

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

معصومه رحمتی نیا^۱، روشک رضایی کلاتری^{۲*}، مهدی فرزاد کیا^۳، مجید کرمانی^۴

^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

^۴ 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: آموکسی سیلین پرمصرف‌ترین آنتی‌بیوتیکی است که به دلیل ایجاد مقاومت در باکتری‌ها مورد توجه خاصی قرار گرفته است. این ترکیب از مسیرهای مختلفی مانند دفع مستقیم فاصلاب 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 اصلاح شده 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 هواهی، اصلاح شد. مشخصات ساختاری و فیزیکی نانوکاتالیست و گرافیت فلت اصلاح شده با تکنیک‌های EDS، SEM و BET آنالیز شد. بعد از بهینه‌سازی دو متغیر pH و زمان، پارامترهای 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 موثر آن از ۰/۸۹ m^2/g به ۰/۹۲ m^2/g شد. حداقل میزان حذف آموکسی سیلین (۹۷/۱۱ درصد)، در $\text{pH}=۳$ ، زمان ۶۰ دقیقه، شدت جریان ۱۸۰ mA، غلظت آموکسی سیلین ۲۰ mg/L، غلظت کاتالیست ۱ g/L و فاصله بین الکترودها ۲ cm به دست آمد.

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

کلمات کلیدی: آموکسی سیلین، الکتروفنتون، محلول‌های آبی، گرافیت اصلاح شده، Fe_3O_4 .

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

مقدمه

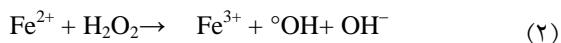
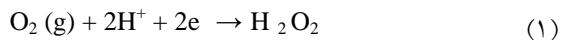
نانوفیلتراسیون^{۱۳}^{۱۴} و فرایندهای اکسیداسیون پیشرفتی از قبیل فنتون و فوتوفنتون^{۱۵}، الکتروشیمیابی^{۱۶}، ازن زنی و تابش الکترونی اشاره کرد.^{۱۷} برای حذف آنتی بیوتیک ها تصفیه بیولوژیکی چندان مؤثر نمی باشد، زیرا آنتی بیوتیک ها باعث حذف میکروارگانیسم های مؤثر در تصفیه می گردد. مطالعات انجام شده نیز نشان می دهد اغلب این آنتی بیوتیک ها غیرقابل تجزیه بیولوژیکی بوده و بدون تعییر و دست نخورده از تصفیه خانه های فاضلاب خارج می شوند.^{۱۰} امروزه از بین فرایندهای حذف آنتی بیوتیک ها فرایندهای اکسیداسیون پیشرفتی برای تصفیه این گونه فاضلاب ها بیشتر استفاده می شود، زیرا این روش ها آلاینده های دارویی را کاملاً حذف می کنند.^{۱۸} فرایندهای اکسیداسیون شیمیابی بوده که با استفاده از گونه های رادیکال گذار همچون رادیکال های آزاد هیدروکسیل (OH°)، پرسولفات وغیره باعث تجزیه انواع آلاینده ها می شود. این رادیکال ها در فرآیند AOPs دارای ویژگی واکنش پذیری بالا و حالت غیرانتخابی بوده و باعث تجزیه آلاینده ها (R) به مواد واسطه با وزن مولکولی پایین یا معدنی سازی آنها می شود.^{۱۹} یکی از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفتی، فرآیند فنتون می باشد که در تصفیه محلول های آبی آلوده به مواد آلی مقاوم یک روش مؤثر می باشد.^{۲۰} واکنشگر فنتون در مقایسه با فرایند الکتروفنتون دارای محدودیت هایی از قبیل حلایت کم H₂O₂، استفاده از مقادیر زیادی معرف شیمیابی، مصرف سریع یون های فروس و تولید لجن هیدروکسید فریک M می باشد، که خود مستلزم هزینه و فرایند اضافی برای جداسازی و دفع لجن، واکنش های مزاحم و راندمان معدنی سازی متوسط است.^{۲۱-۲۳} به منظور غالب شدن بر این محدودیت ها، اصلاحات مختلفی مطرح شده است که یک نمونه ساده آن استفاده از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفتی الکتروشیمیابی (EAOPs) و از

در جهان امروز با توسعه روزافزوون صنایع توجیهی به پیامدهای زیست محیطی آنها نمی شود و تنها بعد اقتصادی آنها مدنظر است. به موازات آن معضلاتی نظیر تولید فاضلاب ها و پسماندها، ایجاد آلودگی هوا، خاک و ... از جمله مواردی است که انسان همواره با آن مواجه بوده است.^۱ امروزه از بین آلاینده های متنوع آبی در سرتاسر دنیا داروها به عنوان آلاینده های بالقوه منابع آبی شناخته می شوند و با قرار گرفتن در دسته آلاینده های نوظهور باعث ایجاد نگرانی هایی شده اند^۲.

