

## بررسی کارایی فرایند اکسیداسیون پیشرفته اولتراسونیک / تابش فرابنفش / پراکسید هیدروژن در حذف آنتی بیوتیک تتراسایکلین از محلول‌های آبی

محسن یزدانی<sup>۱</sup>، علی اصغر نجف پور<sup>۲</sup>، علی اکبر دهقان<sup>۳</sup>، حسین علی‌دادی<sup>۴</sup>، محمود دنکوب<sup>۱</sup>، ریحانه زنگی<sup>۴</sup>، معصومه ساقی<sup>۱</sup>، علی اصغر نوایی فیض‌آبادی<sup>\*۱</sup>

۱. دانشجوی کارشناسی ارشد، کمیته تحقیقات دانشجویی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی مشهد، مشهد، ایران  
 ۲. دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، مرکز تحقیقات مدیریت و عوامل اجتماعی مؤثر بر سلامت، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی مشهد، مشهد، ایران

۳. دانشجوی دکترای مهندسی بهداشت محیط، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی تهران، تهران، ایران

۴- دانشجوی کارشناسی، کمیته تحقیقات دانشجویی، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی مشهد

### چکیده

تاریخ دریافت: ۹۶/۰۵/۲۷

تاریخ پذیرش: ۹۶/۰۸/۰۲

**اهداف** از میان انواع مختلف آنتی‌بیوتیک‌ها، تتراسایکلین‌ها دومین گروه شایع آنتی‌بیوتیک‌ها از نظر تولید و مصرف در سراسر جهان است. ورود آن‌ها به فاضلاب خانگی به آلودگی منابع آب می‌انجامد. هدف از انجام این مطالعه تعیین کارایی فرایند  $US/UV/H_2O_2$  در حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین از محلول‌های آبی است.

**مواد و روش‌ها** پژوهش حاضر مطالعه‌ای تجربی است که با استفاده از حمام اولتراسونیک و در حضور اشعه ماورای بنفش و پراکسید هیدروژن انجام گرفته است. به‌منظور سنجش تأثیر متغیرهای زمان تماس (۵-۶۰ دقیقه)، غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک (۵-۲۵ mg/l)، pH (۳-۱۰)، پراکسید هیدروژن (۲۰-۵۰ mg/l) و توان ورودی (۳۰۰-۹۰ وات) بر فرایند، از راکتور در فواصل زمانی مشخص نمونه‌برداری و غلظت باقی‌مانده با دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج ۲۶۱ نانومتر قرائت شد.

**یافته‌ها** نتایج این مطالعه نشان داد که UV و اولتراسونیک در بهترین شرایط به‌ترتیب ۱۶ و ۳۲ درصد در حذف این آلاینده نقش دارند. با به‌کارگیری هم‌زمان  $US/UV/H_2O_2$ ، کارایی حذف آنتی‌بیوتیک افزایش یافت و بهترین راندمان در pH= ۴/۵، غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک ۱۰ mg/l، غلظت پراکسید هیدروژن ۲۰ mg/l و توان ورودی ۲۴۰ وات حاصل شد. در این شرایط بعد از زمان تماس ۵۰ دقیقه، راندمان حذف ۸۳ درصد برای آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین حاصل شد.

**نتیجه‌گیری** نتایج این مطالعه نشان داد که می‌توان فرایند  $US/UV/H_2O_2$  را فرایند مؤثری برای حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین از محلول‌های آبی استفاده کرد.

### کلیدواژه‌ها:

آنتی‌بیوتیک، امواج فرابنفش، اولتراسونیک، پراکسید هیدروژن، محلول‌های آبی.

\* نویسنده مسئول: علی اصغر نوایی فیض‌آبادی

نشانی: دانشکده بهداشت مشهد، گروه مهندسی بهداشت محیط

تلفن: ۰۹۱۵۳۳۳۹۹۵۶، دورنگار: ؟؟؟

رایانه: aanavaei2017@gmail.com

شناسه ORCID: https://orcid.org/0000-0003-3684-8508

مجله علمی پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی سبزوار، دوره ۲۵، شماره ۱، فروردین و اردیبهشت ۱۳۹۷، ص ۱۴۳-۱۵۰.

آدرس سایت: <http://jsums.medsab.ac.ir> رایانامه: [journal@medsab.ac.ir](mailto:journal@medsab.ac.ir)

شاپای چاپی: ۱۶۰۶-۷۴۸۷

## مقدمه

حضور ترکیب‌ها و باقی‌مانده‌های دارویی در محیط به‌ویژه در منابع آبی، به‌دلیل پایداری و عدم تجزیه‌پذیری، مسئله مهمی در محیط‌زیست است [۱، ۲]. آنتی‌بیوتیک‌ها به‌همراه فاضلاب خانگی، پساب صنایع دارویی، فاضلاب بیمارستان‌ها و درمانگاه‌های دامپزشکی، محصولات کشاورزی و حوض‌های پرورش ماهی به‌طور قابل‌توجهی وارد منابع آب و محیط‌زیست می‌شود [۳].

