیان کرد:

$$AMX\ removal=72.15 - 19.46A + 12.14B + 7.55C - 7.03D + 1.7AB - 0.47AC - 2.55AD - 0.23BC + 1.28BD - 0.34CD - 0.34CD \quad (۳)$$

شدت جریان در فرایندهای الکتروشیمیایی ازجمله الکتروفنتون نقش به سزایی دارد و همان طور که در نمودار شماره ۳ مشاهده می‌شود با افزایش شدت‌جریان از ۶۰ به mA ۳۰۰ راندمان حذف آموکسی سیلین افزایش‌یافته است، که دلیل آن افزایش تولید H_2O_2 در محیط است[۲۹]. ازآنجاکه با افزایش شدت جریان میزان انرژی مصرفی نیز افزایش می یابد، شدت‌جریان بهینه برای فرایند از اهمیت ویژه ای برخوردار است لذا استفاده از گرافیت فلت اصلاح‌شده در این مطالعه تا حد زیادی در مصرف انرژی صرفه‌جویی کرده است زیرا میزان تولید H_2O_2 بدون نیاز به هوادهی خارجی چشمگیر می‌باشد[۳۲].

غلظت کاتالیست از دیگر پارامترهای مهم در فرایند الکتروفنتون می‌باشد. همان‌گونه که در نمودار ۳ نیز مشاهده می‌شود با افزایش غلظت کاتالیست از ۰/۲ تا ۱ گرم بر لیتر راندمان حذف آموکسی‌سیلین نیز افزایش می‌یابد که علت این پدیده می تواند افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل در غلظت ها ی بالاتر نانوکاتالیست Fe_3O_4 باشد[۴۵]. Hou و همکاران نیز که از فرایند الکتروفنتون برای حذف کاتکول استفاده کرده‌اند نتایج مشابهی گزارش کرده‌اند، بدین‌صورت که با افزایش غلظت کاتالیست Fe_3O_4 ، بازده حذف کاتکول نیز افزایش می‌یابد [۴۵]. در مطالعه Zha و همکاران نیز از فرایند فنتون برای حذف آموکسی سیلین استفاده شد و با افزایش غلظت کاتالیست آهن صفر ظرفیتی، راندمان حذف افزایش‌یافته است.که علت آن را افزایش محل ها ی فعال و تجزیه بیشتر H_2O_2 و بنابراین افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل معرفی کرده‌اند[۴۶].

فاکتورهای حائز اهمیت دیگر در فرآیند الکتروفنتون فاصله بین الکترودها است. همان‌طور که در نمودار ۳ نشان داده‌شده است با افزایش فاصله راندمان حذف آموکسی سیلین کاهش‌یافته است که علت این امر کاهش تولید H_2O_2 در فاصله‌های بیشتر می‌باشد[۴۷]. به طورکلی افزایش فاصله بین الکترودها در شدت‌جریان ثابت، ولتاژ اولیه را به دلیل افزایش مقاومت بین الکترودها افزایش می‌دهد. درنتیجه رسانایی محلول کم می‌شود و میزان جریان مصرفی کاهش می‌یابد که این کاهش جریان سبب عدم تولید یونهای آهن و رادیکالهای هیدروکسیل می‌گردد[۴۸]. در سایر مطالعات انجام‌شده درزمینه ی استفاده از فرآیندهای الکتروشیمیایی نیز، از تأثیر فاصله بین الکترودها به‌عنوان یک عامل مهم در انجام واکنش‌ها بحث شده است . به‌طور مثال، Heidari و همکاران در کاربرد فرایند الکتروفنتون برای حذف پنتاکلروفنل از محلول‌های آبی به نتیج مشابهی دست یافتند[۴۹].