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 به مرور زمان ممکن است باعث ایجاد مقاومت در جمعیت های باکتریایی شده و آنتی بیوتیک ها را در درمان بیماری های مختلف بی اثر سازند.^۷ بیش از ۶۵ درصد از آنتی بیوتیک های مصرفی در جهان مربوط به آنتی بیوتیک های گروه β- لاکتام می باشد که آموکسی سیلین نیز متعلق به همین دسته است.^۸ آموکسی سیلین آنتی بیوتیک وسیع الیاف β- لاکتام (فرمول شیمیابی: C₁₆H₁₉N₃O₅S₃) با وزن مولکولی ۳۶۵/۴۱ گرم بر مول متعلق به گروه پنی سیلین ها می باشد که در پزشکی و دامپزشکی برای درمان عفونت های باکتریایی معددهای - رودهای و سیستماتیک استفاده می شود.^۹ آنتی بیوتیک های این گروه در آب های سطحی ۴۸ نانو گرم در لیتر و غلظت آموکسی سیلین در فاضلاب های بیمارستانی در محدوده بین ۸۲/۷ تا ۲۸ میلی گرم در لیتر گزارش شده است.^{۱۰} جهت حذف آنتی بیوتیک ها از منابع آبی از فرایندهای متعددی استفاده شده اند که از آن جمله می توان به فرایندهای تبادل یون^{۱۱}، جذب با کربن فعال^{۱۲}، فرایندهای غشایی مثل اسمز معکوس و

میان آن‌ها فرآیند الکترو-فتتون می‌باشد.^{۲۴}

مکانیسم واکنش‌هایی که در فرایند الکترو-فتتون رخ می‌دهد به صورت زیر می‌باشد:^{۲۵}



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 فتوتون بر اساس رابطه ۲ تولید می‌شود. Fe^{2+} نیز از کاهش Fe^{3+} در سطح کاتد دوباره بازسازی می‌شود.^{۲۶} به طورکلای از مزایای این فرآیند می‌توان به تجزیه بالای مواد آلاینده با حداقل مدیریت منابع انرژی، کترل آسان بر روی فرآیند الکتروشیمیایی، دقت بالا و همچنین اندازه کوچک راکتور، مساحت کم زمین موردنیاز و سهولت اجرا اشاره کرد.^{۲۷ و ۲۸} Panizza و همکاران در سال ۲۰۱۴ عملکرد فرآیند الکترو-فتتون 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 ۲۰۱۶ با استفاده از فرایند الکترو-فتتون به بررسی معدنی سازی و کینتیک تجزیه آنتی‌بیوتیک نورفلوکسازین پرداختند. نتایج این تحقیق راندمان معدنی سازی بالایی (۹۷/۷ درصد) را طی مدت زمان ۵ ساعت نشان داد.^{۲۹} Yahya و همکاران در سال ۲۰۱۴ به بررسی تجزیه سپیروفلوکسازین با استفاده از فرایند الکترو-فتتون پرداختند. نتایج نشان‌دهنده راندمان قابل توجه بالای ۹۴ درصد طی مدت زمان ۶ ساعت بود.^{۳۰} از جمله معايب فرایندهای معمول الکترو-فتتون نیاز به هوادهی است تا اکسیژن موردنیاز در کاتد را برای تولید بیشتر H_2O_2 فراهم گردد، با این وجود راندمان بهره‌وری از اکسیژن در این فرایندها بسیار پایین بوده و حتی کمتر از ۱/۰ درصد است.^{۳۱} بنابراین در این تحقیق به منظور

مواد و روش‌ها

مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی - آزمایشگاهی بوده که در آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشگاه بهداشت دانشگاه علوم پزشکی ایران انجام گرفت. به منظور مطالعه فرآیند الکترو-فتتون از یک سل استوانه ای به حجم ۲۵۰ ملی‌لتر استفاده شد. الکترود آند پلاتین ($2 \times 1 \text{ cm}$) در مرکز سل به‌وسیله الکترود کاتد ($9 \times 9 \text{ cm}$) احاطه شده 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 با ضخامت $3/2$ میلی‌متر (

محلول کربنی غوطه‌ور گردیده و سپس به ترتیب در اون به مدت ۲۴ ساعت و به مدت یک ساعت در کوره در دمای ۳۶۰ درجه سلسیوس جهت خشک شدن گذاشته شد.^{۳۲}

آزمایش‌های الکتروفنتون

ابتدا محلول mg/L ۱۰۰۰ از آلاینده موردنبررسی به وسیله حل کردن مقدار مناسبی از آموکسی سیلین ($\text{C}_{16}\text{H}_{19}\text{N}_3\text{O}_5\text{S}$) خالص خریداری شده از سیگما آldrیچ در آب دی‌یونیزه تهیه شد. در این مطالعه ابتدا برای بررسی تأثیر، pH اولیه و زمان با ثابت نگه‌داشتن دیگر فاکتورها آزمایش‌های الکتروفنتون در شرایط غلظت اولیه آموکسی سیلین ۷۰ ملی‌گرم بر لیتر، شدت جریان ۱۸۰ ملی‌آمپر، دوز کاتالیست ۶/۰ گرم بر لیتر و فاصله بین الکترودها ۲ سانتی‌متر انجام گردید. پس از تعیین pH و زمان بهینه، برای تعیین تأثیر فاکتورهای دوز نانوذره، شدت جریان، غلظت اولیه آموکسی سیلین و فاصله بین الکترودها بر روی حذف آموکسی سیلین، طراحی آزمایش‌ها با روش Box- Behnken توسط نرم‌افزار Design Expert انجام گردید (جدول ۱). سدیم سولفات (Na_2SO_4) ۰/۰۵ مولار به عنوان الکترولیت حامی در فرآیند الکتروفنتون مورداستفاده قرار گرفت.^{۳۹} پس از قرار دادن الکترودهای موردنظر در راکتور جهت اعمال شدت جریان موردنظر هر آزمایش، از طریق فاکتورهای رابط، الکترود آند به قطب مثبت منبع تغذیه و الکترود کاتد به قطب منفی آن متصل گردید. آزمایش‌ها بر حسب زمان هر آزمایش، نمونه‌های موردنظر به وسیله فیلتری از جنس پلی ترافلورواتیلن (۰/۴۵ میکرومتر) صاف شده و جهت آنالیز توسط دستگاه HPLC در طول موج 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 به صورت pH_{in} و pH_{out} به وسیله دستگاه pH متر ثبت گردید. مقدار آموکسی سیلین تجزی شده توسط رابطه زیر محاسبه گردید:

مقدار کربن ۹۹٪، مقدار خاکستر کمتر از ۰/۰۸ و دانسیته ۰/۰۸ گرم بر مترمکعب) به عنوان 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 آزادسازی 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 $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ با ۴ گرم از ترکیب $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ در ۵۰ ملی‌لتر اسید کلریدریک ۰/۵ نرمال حل شد. به طور هم زمان ۸۰ ملی‌لتر محلول ۱/۵ مولار هیدرکسید سدیم در دمای ۵۰ درجه سلسیوس به صورت قطره‌ای تحت جریان نیتروژن اضافه گردید. بعد از گذشت ۶۰ دقیقه، نانو ذرات سنتز شده به وسیله مگنت جداسازی شده و چندین بار با آب مقطر تا رسیدن به pH خنثی شستشو داده شده و سپس تحت شرایط خلا خشک گردید.^{۳۴} بعد از تهیه نانو ذرات، مشخصات فیزیکی و ساختاری این نانو ذرات با استفاده از روش‌های استاندارد میکروسکوپ الکترونی SEM-EDS مشخص گردید.

اصلاح الکترود کاتد گرافیتی

گرافیت فلت به ترتیب با استن و آب دی‌یونیزه به مدت نیم ساعت شستشو داده شده و سپس در دمای ۱۵۰ درجه سلسیوس به مدت ۲۴ ساعت در اون خشک گردید. سپس مقدار مناسبی از کربن بلک (۱/۲ گرم)، پلی ترافلوئر واتیلن (۶ گرم)، آب مقطر (۵۰ ملی‌لتر) و n-بوتanol (۳ درصد) توسط همزن با یکدیگر مخلوط شدند. این جوهر کربنی به جهت دیپرس شدن مناسب به مدت نیم ساعت در حمام اولتراسونیک گذاشته شد. درنهایت گرافیت فلت خشک شده در

می‌دهد. طبق این شکل بیشترین درصد این ترکیبات را نانو ذرات مگنتیک Fe_3O_4 ($< 48\%$) 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 $1/92 \text{ m}^2/\text{g}$ ، $0/82 \text{ m}^2/\text{g}$ ، $0/003 \text{ cm}^3/\text{g}$ ، به $0/036 \text{ cm}^3/\text{g}$ بعد از فرآیند اصلاح افزایش یافته است. تأثیر فرآیند اصلاح روی میزان تولید H_2O_2 توسط گرافیت فلت (کترود کاتد) در نمودار ۱ نشان داد که میزان H_2O_2 تولیدی در شرایط $\text{pH}=3$ ، شدت جریان 300 mA و زمان واکنش 90 min دقیقه، 38 mg/L بود که بعد از اصلاح گرافیت فلت به $197/6 \text{ mg/L}$ افزایش یافت. نمودار ۲ تأثیر pH در زمان واکنش های مختلف در حذف آموکسی سیلین به وسیله فرآیند الکتروفتون را نشان می‌دهد. طبق این نمودار با کاهش pH و افزایش زمان واکنش میزان حذف آموکسی سیلین افزایش می‌یابد. از آنجایی که تفاوت زمان‌های 60 و 90 دقیقه چشمگیر نبود از زمان تماس 60 دقیقه برای بهینه‌سازی سایر متغیرها در نرم‌افزار Design Expert استفاده گردید.

$$X = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100 \quad (2)$$

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

آنالیز نمونه‌ها

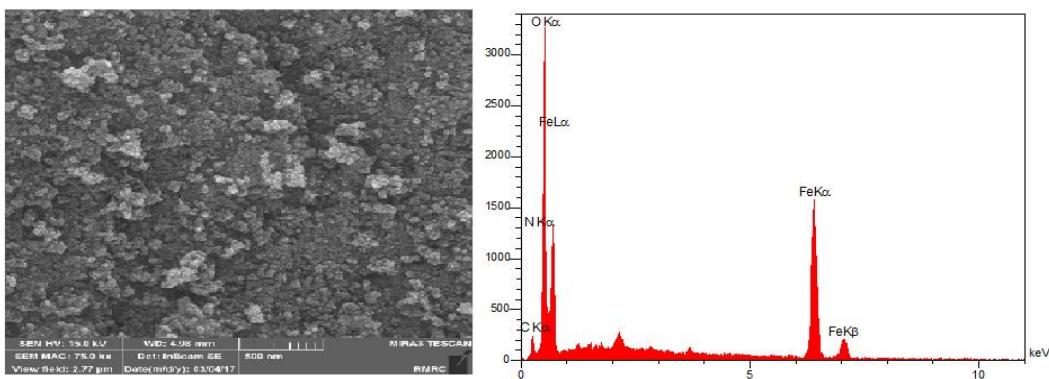
جهت سنجش غلظت آموکسی سیلین از یک دستگاه C18 (CE4200-cecil, England) HPLC مجهز به ستون $4/6 \text{ mm} \times 5 \mu\text{m}$ استفاده گردید. دتکتور مورداستفاده در این مطالعه از نوع UV-visible در طول موج 235 nm جهت شناسایی پیک آموکسی سیلین مورداستفاده قرار گرفت. فاز متحرک A و B به ترتیب آب مقطر و متانول بود. دبی دستگاه 1 mL/min و حجم تزریق نمونه $20 \mu\text{L}$ بود. غلظت H_2O_2 تولیدی در فرآیند الکتروفتون به وسیله روش یلومتری و با استفاده از ماده پتاسیم یدید تعیین گردید.^{۳۵}