تتراسایکلین‌ها دومین گروه شایع آنتی‌بیوتیک‌ها از نظر تولید و مصرف در سراسر جهان است که به‌صورت طبیعی از تخمیر برخی قارچ‌ها یا به‌وسیله فرایندهای نیمه‌سنتتیک به‌دست می‌آید و علیه بسیاری از میکروارگانیسم‌ها مؤثر است و به‌صورت بی‌رویه و مکرر استفاده می‌شود [۴].

وجود این آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط، از جمله محیط آبی، باعث بروز واکنش‌های مختلفی می‌شود، از آلرژی‌های ساده گرفته تا در برخی موارد سمیت مستقیم. علاوه‌بر این، وجود این مواد دارویی در محیط‌زیست به توسعه پاتوژن‌های مقاوم به آنتی‌بیوتیک می‌انجامد که به‌طور بالقوه عملکرد زیست‌بوم و سلامت انسان را تهدید می‌کند [۵، ۶].

تاکنون از روش‌های فیزیکی، شیمیایی و زیستی مختلفی برای حذف این آلاینده‌ها در محیط آبی استفاده شده است. مطالعات مختلف نشان داده است روش‌های جذب سطحی، فرایند الکتروکواگوله‌کردن و فرایند غشایی در حذف این ترکیب‌ها استفاده می‌شود، اما به‌دلیل کارایی پایین، هزینه بالای سرمایه‌گذاری، راهبری و نگهداری دشوار، این روش‌ها مقرون‌به‌صرفه نیست [۷].

در چند سال اخیر فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته (AOPs) به‌منظور کاهش آلودگی ناشی از حضور باقی‌مانده دارویی در آب استفاده شده است [۸]. از بین دیگر فرایندها، فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته در تصفیه فاضلاب حاوی ترکیبات دارویی کاربردی‌تر شده است، زیرا این روش فقط آلودگی‌ها را از یک فاز به فاز دیگر انتقال نمی‌دهد، بلکه برخلاف روش‌های دیگر، آلاینده‌های دارویی را کاملاً حذف می‌کند [۹].

مکانیسم سازوکار اصلی فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته بر اساس تولید رادیکال‌های هیدروکسیل ( $\text{OH}^\bullet$ ) است. این رادیکال‌ها تقریباً قادرند اکثر ترکیبات آلی را به‌سرعت و به‌طور غیرگزینشی اکسید کنند. فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته و مختلفی از قبیل ازن‌زنی، فتوفنتون و

تابش پرتو فرابنفش در حذف آلاینده‌های آلی، به‌ویژه آنتی‌بیوتیک‌ها از آب، استفاده می‌شود. از دیگر روش‌های اکسیداسیون پیشرفته، تابش امواج اولتراسونیک (US) است [۱۰].

واکنش‌های سونوشیمیایی ناشی از تابش صوتی با شدت بالا در مایعات در فرکانس‌هایی است (به‌طور معمول در محدوده 20 - 1000 kHz) که تولید کایتاسیون (حفره) می‌کند. بنابراین، کایتاسیون وسیله متمرکزکننده انرژی منتشرشده اولتراسوند به داخل میکرواکتور است که به‌همراه انتشار هم‌زمان رادیکال‌های واکنش‌پذیر به هر راکتور سرویس‌دهنده، نقطه‌ای داغ عمل می‌کند. امواج اولتراسوند تغییرات شیمیایی و فیزیکی در محیط مایع را از طریق تولید و متعاقب آن تخریب حباب‌های کایتاسیون افزایش می‌دهد. این حباب‌ها طی یک دوره از تعدادی دوره (چرخه) تشکیل می‌شود و رشد می‌کند تا به اندازه تعادلی در فرکانس خاصی برسد. سرنوشت این حباب‌ها این است که در دوره‌های متراکم (فشرده) بعدی متلاشی می‌شود تا انرژی لازم برای آثار شیمیایی و مکانیکی را تولید کند. علاوه‌بر این، سونولیز آب،  $\text{H}_2\text{O}_2$  تولید می‌کند [۱۱]. هدف از انجام این مطالعه بررسی کارایی فرایند اولتراسونیک / تابش فرابنفش / پراکسید هیدروژن در حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین از محیط‌های آبی است.