نتیجه گیری

نانو کاتالیست Fe_3O_4 به‌عنوان یک کاتالیست فعال برای حذف آموکسی سیلین از محلول‌های آبی توسط فرآیند هم ترسیبی شیمیایی فراهم گردید. علاوه بر این، گرافیت فلت به‌عنوان الکترود کاتدی جهت تولید بیشتر H_2O_2 و حذف فرآیند هوادهی خارجی با استفاده از کربن بلک و پلی تترافلوئورواتیلن اصلاح گردید . روش سطح پاسخ (RSM) برای طراحی آزمایش‌ها استفاده شد. در این طراحی فاکتورهای

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

غلظت اولیه آموکسی سیلین، شدت‌جریان، غلظت کاتالیست و فاصله بین الکترودها موردبررسی قرار گرفت . نتایج حاصل نشان داد نانوکاتالیست Fe_3O_4 با غلظت بیش از ٤٨٪ تولیدشده و مشخصات گرافیت فلت همچون سطح ویژه و حجم منافذ بعد از اصلاح با ماده کربن بلک و ترا فلوئورو اتیلن به طور قابل‌توجه‌ی افزایش‌یافته است. علاوه بر این، نتایج حاصل نشان داد که میزان تولید H_2O_2 توسط گرافیت فلت اصلاح‌شده در زمان تماس ۹۰ و شدت‌جریان ۳۰۰ mA به بیش از ۵ برابر گرافیت فلت اصلاح‌نشده می‌رسد. طبق نتایج طراحی سطح پاسخ با افزایش غلظت کاتالیست، افزایش شدت جریان ، کاهش فاصله بین الکترودها و غلظت اولیه آموکسی‌سیلین، میزان بازدهی تجزیه آموکسی سیلین توسط فرآیند الکتروفنتون به طور قابل‌توجه‌ی افزایش می‌یابد. شرایط بهینه بهره‌برداری در فرایند الکتروفنتون جهت دستیابی به حداکثر میزان حذف آموکسی‌سیلین (بیش از ۹۰٪) در pH= ۳ ، زمان ٦٠ دقیقه، شدت جریان ۱۸۰ mA، غلظت دارو ۲۰mg/L، غلظت کاتالیست ۱ g/L و فاصله بین الکترود ۲ cm اتفاق افتاد. فرآیند الکتروفنتون با اصلاح کاتد ضمن افزایش H_2O_2 تولیدی بدون هوادهی خارجی، می‌تواند ازلحاظ اقتصادی مقرون‌به‌صرفه باشد.

سپاسگزاری

این مقاله بخشی از پایان نامه و طرح تحقیقاتی مصوب دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی ایران در سال ۱۳۹٤با عنوان ارزیابی کارایی فرایند الکتروفنتون با استفاده از گرافیت فلت اصلاح شده وکاتالیست Fe_3O_4 در حذف آموکسی سیلین از محلول‌های آبی وبه کد ۲۷۵۵۹می‌باشد که نویسندگان نهایت تقدیر و تشکر را از حمایت های دانشگاه دارند.