لطفه‌ها

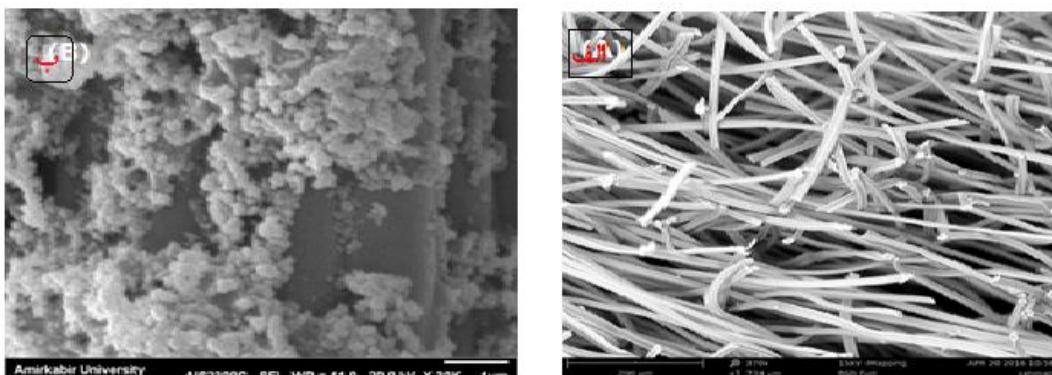
شکل ۱ تصویر SEM-EDS نانو ذرات مگنتیک را نشان

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

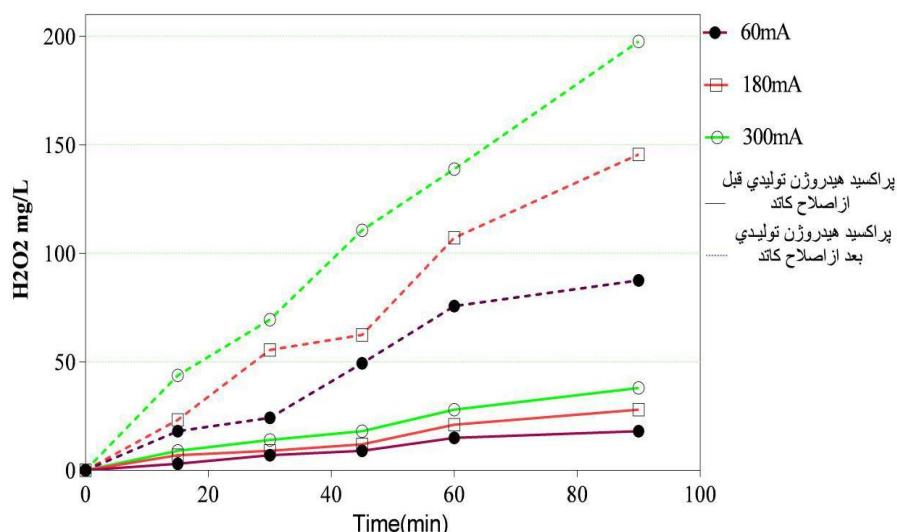
فاکتورها	اسم متغیرها	سطح پایین	متوسط	سطح بالا
A	غلظت اولیه دارو (mg/L)	۲۰	۷۰	۱۲۰
B	دوز کاتالیست (g/L)	۰/۲	۰/۶	۱
C	دانستیه جریان (mA)	۶۰	۱۸۰	۳۰۰
D	فاصله بین الکترودها (cm)	۱	۲	۳



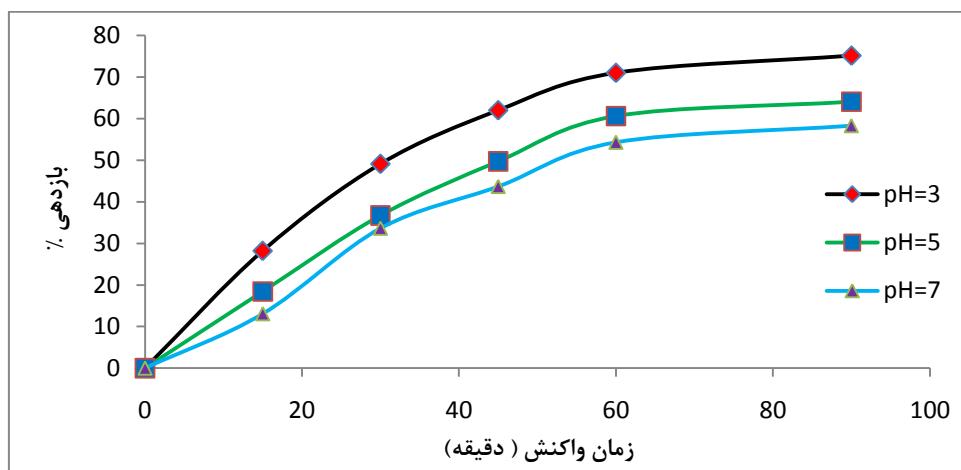
شکل ۱: عکس SEM-EDS نانو ذرات مغنتیک ستز شده