## مواد و روش‌ها

این مطالعه از نوع تجربی-کاربردی بود که به‌صورت ناپیوسته در مقیاس آزمایشگاهی روی غلظت‌های مختلفی از محلول سنتتیک حاوی آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین، با درجه خلوص بیش از ۹۵ درصد انجام گرفت. نخست، با حل کردن نمک تتراسایکلین در آب مقطر، محلول استوک تتراسایکلین (۵۰۰ میلی‌گرم بر لیتر) به‌صورت هفتگی تهیه و در تاریکی در دمای ۴ درجه سانتی‌گراد نگهداری شد. سپس، محلول‌هایی با غلظت‌های مورد نظر با استفاده از محلول استوک تهیه شد.

برای تنظیم pH از اسید کلریدریک و سود یک نرمال استفاده شد. تمامی مواد شیمیایی ساخت شرکت مرک آلمان با گرید آزمایشگاهی و درجه خلوص بالا به‌کار رفت.

بر اساس سایر پژوهش‌ها، پارامترهای مورد مطالعه در این پژوهش عبارت بود از (۳-۱۰) pH، غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک (۲۵-۵ میلی‌گرم در لیتر)، فرکانس ورودی (۳۷ کیلوهرتز، توان ورودی (۳۰۰-۹۰ وات) و زمان تماس (۶۰-۵

پایانی پژوهش، به‌منظور سنجش تأثیر  $H_2O_2$ ، غلظت‌های مختلفی (۵-۲۰ میلی‌گرم بر لیتر) از پراکسید هیدروژن به راکتور US/UV اضافه و در زمان‌های مشخص (۵۰-۱۰ دقیقه) از سیستم ترکیبی نمونه برداشته و با دستگاه اسپکتروفوتومتر قرائت شد. نتایج وارد نرم‌افزار Design Expert شد و با استفاده از آزمون آماری ANOVA تجزیه و تحلیل گردید.

### یافته‌ها

نتایج نشان داد کاربرد فرایند UV و اولتراسونیک به‌تنهایی در حذف این آلاینده کارایی ناچیز و در بهترین شرایط به ترتیب ۱۶ و ۳۲ درصد دارد (شکل ۱ و ۲). با کاربرد هم‌زمان این دو فرایند، کارایی حذف آنتی‌بیوتیک افزایش یافت و بهترین راندمان در  $pH=4/5$ ، غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک  $10 \text{ mg/l}$  و توان ورودی  $240 \text{ w}$  حاصل شد. در شرایط بهینه بعد از ۵۰ دقیقه زمان تماس، راندمان حذف تتراسایکلین ۷۲ درصد حاصل شد.

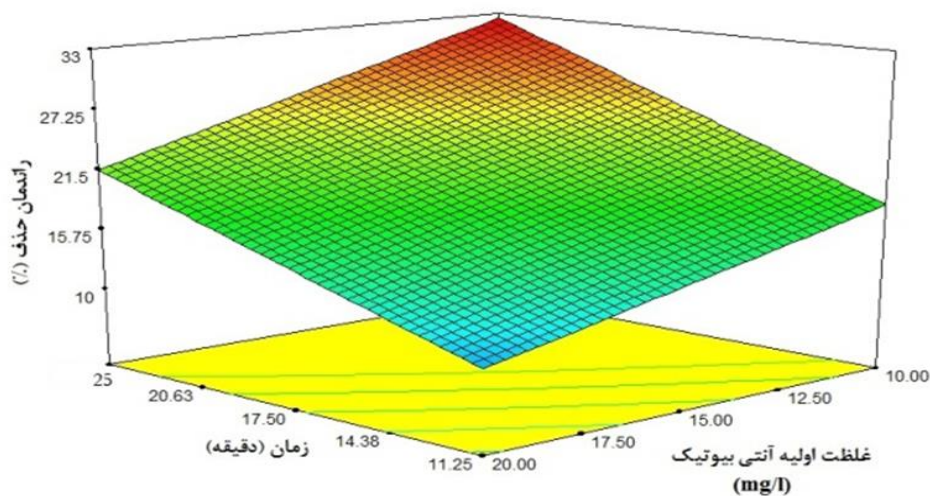
دقیقه). برای تعیین حجم نمونه از نرم‌افزار Design Expert نسخه ۷ استفاده شد. آزمایش‌ها به‌طور جداگانه، در حمام اولتراسونیک (مدل Elmasonic P) به حجم ۳ لیتر، همچنین در راکتور فرابنفش، برای به‌دست‌آوردن بهترین شرایط و بهترین راندمان حذف آلاینده انجام شد.