References

1. Kümmerer K. Pharmaceuticals in the environment: sources, fate, effects and risks: SSBM; 2008.
2. Kümmerer K. The presence of pharmaceuticals in the environment due to human use–present knowledge and future challenges. J Environ Manage. 2009;90(8):2354-66.
3. Sirés I, Brillas E. Remediation of water pollution caused by pharmaceutical residues based on electrochemical separation and degradation technologies: a review. Environ Int. 2012;40:212-29.
4. Kolpin DW, Furlong ET, Meyer MT, Thurman EM, Zaugg SD, Barber LB, et al. Pharmaceuticals, hormones, and other organic wastewater contaminants in US streams, 1999− 2000: A national reconnaissance. Environ Sci Technol. 2002;36(6):1202-11.
5. Kaur A, Umar A, Kansal SK. Heterogeneous photocatalytic studies of analgesic and non-steroidal anti-inflammatory drugs. Appl Catal A Gen. 2016;510:134-55.
6. Elmolla ES, Chaudhuri M. Comparison of different advanced oxidation processes for treatment of antibiotic aqueous solution. Chem Eng J. 2010;256(1):43-7.
7. Meng L-W, Li X-k, Wang K, Ma K-L, Zhang J. Influence of the amoxicillin concentration on organics removal and microbial community structure in an anaerobic EGSB reactor treating with antibiotic wastewater. Chem Eng J. 2015;274:94-101.
8. Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices–a review. J Environ Manage. 2011;92(10):2304-47.
9. Mohammadi A, Kazemipour M, Ranjbar H, Walker RB, Ansari M. Amoxicillin removal from aqueous media using multi-walled carbon nanotubes. FULLER NANOTUB CAR N. 2015;23(2):165-9.
10. Githinji LJ, Musey MK, Ankumah RO. Evaluation of the fate of ciprofloxacin and amoxicillin in domestic wastewater. Water Air Soil Pollut. 2011;219(1-4):191-201.
11. Choi K-J, Son H-J, Kim S-H. Ionic treatment for removal of sulfonamide and tetracycline classes of antibiotic. Sci Total Environ. 2007;387(1):247-56.
12. Martins AC, Pezoti O, Cazetta AL, Bedin KC, Yamazaki DA, Bandoch GF, et al. Removal of tetracycline by NaOH-activated carbon produced from macadamia nut shells: kinetic and equilibrium studies. Chem Eng J. 2015;260::291-9.
13. Koyuncu I, Arikan OA, Wiesner MR, Rice C. Removal of hormones and antibiotics by nanofiltration membranes. J Memb Sci. 2008;309(1):94-101.
14. Nguyen T-T, Bui X-T, Luu V-P, Nguyen P-D, Guo W, Ngo H-H. Removal of antibiotics in sponge membrane bioreactors treating hospital wastewater: Comparison between hollow fiber and flat sheet membrane systems. Bioresour Technol. 2017.
15. de Souza Santos LV, Meireles AM, Lange LC.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

Degradation of antibiotics norfloxacin by Fenton, UV and UV/H 2 O 2. J Environ Manage. 2015;154:8-12.

16. Zhu L, Santiago-Schübel B, Xiao H, Hollert H, Kueppers S. Electrochemical oxidation of fluoroquinolone antibiotics: Mechanism, residual antibacterial activity and toxicity change. Water Res. 2016;102:52-62.

17. Kim T-H, 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.

18. Yuan F, Hu C, Hu X, Qu J, Yang M. Degradation of selected pharmaceuticals in aqueous solution with UV and UV/H 2 O 2. Water Res. 2009;43(6):1766-74.

19. Munter R. Advanced oxidation processes–current status and prospects. Proc Estonian Acad Sci Chem. 2001;50(2):59-80.

20. Gulkaya I, Surucu GA, Dilek FB. Importance of H 2 O 2/Fe 2+ ratio in Fenton's treatment of a carpet dyeing wastewater. J Hazard Mater. 2006;136(3):763-9.

21. Özcan A, Şahin Y, Koparal AS, Oturan MA. A comparative study on the efficiency of electro-Fenton process in the removal of propham from water. Appl Catal B: Environmental. 2009;89(3):620-6.

22. Pimentel M, Oturan N, Dezotti M, Oturan MA. Phenol degradation by advanced electrochemical oxidation process electro-Fenton using a carbon felt cathode. Applied Catalysis B: Environmental. 2008;83(1):140-9.

23. Zhang H, Zhang D, Zhou J. Removal of COD from landfill leachate by electro-Fenton method. J Hazard Mater. 2006;135(1):106-11.

24. Bocos E, Iglesias O, Pazos M, Sanromán MÁ. Nickel foam a suitable alternative to increase the generation of Fenton's reagents. Process Saf. Environ. Prot.. 2015.

25. Bocos E, González-Romero E, Pazos M, Sanromán MA. Application of electro-Fenton treatment for the elimination of 1-Butyl-3-methylimidazolium triflate from polluted water. Chem Eng J. 2017;318:19-28.