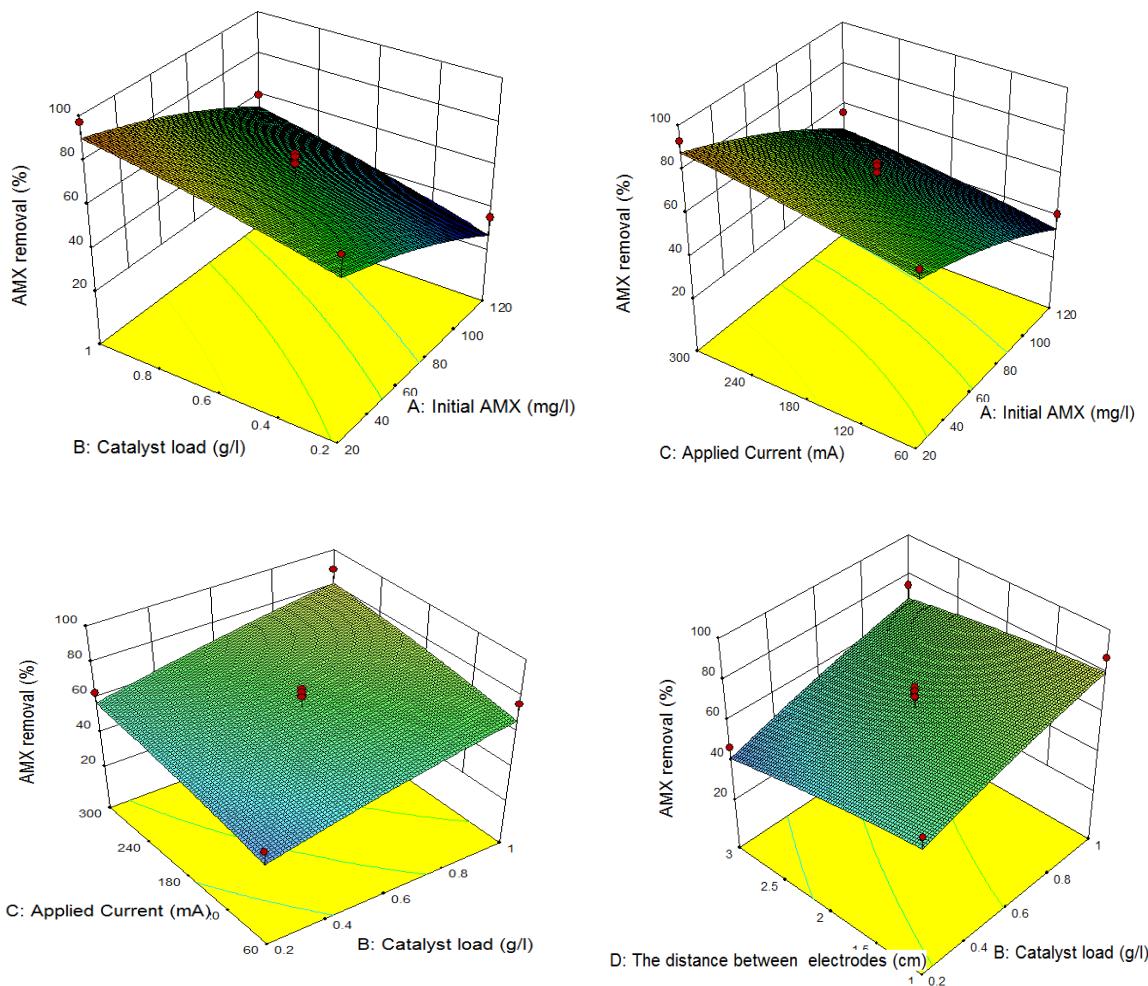
شکل ۲: عکس SEM گرافیت فلت قبل (الف) و بعد از اصلاح (ب)



نمودار ۳: میزان H_2O_2 تولیدی قبل و بعد از اصلاح گرافیت فلت



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



نمودار ۳: تأثیر فاکتورهای مختلف در حذف آموکسی سیلین به وسیله فرآیند الکتروفتون

توسط فرآیند الکترووفنتون افزایش یافت. علاوه بر این جدول ۳ نشان می‌دهد که چهار فاکتور مؤثر در حذف آموکسی سیلین دارای اثر قابل توجهی هستند، که در این بین بیشترین اثر را غلظت اولیه آموکسی سیلین با سه $59/5 = 54$ در حذف آن توسط الکترووفنتون دارد.

طبق نتایج جدول ۲ بیشترین حذف آموکسی سیلین طی فرآیند الکترووفنتون (۹۷/۱۱ درصد) در غلظت اولیه آموکسی سیلین 20 mg/L ، غلظت کاتالیست 1 mA ، شدت جریان 180 cm ، فاصله بین الکتروودها 2 cm اتفاق افتاد. نمودار ۳ تداخل اثر متغیرهای مختلف را بر میزان حذف آموکسی سیلین نشان می‌دهد. طبق این نمودار با کاهش غلظت آموکسی سیلین، افزایش غلظت کاتالیست (Fe_3O_4) ، افزایش شدت جریان و کاهش فاصله بین الکتروودها میزان حذف آموکسی سیلین

جدول ۴: حذف آموکسی سیلین توسط الکترووفنتون در شرایط مختلف

آزمایش	غلظت دارو (mg/l)	غلظت کاتالیست (g/l)	شدت جریان (mA)	فاصله بین الکتروودها (cm)	بازدهی (%)
۱	۱۲۰	۰/۶	۱۸۰	۱	۵۵/۴۸
۲	۱۲۰	۰/۶	۶۰	۲	۴۱/۳۲
۳	۷۰	۰/۲	۱۸۰	۱	۶۴/۲۳
۴	۱۲۰	۰/۶	۳۰۰	۲	۵۶/۳۶
۵	۲۰	۰/۶	۱۸۰	۱	۹۱/۲۱
۶	۷۰	۱	۳۰۰	۲	۸۹/۲۱
۷	۷۰	۱	۱۸۰	۱	۸۷/۱۵
۸	۷۰	۰/۶	۶۰	۳	۵۳/۹۴
۹	۲۰	۱	۱۸۰	۲	۹۷/۱۱
۱۰	۲۰	۰/۶	۱۸۰	۳	۸۷/۱۱
۱۱	۷۰	۰/۶	۳۰۰	۱	۸۷/۲۱
۱۲	۷۰	۰/۲	۶۰	۲	۴۹/۵۴
۱۳	۱۲۰	۱	۱۸۰	۲	۶۰/۲۹
۱۴	۷۰	۱	۶۰	۲	۷۶/۲
۱۵	۱۲۰	۰/۲	۱۸۰	۲	۳۵/۷۲
۱۶	۷۰	۰/۶	۱۸۰	۲	۷۳/۳۲
۱۷	۷۰	۰/۶	۱۸۰	۲	۷۰/۶
۱۸	۱۲۰	۰/۶	۱۸۰	۳	۴۰/۱۷
۱۹	۷۰	۰/۶	۶۰	۱	۷۰/۶۹
۲۰	۷۰	۰/۲	۱۸۰	۳	۴۷/۱۳
۲۱	۲۰	۰/۶	۳۰۰	۲	۹۳
۲۲	۲۰	۰/۲	۱۸۰	۲	۷۹/۳۴