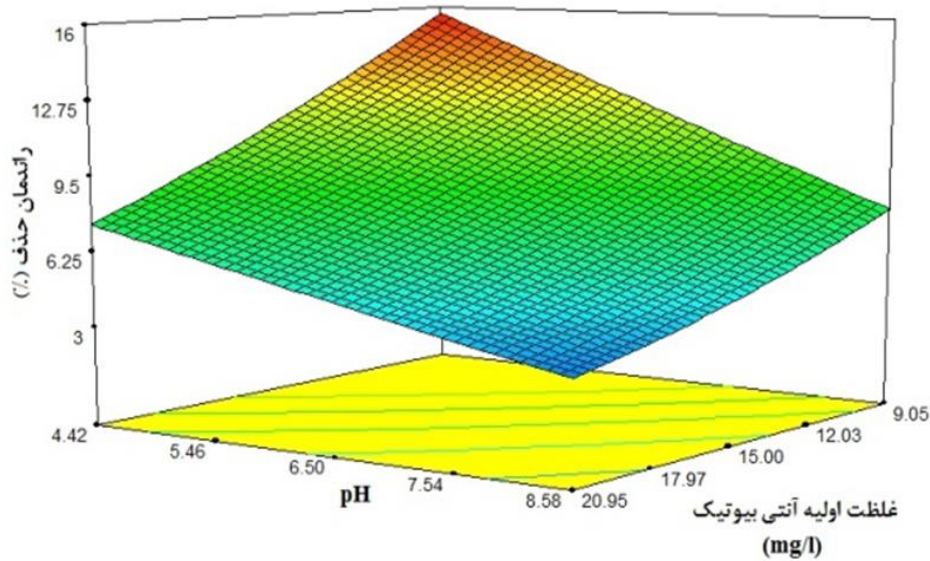
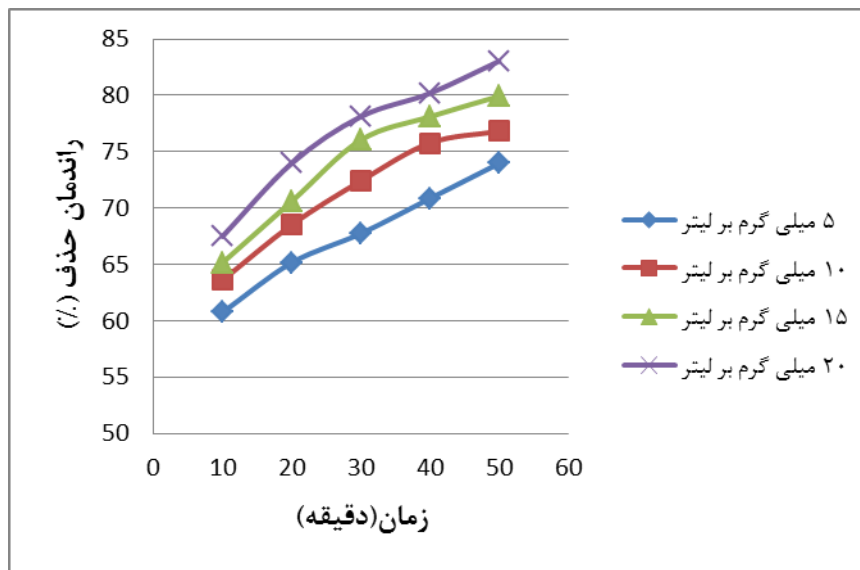
آزمایش‌ها روی نمونه‌های ۵۰ میلی‌لیتری با غلظت‌های مورد نظر آنتی‌بیوتیک صورت گرفت. پس از تنظیم pH نمونه‌ها در معرض تابش امواج اولتراسوند و اشعه فرابنفش قرار گرفت. منبع تابش لامپ UV با توان اسمی ۴۰ وات (W) بود که با لوله کوارتزی پوشش داده و در وسط راکتور قرار داده شد. کل این سیستم برای جلوگیری از بازتابش، در داخل فویل آلومینیومی پیچیده شده بود.

در فواصل زمانی از پیش تعیین شده با نرم‌افزار از راکتور نمونه‌برداری و غلظت آنتی‌بیوتیک با دستگاه اسپکتروفوتومتر در طول موج ۲۶۱ نانومتر قرائت شد. پس از تعیین شرایط بهینه در هر یک از فرایندهای اولتراسونیک و UV، ادامه آزمایش‌ها به‌منظور تعیین راندمان تلفیقی سیستم اولتراسونیک و UV، در شرایط بهینه انجام شد. در قسمت