26. Del Río A, Molina J, Bonastre J, Cases F. Influence of electrochemical reduction and oxidation processes on the decolourisation and degradation of CI Reactive Orange 4 solutions. Chemosphere. 2009;75(10):1329-37.

27. LI D, QU J. The progress of catalytic technologies in water purification: A review. Journal of Environmental Sciences. 2009;21(6):713-9.

28. Panizza M, Dirany A, Sirés I, Haidar M, Oturan N, Oturan MA. Complete mineralization of the antibiotic amoxicillin by electro-Fenton with a BDD anode. J Appl Electrochem. 2014;44(12):1327-35.

29. Özc an A, Özcan AA, Demirci Y. Evaluation of mineralization kinetics and pathway of norfloxacin removal from water by electro-Fenton treatment. Chem Eng J. 2016;304:518-26.

30. Yahya MS, Oturan N, El Kacemi K, El Karbane M, Aravindakumar C, Oturan MA. Oxidative degradation study on antimicrobial agent ciprofloxacin by electro-fenton process: Kinetics and oxidation products. Chemosphere. 2014;117:447-54.

31. Yu F, Zhou M, Zhou L, Peng R. A novel electro-Fenton process with H2O2 generation in a rotating disk reactor for organic pollutant degradation. Electrochim Acta. 2014;1(7):320-4.

32. Yu F, Zhou M, Yu X. Cost-effective electro-Fenton using modified graphite felt that dramatically enhanced on H 2 O 2 electro-generation without external aeration. Electrochimica Acta. 2015;163:182-9.

33. Zhang S, Zhao X, Niu H, Shi Y, Cai Y, Jiang G. Superparamagnetic Fe 3 O 4 nanoparticles as 2009;167(1):560-6.

34. Wang J, Zheng S, Shao Y, Liu J, Xu Z, Zhu D. Amino-functionalized Fe 3 O 4@ SiO 2 core–shell magnetic nanomaterial as a novel adsorbent for aqueous heavy metals removal. Journal of Colloid and Interface Science. 2010;349(1):293-9.

35 .Vogel A. Vogel's Textbook of Quantitative Chemical Analysis (Revised by J. Mendham, pp. 920–945) Harlow. England: Prentice Hall. 2000.

36. Shen Y, Tang J, Nie Z, Wang Y, Ren Y, Zuo L. Preparation and application of magnetic Fe 3 O 4 nanoparticles for wastewater purification. Sep. Purif. Technol.. 2009;68(3):312-9.

37. Yuanbi Z, Zumin Q, Huang J. Preparation and Analysis of Fe3O4 Magnetic Nanoparticles Used as Targeted-drug Carriers Supported by the Technology Project of Jiangxi Provincial Education Department and Jiangxi Provincial Science Department. Chin. J. Chem. Eng. 2008;16(3):451-5.

38. Zhou M, Yu Q, Lei L, Barton G. Electro-Fenton method for the removal of methyl red in an efficient electrochemical system. Sep. Purif. Technol.. 2007;57(2);380-7.

39. Jiang H, Sun Y, Feng J, Wang J. Heterogeneous electro-Fenton oxidation of azo dye methyl orange catalyzed by magnetic Fe3O4 nanoparticles. Water Sci Technol. 2016;74(5):1116-26.

40. He Z, Gao C, Qian M, Shi Y, Chen J, Song S. Electro-Fenton process catalyzed by Fe3O4 magnetic nanoparticles for degradation of CI Reactive Blue 19 in aqueous solution: operating conditions, influence, and mechanism. Ind Eng Chem Res. 2014;53(9):3435-47.

41. Jacqueline George S, Gandhimathi R, Nidheesh PV, Ramesh ST. Optimization of salicylic acid removal by electro Fenton process in a continuous stirred tank reactor using response surface methodology. Desalination and Water Treatment. 2016;57(9):4234-44.