۷۶/۰۶	۲	۶۰	۰/۶	۲۰	۲۳
۷۵/۱۸	۳	۱۸۰	۱	۷۰	۲۴
۶۳/۴۵	۲	۳۰۰	۰/۲	۷۰	۲۵
۷۰/۳۸	۲	۱۸۰	۰/۶	۷۰	۲۶
۷۱/۲۸	۲	۱۸۰	۰/۶	۷۰	۲۷
۷۵/۱۸	۲	۱۸۰	۰/۶	۷۰	۲۸
۶۹/۰۸	۳	۳۰۰	۰/۶	۷۰	۲۹

بیش از ۴۸٪ 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.^{۳۷,۳۶}

بحث
آنالیز SEM-EDS در مورد نانو ذرات مگنتیک نشان می‌دهد که تهیه Fe_3O_4 به روش هم ترسیبی شیمیایی به طور مؤثری انجام‌شده و بیشترین درصد ترکیبات را نانو ذرات (Fe_3O_4)

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

Contribution %	Prob>F	F value	Mean squares	DF	Sum of squares	فاکتور-برهمکنش
۱۰۰	<0.0001	۸۵/۵۰	۵۵۰/۵۴	۱۴	۷۷۰۷/۵۴	مدل
۵۹/۵۰	<0.0001	۷۰۵/۵۴	۴۵۴۳/۱۳	۱	۴۵۴۳/۱۳	A: غلظت اولیه دارو (mg/L)
۲۳/۱۸	<0.0001	۲۷۴/۸۴	۱۷۶۹/۷۷	۱	۱۷۶۹/۷۷	B: غلظت کاتالیست (g/L)
۸/۹۵	<0.0001	۱۰۳/۱۳	۶۸۳/۴۳	۱	۶۸۳/۴۳	C: شدت جریان (mA)
۷/۷۷	<0.0001	۹۲/۱۰	۵۹۳/۰۵	۱	۵۹۳/۰۵	D: فاصله بین الکترودها (cm)
۰/۰۰۱	۰/۲۰۱۶	۱/۸۰	۱۱/۰۶	۱	۱۱/۰۶	AB
۰/۰۰۰۱	۰/۷۱۳۷	۰/۱۴	۰/۹۰	۱	۰/۹۰	AC
۰/۰۰۰۳	۰/۰۶۳۹	۴/۰۵	۲۳/۰۶	۱	۲۳/۰۶	AD
۰	۰/۸۶۱۸	۰/۰۳۱	۰/۲	۱	۰/۲	BC
۰/۰۰۰۸	۰/۳۲۹۳	۱/۰۲	۶/۵۸	۱	۶/۵۸	BD
۰	۰/۷۸۹۷	۰/۰۷۴	۰/۴۸	۱	۰/۴۸	CD
۰/۰۰۰۸	۰/۰۰۷۶	۹/۷۱	۶۲/۴۹	۱	۶۲/۴۹	A^2
			۶/۴۴	۱۴	۹۰/۱۵	Residuals
	۰/۳۱۲۳	۱/۷۴	۷/۳۳	۱۰	۷۳/۳۱	Lack of fit
			۴/۲۱	۴	۱۶/۸۴	Pure Error
				۲۸	۷۷۹۷/۶۹	core total
					۰/۹۸۸۴	R-squared
					۰/۹۷۶۹	Adj R-squared
					۰/۹۴۲۵	Pred R-squared
					۳۴/۶۳۲	Adequate precision

هیدروکسیل کاتالیتی 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 می‌توان به افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل و H_2O_2 در فرآیند الکتروفنتون مرتبط دانست. He و همکاران بامطالعه نانو ذرات مغنتیک Fe_3O_4 به عنوان کاتالیست در فرآیند الکتروفنتون در تجزیه رنگ راکتیو بلو ۱۹ به این نتیجه رسیدند که بیشترین میزانمعدنی سازی رنگ در pH برابر ۳ اتفاق می‌افتد.^{۴۰}