جدول ۱. شرایط بهینه سیستم‌های مورد استفاده در پژوهش

ردیف	فرایند	شرایط بهینه
۱	اولتراسونیک	$pH=4/5$ , $10 \text{ mg/l}$ : غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک، $power=240 \text{ w}$ زمان تماس: ۲۵ دقیقه
۲	تابش امواج فرابنفش	$pH=4/5$ , غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک: $10 \text{ mg/l}$ ، زمان تماس: ۵۰ دقیقه
۳	اولتراسونیک/ امواج فرابنفش	$pH=4/5$ , $10 \text{ mg/l}$ : غلظت آنتی‌بیوتیک، $power=240 \text{ w}$ زمان تماس: ۵۰ دقیقه
۴	اولتراسونیک/ امواج فرابنفش/ پراکسید هیدروژن	$pH=4/5$ , $10 \text{ mg/l}$ : غلظت آنتی‌بیوتیک، $power=240 \text{ w}$ زمان تماس: ۵۰ دقیقه، غلظت پراکسید هیدروژن: $20 \text{ mg/l}$



شکل ۱. تأثیر غلظت اولیه آنتی بیوتیک و زمان بر راندمان حذف با اولتراسونیک،  $\text{pH}=4.5$ ،  $\text{Power}=240\text{w}$ شکل ۲. تأثیر غلظت اولیه آنتی بیوتیک و  $\text{pH}$  بر راندمان حذف با UV، زمان ۵۰ دقیقهشکل ۳. تأثیر غلظت‌های مختلف پراکسید هیدروژن بر راندمان حذف آنتی بیوتیک در شرایط بهینه سیستم US/UV ( $\text{pH}=4/5$ ،  $\text{غلظت آنتی بیوتیک}=10\text{mg/l}$ ،  $\text{power}=240\text{w}$ )

## بحث

نتایج آزمایش‌ها نشان داد فرایندهای اولتراسونیک و تابش فرابنفش هر کدام به تنهایی کارایی ناچیز و در بهترین شرایط به ترتیب ۱۶ و ۳۲ درصد راندمان در حذف این آلاینده دارد. با کاربرد هم‌زمان این دو فرایند، راندمان حذف آلاینده به ۷۲ درصد افزایش یافت. افزودن هیدروژن پراکسید به سیستم ترکیبی اولتراسونیک/تابش فرابنفش باعث بهبود راندمان

حذف به ۸۳ درصد شد.

### تأثیر فرایند اولتراسونیک

پایین بودن میزان حذف در حضور اولتراسونیک به تنهایی ناشی از این واقعیت است که میزان تشکیل رادیکال‌های آزاد  $\text{OH}^\circ$  در حضور اولتراسونیک به تنهایی ناچیز است. تنها منبع تولید رادیکال آزاد  $\text{OH}^\circ$  در حضور امواج اولتراسونیک، سونولیز آب

طبق روابط زیر است [۱۲].  

$$\text{H}_2\text{O} + \text{US} \rightarrow \text{H}^\circ + \text{OH}^\circ \quad (1)$$

$$\text{H}^\circ + \text{O}_2 \rightarrow 2 \text{OH}^\circ \quad (2)$$

بنابراین، از آنجا که میزان رادیکال تولیدی طی این فرایند ناچیز است، قدرت تخریب و حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین تحت این شرایط چشمگیر نیست [۱۳، ۱۴]. محوی و همکاران مشخص کردند اولتراسونیک به‌تنهایی تأثیر ناچیز و در بهترین شرایط ۲۰/۳ درصد راندمان در حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین داشته است [۱۵].

### تأثیر پرتو فرابنفش

با توجه به نتایج، کارایی فرایند UV قابل‌ملاحظه نیست. این میزان حذف، هرچند ناچیز است، ناشی از فتولیز مستقیم یا هیدرولیز آنتی‌بیوتیک تحت این شرایط است. نتیجه حاصل با نتایج مطالعات کیم و همکاران در سال ۲۰۰۹ در زمینه تجزیه کلاریترومایسین، اریترومایسین و آزیترومایسین و تتراسایکلین با فرایند UV مطابقت دارد [۱۶].

### تأثیر افزودن پراکسید هیدروژن

همان‌طور که در شکل ۳ مشاهده می‌شود، با افزایش غلظت پراکسید هیدروژن، راندمان حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین افزایش می‌یابد. روما و همکاران در سال ۲۰۱۱ تجزیه و حذف سیپروفلوکساسین را با استفاده از روش UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>، در سه pH (3, 7 و 10) در محیط آبی بررسی کردند. آن‌ها به این نتیجه رسیدند که روش UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> در pH=3 بسیار موفقیت‌آمیز است [۱۷].

همان‌طور که در شکل ۳ مشاهده می‌شود، با افزایش غلظت پراکسید هیدروژن، راندمان حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین افزایش می‌یابد. روما و همکاران در سال ۲۰۱۱ تجزیه و حذف سیپروفلوکساسین را با استفاده از روش UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>، در سه pH (3, 7 و 10) در محیط آبی بررسی کردند. آن‌ها به این نتیجه رسیدند که روش UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> در pH=3 بسیار موفقیت‌آمیز است [۱۷].