42. Samarghandi M, Asgari G, Chavoshi S, Ghavami Z, Mehralipour J. Performance of Catalytic Ozonation by Fe/MgO Nanoparticle for Degradation of Cefazolin from

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

Aqueous Environments. J Mazandaran Univ Med Sci. 2015;25(128):77-90.[in persian].

43. 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):666-72.
44. Amraei B, Rezaei Kalantary R, Jonidi Jafari A, Gholami M. Efficiency of CuFe2O4 Bimetallic in Removing Amoxicillin from Aqueous Solutions. J Mazandaran Univ Med Sci. 2016;27(147):259-75. [in persian].
45. Hou B, Han H, Jia S, Zhuang H, Xu P, Wang D. Heterogeneous electro-Fenton oxidation of catechol catalyzed by nano-Fe 3 O 4: kinetics with the Fermi's equation. J Taiwan Inst Chem Eng. 2015;56:138-47.
46. Zha S, Cheng Y, Gao Y, Chen Z, Megharaj M, Naidu R. Nanoscale zero-valent iron as a catalyst for heterogeneous Fenton oxidation of amoxicillin. Chem Eng J. 2014;255:141-8.
47. Su CC, Pagaling ED, Peralta GL, Lu MC. Comparison of Aniline Degradation by Fenton and Electro-Fenton Reactors Using Plate and Rod Electrodes. Environ Prog Sustain Energy. 2013;32(4):1111-7.
48. Malakootian M, Nabavian M. The study of the performance of electrocoagulation in comparson to electro-fenton processes at decoloration of methylene blue dye from aqeous solutions using Iron electrode. J. Rafsanjan Univ. Med. Sci. 2015.
49. Heidari Z, Motevasel M, Jaafarzadeh NA. Application of Electro-Fenton (EF) Process to the Removal of Pentachlorophenol from Aqueous Solutions. IJOGST. 2015;4(4):76-87.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]

Journal of Environmental Health Engineering, August 2017; Vol. 4, No. 4: 243-256

Degradation of Amoxicillin Using Modified Graphite Felt and Fe_3O_4 Nanocatalyst As Electro-Fenton Process

Masume Rahmatinia[1], Roshanak Rezaei Kalantari[2,3*], Mehdi Farzadkia[2,3], Majid Kermani[3,4]

1- MSc Student in Environmental Health Engineering, School of Public Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
2-Professor, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
3-Research Center for Environmental Health Technology, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
4-Associate Professor, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran

**** E-mail: rezaei.r@iums.ac.ir***

Received: 16 Jun 2017 ; Accepted: 19 Sep 2017

ABSTRACT

Background: Amoxicillin is the most commonly used antibiotics that draws more attractions due to induce bacterial resistance.
This compound can enter the aquatic environment through different routes including sewage and waste disposal of medical health centers, veterinary and industries. The aim of this study was removal of amoxicillin from aqueous environments by Electro-Fenton process using modified graphite felt and synthesized Fe_3O_4 nanoparticles.
Methods: Fe_3O_4 nanoparticles were synthesized by co- precipitation method. Graphite felt also modified due to avoid aeration. The structural and physical characteristics of nanocatalyst and also modified graphite felt were analyzed by SEM, EDS and BET techniques. After optimization of pH and time variables, the parameters of applied current, amoxicillin concentration, catalyst load and the distance between electrodes were designed using Design Expert 7.0 software and optimized by the response surface method.
Results: The graphite felt modification resulted in increase in surface area from 0.89 to 1.92 m^2/g. The maximum removal of amoxicillin (97.11%) was obtained in optimal operational conditions (pH=3, time=60 min, applied current =180 mA, amoxicillin concentration=20 mg/L, catalyst load 1 g/L, the distance between electrodes =2 cm)
Conclusion: The result of this study indicated that electro-Fenton process using Fe_3O_4 nanoparticles and modified Graphite felt without external aeration is an effective method for amoxicillin removal.

Keywords: Amoxicillin**,** Electro-Fenton, modified graphite felt, Fe_3O_4

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-07]

[DOI: 10.18869/acadpub.jehe.4.4.335]