جدول ۳ نشان می‌دهد که بیشترین حذف آموکسی

سیلین (۱۱/۹۷ درصد) توسط فرآیند الکتروفنتون در شرایط شدت جریان 180 mA ، غلظت اولیه آموکسی سیلین 20 mg/L ، غلظت کاتالیست 1 g/L و فاصله بین الکترود 2 cm اتفاق می‌افتد که با یافته‌های George و همکاران مطابقت می‌کند.^{۴۱} همان طور که در جدول ۳ نشان داده شده، ارتباط آماری معربی دار بین پارامترها به وسیله مقایسه میانگین مرربع در برابر خطای آزمایش انجام شد. در این مورد ۵ فاکتور دارای Prob>F کمتر از 0.05% می‌باشد، که بیانگر ارتباط معناداری این متغیرها در سطح اطمینان 95% می‌باشد. مقدار F حاصل در جدول ۳ نشان داد که غلظت اولیه آموکسی سیلین تأثیر قابل توجهی در فرآیند الکتروفنتون دارد. از طرفی فاصله بین الکترودها و برهمکنش بین فاکتورها به دلیل داشتن F پایین دارای اثر کم در فرآیند الکتروفنتون می‌باشد. همان‌طور که انتظار می‌رود، غلظت اولیه آموکسی سیلین ($59/5\% \text{ of } 59/5$) به طور عمده در فرآیند حذف آموکسی سیلین توسط الکتروفنتون مؤثر بوده و به عنوان یکی از پارامترهای مهم برای تعیین ظرفیت تجزیه آموکسی سیلین از محلول‌های آبی باشد. همان‌گونه که در نمودار ۳ نیز مشاهده می‌شود با افزایش غلظت آموکسی - سیلین از 20 تا $120 \text{ میلی گرم بر لیتر}$ ، کارایی حذف کاهش یافته است. کاهش بازده حذف با افزایش غلظت آموکسی سیلین را می‌توان این‌گونه تفسیر نمود که در شرایطی که همه پارامترها از قبیل زمان واکنش، pH، غلظت H_2O_2

طبق نتایج حاصل از شکل ۲ قبل از اصلاح، گرافیت فلت دارای شکل منظم با اندازه‌های یکنواخت بوده، درحالی که بعد از اصلاح ذرات به هم پیوسته روی فیبرهای گرافیت فلت مشاهده شده که به طور کلی تغییر خصوصیات سطح کاتد را نشان می‌دهد. علاوه بر این اصلاح کاتد به ترتیب باعث افزایش ۲ و 12 برابری سطح ویژه و حجم منافذ شده است. همچنین نتایج حاصل از میزان H_2O_2 تولیدی قبل و بعد از اصلاح گرافیت فلت در نمودار ۱ نشان می‌دهد که با افزایش زمان واکنش و شدت جریان میزان تولید H_2O_2 بعد از اصلاح به بیش از 5 برابر نسبت به گرافیت فلت اصلاح نشده می‌رسد. این افزایش H_2O_2 تولیدی در فرآیند الکتروفنتون به دلیل اصلاح گرافیت فلت با پلی تترافلوئورواتیلن و کربن بلک 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 سایه‌های مؤثر برای انجام واکنش الکتروشیمیایی می‌شود.^{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 افزایش 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 اکسیدان‌های تولیدی همچون H_2O_2 و رادیکال OH^\bullet یک عامل مهم می‌باشد. نتایج حاصل از نمودار ۱ نشان می‌دهد که بازدهی تجزیه آموکسی سیلین به طور قابل توجهی با افزایش pH محلول و کاهش زمان تماس کاهش می‌کند، به طوری که بالاترین نرخ تجزیه در حالت اسیدی و زمان تماس 90 دقیقه اتفاق می‌افتد. از آنجا یعنی که تفاوت زمان‌های 60 و 90 دقیقه بسیار چشمگیر نبود از زمان تماس 60 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

استفاده کرده‌اند نتایج مشابهی گزارش کرده‌اند، بدین صورت که با افزایش غلظت کاتالیست Fe_3O_4 ، بازده حذف کاتکول نیز افزایش می‌یابد^۵. در مطالعه Zha و همکاران نیز از فرایند فتوتون برای حذف آموکسی سیلین استفاده شد و با افزایش غلظت کاتالیست آهن صفر ظرفیتی، راندمان حذف افزایش بافته است. که علت آن را افزایش محله‌ها فعال و تجزیه بیشتر H_2O_2 و بنابراین افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل معرفی کرده‌اند.^۶

فاکتورهای حائز اهمیت دیگر در فرایند الکتروفتون فاصله بین الکتروودها است. همان‌طور که در نمودار ۳ نشان داده شده است با افزایش فاصله راندمان حذف آموکسی سیلین کاهش یافته است که علت این امر کاهش تولید H_2O_2 در فاصله‌های بیشتر می‌باشد^۷. به طور کلی افزایش فاصله بین الکتروودها در شدت جریان ثابت، ولتاژ اولیه را به دلیل افزایش مقاومت بین الکتروودها 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^۸. در سایر مطالعات انجام شده درزمنهایی استفاده از فرایندهای الکتروشیمیایی نیز، از تأثیر فاصله بین الکتروودها به عنوان یک عامل مهم در انجام واکنش‌ها بحث شده است. به طور مثال، Heidari و همکاران در کاربرد فرایند الکتروفتون برای حذف پتاكلروفنل از محلول‌های آبی به نتیج مشابهی دست یافته‌اند.^۹

نتیجه‌گیری

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

غلظت کاتالیزور یکسان هستند، میزان تولید اکسیدکننده‌ها یی همچون رادیکال هیدروکسیل نیز ثابت است؛ لذا در غلظت‌های بالاتر آموکسی سیلین، حذف کامل آلاینده صورت نمی‌گیرد و این خود سبب کاهش بازده فرایند می‌گردد^{۱۰}. در مطالعه‌ای که توسط امایی و همکاران در خصوص استفاده از روش فتوتون در حذف آموکسی سیلین صورت گرفت نیز با افزایش غلظت آموکسی سیلین راندمان حذف کاهش یافت.^{۱۱} ترتیب فاکتورهای در نظر گرفته در تجزیه آموکسی سیلین توسط فرایند الکتروفتون بر اساس شدت آن‌ها به صورت زیر است: $\text{Fe}_3\text{O}_4 > \text{غله} > \text{شدت جریان} > \text{بنابراین تجزیه آموکسی سیلین به وسیله فرایند الکتروفتون را می‌توان به صورت معادله ۳ بیان کرد:$

$$\text{AMX removal} = 72.15 - 19.46A + 12.14B + 7.55C - 7.03D + 1.7AB - 0.47AC - 2.55AD - 0.23BC + 1.28BD - 0.34CD - 0.34CD \quad (3)$$