نادئو و همکاران در سال ۲۰۰۹ در تحقیق مشابهی تجزیه داروهای دیکلوفناک، آموکسی‌سیلین و کاربامازپین را تحت تابش اشعه UV در محلول ساده (آب خالص حاوی فقط یک دارو) و سه محلول مخلوط (از سه داروی مذکور) همراه با پساب فاضلاب شهری ارزیابی کردند. آن‌ها دریافتند که با کاهش pH میزان تجزیه داروها افزایش می‌یابد [۲۴].

المولا و چائوهاری نیز در سال ۲۰۰۹ گزارش کردند که در pH کم به‌علت تشکیل یون‌های اکسونیم، پراکسید هیدروژن ثابت‌تر است و یون‌های اکسونیم پایداری H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> را بهبود می‌بخشد [۲۵].

### تأثیر زمان بر فرایند

نتایج مطالعه حاضر نشان داد که با افزایش زمان تماس، راندمان حذف آنتی‌بیوتیک نیز افزایش چشمگیری می‌یابد. دلیل افزایش در راندمان حذف در زمان‌های اولیه واکنش، ایجاد حفره و خوردگی بیشتر در سطح نانوذره و در نتیجه افزایش سطح مقطع جذب و کارایی حذف است [۲۶]. در مطالعه کردپور و همکاران در سال ۱۳۹۴ به این نتیجه رسیدند که زمان ۶۰ دقیقه به‌عنوان زمان تماس بهینه، برای حذف آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین مناسب است می

همان‌طور که در شکل ۳ مشاهده می‌شود، با افزایش غلظت پراکسید هیدروژن، راندمان حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکلین افزایش می‌یابد. روما و همکاران در سال ۲۰۱۱ تجزیه و حذف سیپروفلوکساسین را با استفاده از روش‌های تصفیه فتولیز تنها و UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> در محیط آبی بررسی کردند. آن‌ها به این نتیجه رسیدند که اضافه کردن H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> به UV باعث دو برابر شدن سرعت تجزیه نسبت به UV بدون H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> می‌شود [۱۷].

در مطالعات مشابه زیادی از جمله هومم و همکاران [۱۸] در سال ۲۰۱۱، ووگنا و همکاران [۱۹] در سال ۲۰۰۴، پیرا و همکاران [۲۰] در سال ۲۰۰۷، و یائو و همکاران [۲۱] در سال ۲۰۱۳، این نتیجه حاصل شد که به‌طور کلی H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> نقش مهمی در اکسیداسیون آنتی‌بیوتیک ایفا می‌کند. به‌عبارت دیگر، یکی از عوامل مهم در واکنش‌های اکسیداسیون پیشرفته و مؤثر بر سرعت واکنش‌های شیمیایی، H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> است. ترکیب اولتراسونیک و فتولیز با پراکسید هیدروژن که اکسیدانی قوی است و به‌علت تولید رادیکال‌های هیدروکسید، باعث آسان‌تر شدن تجزیه می‌شود و راندمان فرایند بالا می‌رود.

### تأثیر غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک بر فرایند

همان‌طور که در شکل ۱ مشاهده می‌شود، با کاهش غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک، راندمان حذف این آلاینده افزایش می‌یابد. به‌روزی و همکاران در سال ۲۰۱۱ حذف آنتی‌بیوتیک مترونیدازول از پساب کارخانجات داروسازی را با روش

باشد [۲۷].

پراکسید هیدروژن را روشی سودمند در حذف این آلاینده از آب و فاضلاب به کار گرفت.

### تشکر و قدردانی

این مقاله برگرفته از طرحی پژوهشی است که با حمایت مالی دانشگاه علوم پزشکی مشهد انجام شده است. بدین وسیله نویسندگان این مقاله از تمام کسانی که در انجام این تحقیق همکاری کرده‌اند، تشکر می‌کنند.

### نتیجه گیری

نتایج این مطالعه نشان داد فرایند اولتراسونیک و تابش امواج فرابنفش هر کدام به تنهایی روش کارآمدی برای حذف آنتی بیوتیک تتراسایکلین از محلول‌های آبی نیست، اما با کاربرد هم‌زمان دو فرایند راندمان حذف افزایش می‌یابد. این افزایش راندمان با افزودن پراکسید هیدروژن به سیستم ترکیبی اولتراسونیک و تابش فرابنفش نیز بیشتر شد. از این رو، می‌توان فرایند ترکیبی اولتراسونیک/ تابش فرابنفش/

### References

- [۱] Dirany A, Sirés I, Oturan N, Oturan MA. Electrochemical abatement of the antibiotic sulfamethoxazole from water. *Chemosphere*. 2010; 81(5): 594-602.
- [۲] Gagnon C, Lajeunesse A, Cejka P, Gagne F, Hausler R. Degradation of selected acidic and neutral pharmaceutical products in a primary-treated wastewater by disinfection processes. *Ozone: Science and Engineering*. 2008; 30(5): 387-92.
- [۳] Rahmani A, Mehralipour J, Shabanloo A, Majidi S. Efficiency of ciprofloxacin removal by ozonation process with calcium peroxide from aqueous solutions. 2015.
- [۴] Sarmah AK, Meyer MT, Boxall AB. A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment. *Chemosphere*. 2006; 65(5): 725-59.
- [۵] Elmolla ES, Chaudhuri M. Comparison of different advanced oxidation processes for treatment of antibiotic aqueous solution. *Desalination*. 2010; 256(1): 43-7.
- [۶] Kümmerer K. Antibiotics in the aquatic environment—a review—part I. *Chemosphere*. 2009; 75(4): 417-34.
- [۷] Garoma T, Umamaheshwar SK, Mumper A. Removal of sulfadiazine, sulfamethizole, sulfamethoxazole, and sulfathiazole from aqueous solution by ozonation. *Chemosphere*. 2010; 79(8): 814-20.
- [۸] Linares-Hernández I, Barrera-Díaz C, Bilyeu B, Juárez-GarcíaRojas P, Campos-Medina E. A combined electrocoagulation–electrooxidation treatment for industrial wastewater. *Journal of hazardous Hazardous materialsMaterials*. 2010; 175(1): 688-94.
- [۹] Yuan F, Hu C, Hu X, Qu J, Yang M. Degradation of selected pharmaceuticals in aqueous solution with UV and UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. *Water Research*. 2009; 43(6): 1766-74.
- [۱۰] Safari G, Hoseini M, Kamali H, Moradirad R, Mahvi A. Photocatalytic Degradation degradation of Tetracycline tetracycline Antibiotic antibiotic from Aqueous aqueous Solutions solutions Using using UV/TiO<sub>2</sub> and UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>. *Journal of Health*. 2014; 5(3): 203-203.
- [۱۱] Michael I, Rizzo L, McArdell C, Manaia C, Merlin C, Schwartz T, et al. Urban wastewater treatment plants as hotspots for the release of antibiotics in the environment: a review. *Water Research*. 2013; 47(3): 957-95.
- [۱۲] Hou L, Zhang H, Xue X. Ultrasound enhanced heterogeneous activation of peroxydisulfate by magnetite catalyst for the degradation of tetracycline in water. *Separation and Purification Technology*. 2012; 84: 147-52.
- [۱۳] Klavarioti M, Mantzavinos D, Kassinos D. Removal of residual pharmaceuticals from aqueous systems by advanced oxidation processes. *Environment international*. 2009; 35(2): 402-17.
- [۱۴] Sanchez-Prado L, Barro R, Garcia-Jares C, Llopart M, Lores M, Petrakis C, et al. Sonochemical degradation of triclosan in water and wastewater. *Ultrasonics Sonochemistry*. 2008; 15(5): 689-94.
- [۱۵] Hoseini M, Safari GH, Kamani H, Jaafari J, Mahvi A. Survey on Removal removal of Tetracycline tetracycline Antibiotic antibiotic from Aqueous aqueous Solutions solutions by Nanonano-Sonochemical sonochemical Process process and Evaluation evaluation of the Influencing influencing Parametersparameters. *Iranian Journal of Health and Environment*. 2015; 8(2): 141-52.
- [۱۶] Kim I, Yamashita N, Tanaka H. Performance of UV and UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> processes for the removal of pharmaceuticals detected in secondary effluent of a sewage treatment plant in Japan. *Journal of hazardous Hazardous materialsMaterials*. 2009; 166(2): 1134-40.
- [۱۷] Roma M. Removal of Ciprofloxacin ciprofloxacin from Water water using Adsorptionadsorption, UV Photolysis photolysis and UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> Degradationdegradation: . Worcester Polytechnic Institute; . 2011.
- [۱۸] Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices—a review. *Journal of environmental Environmental managementManagement*. 2011; 92(10):2 304-47.
- [۱۹] Vogna D, Marotta R, Napolitano A, Andreozzi R, d'Ischia M. Advanced oxidation of the pharmaceutical drug diclofenac with UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and ozone. *Water Research*. 2004; 38(2): 414-22.
- [۲۰] Pereira VJ, Weinberg HS, Linden KG, Singer PC. UV degradation kinetics and modeling of pharmaceutical compounds in laboratory grade and surface water via direct and indirect photolysis at 254 nm. *Environmental science Science & technologyTechnology*. 2007; 41(5):1682-8.
- [۲۱] Yao H, Sun P, Minakata D, Crittenden JC, Huang C-H. Kinetics and modeling of degradation of ionophore antibiotics by UV and UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. *Environmental science Science & technologyTechnology*. 2013; 47(9): 4581-9.
- [۲۲] Behrouzi-Navid M, Olya M, Monakchian K, editors. Removal of Metronidazole metronidazole in pharmaceutical industrial effluents by UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. The 5th National Conference and Exhibition on Environmental Engineering; . 2011.
- [۲۳] Shaojun J, Zheng S, Daqiang Y, Lianhong W, Liangyan C. Aqueous oxytetracycline degradation and the toxicity change of degradation compounds in photoirradiation process. *Journal of Environmental Sciences*. 2008; 20(7): 806-13.
- [۲۴] Naddeo V, Meric S, Kassinos D, Belgiorio V, Guida M. Fate of pharmaceuticals in contaminated urban wastewater effluent under ultrasonic irradiation. *Water Research*. 2009; 43(16): 4019-27.
- [۲۵] Elmolla E, Chaudhuri M. Optimization of Fenton process for treatment of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution. *Journal of hazardous Hazardous materialsMaterials*. 2009; 170(2): 666-72.
- [۲۶] Tyrovola K, Peroulaki E, Nikolaidis NP. Modeling of arsenic immobilization by zero valent iron. *European Journal of Soil Biology*. 2007; 43(5): 356-67.
- [۲۷] Kord Mostafapour F, Bazrafshan E, Belarak D, Khoshnamvand N. Survey of Photophoto-catalytic