شدت جریان در فرایندهای الکتروشیمیایی از جمله الکتروفتون نقش به سزاگی دارد و همان‌طور که در نمودار شماره ۳ مشاهده می‌شود با افزایش شدت جریان از ۶۰ به mA ۳۰۰ راندمان حذف آموکسی سیلین افزایش یافته است، که دلیل آن افزایش تولید H_2O_2 در محیط است.^{۱۲} از آنجاکه با افزایش شدت جریان میزان انرژی مصرفی نیز افزایش می‌یابد، شدت جریان بهینه برای فرایند از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است لذا استفاده از گرافیت فلت اصلاح شده 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.^{۱۳}

غلظت کاتالیست از دیگر پارامترهای مهم در فرایند الکتروفتون می‌باشد. همان‌گونه که در نمودار ۳ نیز مشاهده می‌شود با افزایش غلظت کاتالیست از ۰/۲ تا ۱ گرم بر لیتر راندمان حذف آموکسی سیلین نیز افزایش می‌یابد که علت این پدیده می‌تواند افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل در غلظت‌های بالاتر نانوکاتالیست Fe_3O_4 باشد.^{۱۴} و همکاران نیز که از فرایند الکتروفتون برای حذف کاتکول

شدت جریان 180 mA ، غلظت دارو 20 mg/L ، غلظت کاتالیست 1 g/L و فاصله بین الکترود 2 cm اتفاق افتاد. فرآیند الکترووفتون با اصلاح کاتد ضمن افزایش H_2O_2 تولیدی بدون هواده خارجی، می‌تواند از لحاظ اقتصادی مغرون به صرفه باشد.

سپاسگزاری

این مقاله بخشی از پایان نامه و طرح تحقیقاتی مصوب دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی ایران در سال ۱۳۹۴ با عنوان ارزیابی کارایی فرآیند الکترووفتون با استفاده از گرافیت فلت اصلاح شده و کاتالیست Fe_3O_4 در حذف آموکسی سیلین از محلول‌های آبی و به کد ۲۷۵۵۹ می‌باشد که نویسنده‌گان نهایت تقدیر و تشکر را از حمایت‌های دانشگاه دارند.

غلظت اولیه آموکسی سیلین، شدت جریان، غلظت کاتالیست و فاصله بین الکترودها مورد بررسی قرار گرفت. نتایج حاصل نشان داد نانو کاتالیست Fe_3O_4 با غلظت بیش از 48% تولید شده و مشخصات گرافیت فلت همچون سطح ویژه و حجم منافذ بعد از اصلاح با ماده کربن بلک و ترافلوئورو اتیلن به طور قابل توجهی افزایش یافته است. علاوه بر این، نتایج حاصل نشان داد که میزان تولید H_2O_2 توسط گرافیت فلت اصلاح شده در زمان تماس 90 و شدت جریان 300 mA به بیش از 5 برابر گرافیت فلت اصلاح نشده می‌رسد. طبق نتایج طراحی سطح پاسخ با افزایش غلظت کاتالیست، افزایش شدت جریان، کاهش فاصله بین الکترودها و غلظت اولیه آموکسی سیلین، میزان بازدهی تجزیه آموکسی سیلین توسط فرآیند الکترووفتون قابل توجهی افزایش می‌یابد. شرایط بهینه بهره‌برداری در فرآیند الکترووفتون جهت دستیابی به حداقل میزان حذف آموکسی سیلین (بیش از 90%) در 3 دقیقه، $\text{pH}=6$ ، زمان 60 دقیقه،

References

- Kümmerer K. Pharmaceuticals in the environment: sources, fate, effects and risks: SSBM; 2008.
- 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.
- 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.
- 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.
- 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.
- Elmolla ES, Chaudhuri M. Comparison of different advanced oxidation processes for treatment of antibiotic aqueous solution. *Chem Eng J*. 2010;256(1):43-7.
- 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.
- Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices—a review. *J Environ Manage*. 2011;92(10):2304-47.
- 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.
- 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.
- 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.
- 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.
- Koyuncu I, Arıkan OA, Wiesner MR, Rice C. Removal of hormones and antibiotics by nanofiltration membranes. *J Memb Sci*. 2008;309(1):94-101.
- 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.
- de Souza Santos LV, Meireles AM, Lange LC.

- Degradation of antibiotics norfloxacin by Fenton, UV and UV/H₂O₂. *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/H₂O₂. *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 H₂O₂/Fe²⁺ 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 prophan 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 decolorisation 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. Özcan 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 H₂O₂ 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 Fe₃O₄ nanoparticles as 2009;167(1):560-6.
34. Wang J, Zheng S, Shao Y, Liu J, Xu Z, Zhu D. Amino-functionalized Fe₃O₄@SiO₂ 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 Fe₃O₄ 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

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

- 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-Fe₃O₄: 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 comparison to electro-fenton processes at decoloration of methylene blue dye from aqueous 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.

Degradation of Amoxicillin Using Modified Graphite Felt and Fe₃O₄ Nanocatalyst As Electro-Fenton Process

Masume Rahmatinia¹, 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 Fe₃O₄ nanoparticles.

Methods: Fe₃O₄ 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 m²/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 Fe₃O₄ nanoparticles and modified Graphite felt without external aeration is an effective method for amoxicillin removal.

Keywords: Amoxicillin, Electro-Fenton, modified graphite felt, Fe₃O₄