Degradation degradation of Ciprofloxacin ciprofloxacin  
Antibiotic antibiotic Using using Copper copper Oxide  
oxide Nanoparticles nanoparticles (UV / CuO) in Aqueous

aqueous Environmentenvironment. Journal of Rafsanjan  
University of Medical Sciences. 2016; 15(4): 307-18.

## Performance evaluation of advanced oxidation process US/UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> on removal of tetracycline antibiotic from aqueous solutions

Mohsen Yazdani<sup>1</sup>, Ali Asghar Najafpoor<sup>2</sup>, Ali Akbar Dehghan<sup>3</sup>, Hossein Alidadi<sup>2</sup>, Mahmood Dankob<sup>1</sup>, Reyhane Zangi<sup>4</sup>, Masoumeh Saghi<sup>1</sup>, Ali Asghar Navaei Fezabady<sup>1\*</sup>

1. M.Sc. Students of Environmental Health Engineering, Student Research Committee, School of Health, Mashhad University of Medical Science, Mashhad, Iran

2. Associate Professor, Department of Environmental Health Engineering, Management & Social Determinants of Health Research Center, School of Health, Mashhad University of Medical Science, Mashhad, Iran

3. Ph.D. Student of Environmental Health Engineering, School of Health, Tehran University of Medical Science, Tehran, Iran

<sup>4</sup>Student of Environmental Health Engineering, Student Research Committee, School of Health, Mashhad University of Medical Science, Mashhad, Iran.

### Abstract

**Background:** Among the different type of antibiotics, the tetracycline occupied the 2nd level of the more prevalence types in produce and use aspect worldwide and their existence in domestic wastewater will pollute our water resources. The aim of this study was to determine the performance of US/UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> processes when reduction of tetracycline antibiotic from an aqueous environment was objected.

**Materials and Methods:** The current experimental study use the ultrasonic bath simultaneously with ultraviolet wave and hydrogen peroxide. To detect the effect of variables include contact time (5-60 min), the antibiotic concentration (5-25 mg/l), pH (3-10), hydrogen peroxide concentration (5-20 mg/l) and the input power (90- 300 W) of instrument in process, the reactor has been sampled in different intervals and the residue concentration to be used to detect with spectrophotometer instrument in 261 nm length wave.

**Results:** The result has been showed that the separately use of UV and US will not take a high performance with the best removal percent of 16% and 32%. Simultaneously use of US/UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> cached a more highly reduction in tetracycline concentration and the best reduction was 83% removal that took place in pH= 4.5, antibiotic concentration of 10 mg/l, input power of 240 W, hydrogen peroxide concentration of 20 mg/l, time equal with 50 min.

**Conclusion:** The result has been showed that the US/UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> process can be used as a performance process to remove the tetracycline antibiotic from an aqueous environment.

**Received:** 2017/08/18

**Accepted:** 2017/10/24

**Keyword:** antibiotic, aqueous solutions, hydrogen peroxide, ultrasound, ultra violet waves.