

Survey of Acetaminophen removal from aqueous solution using peroxy-electrochemical method

Giti Kashi^{*1,2} , Nafiseh Nourieh¹ 

1- Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Islamic Azad University, Tehran Medical Sciences Branch, Tehran, Iran

2- Water Purification Research Center; Islamic Azad University, Tehran Medical Sciences Branch, Tehran, Iran

Abstract

Background and Aims: Drugs, including acetaminophen, enter the environment through urban and industrial wastewater. The presence of these substances even at tiny amounts may cause adverse effects on health. This study was aimed to investigate acetaminophen removal from aqueous solution using batch peroxy electrochemical reactor employing zinc-copper electrode and hydrogen peroxide.

Materials and Methods: This study is a laboratory experimental research. Water sample containing acetaminophen was prepared and the removal efficiency at different operating conditions viz. pH (4-8), reaction time (30-90 min), concentration of acetaminophen (50-200 mg/L), current density (3-9 mA/cm²), and concentration of hydrogen peroxide (0.5-1.5 mg/L) was studied. Acetaminophen concentration was determined by high performance liquid chromatography at 360 nm. Ethical considerations were observed at all stages of the study.

Results: The experimental results showed that the removal performance of acetaminophen (50 mg/L) achieved in electrochemical reactor was 63% at optimal conditions of 2 cm distance between electrodes, 9 mA/cm² electric current density, 30 minutes electrolysis time, and pH 4. The enhanced peroxy electrochemical reactor achieved a complete (100%) removal at a concentration of 1.5 mg/L hydrogen peroxide, 9 mA/cm² electric current density, 30 minutes time reaction, pH 4, and 50 mg/L acetaminophen concentration.

Conclusion: Based on these results, the peroxy electrochemical method, as a promising and environmentally friendly advanced oxidation technology, is effective in removing acetaminophen from aqueous solutions and the process implementation conditions are more cost-effective as compared to the sole electrochemical method.

Keywords: Acetaminophen, Peroxy electrochemical, Hydrogen peroxide, Drug

Please Cite this article as: Kashi G, Nourieh N. Survey of Acetaminophen Removal from Aqueous Solution Using Peroxy-Electrochemical Method. Journal of Health in the Field 2023; 10(3):1-10.

Corresponding Author: Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Islamic Azad University, Tehran Medical Sciences Branch, Tehran, Iran.

Email: g.kashi@yahoo.com

DOI: <https://doi.org/10.22037/jhf.v10i3.39207>

Received: 22 August 2022

Accepted: 28 December 2023

بررسی حذف استامینوفن از محلول آبی به روش پراکسی الکتروشیمیایی

گیتی کاشی^{*۱,۲}، نفیسه نوریه^۱

۱- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی آزاد اسلامی تهران، تهران، ایران
۲- مرکز تحقیقات پالایش آب، دانشگاه علوم پزشکی آزاد اسلامی تهران، تهران، ایران

چکیده

زمینه و اهداف: ترکیبات دارویی از جمله استامینوفن از طریق فاضلاب‌های شهری و صنعتی وارد محیط زیست می‌شوند. حضور این مواد در مقادیر بسیار کم اثرات نامطلوبی بر سلامتی ایجاد می‌کند. هدف از این تحقیق بررسی کارایی حذف استامینوفن از محلول آبی توسط رآکتور ناپیوسته پراکسی الکتروشیمیایی مرکب از الکترودهای روی-مس و پراکسید هیدروژن می‌باشد.

مواد و روش‌ها: این تحقیق مطالعه تجربی آزمایشگاهی است. نمونه آب دارای استامینوفن تهیه و کارایی حذف درحالت مختلف متغیرهای pH (۴-۸)، زمان واکنش (۹۰-۳۰ دقیقه)، غلظت استامینوفن (۲۰۰-۵۰ میلی گرم بر لیتر)، چگالی جریان (۹-۳ میلی آمپر بر سانتی متر مربع) و غلظت پراکسید هیدروژن (۱/۵-۰/۵ میلی گرم بر لیتر) مورد بررسی قرار گرفت. تعیین غلظت استامینوفن توسط دستگاه کروماتوگرافی مایع با عملکرد بالا در طول موج ۳۶۰ نانومتر انجام گرفت. ملاحظات اخلاقی در تمام مراحل اجرای مطالعه رعایت شد.

یافته‌ها: میزان حذف ۵۰ میلی گرم بر لیتر استامینوفن در شرایط بهینه فاصله بین الکترودها ۲ سانتی متر، چگالی جریان الکتریکی ۹ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، زمان الکترولیز ۳۰ دقیقه و pH معادل ۴، ۶۳ درصد در سیستم الکتروشیمیایی بدست آمد. مقدار حذف استامینوفن در غلظت ۱/۵ میلی گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن، چگالی جریان الکتریکی ۹ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، زمان ۳۰ دقیقه، pH بهینه معادل ۴ و غلظت ۵۰ میلی گرم در لیتر استامینوفن ۱۰۰ درصد در سیستم پراکسی الکتروشیمیایی بدست آمد.

نتیجه‌گیری: براساس این نتایج روش پراکسی الکتروشیمیایی، به عنوان فن آوری اکسیداسیون پیشرفته امیدبخش دوستدار محیط زیست، در حذف آنتی بیوتیک استامینوفن از محلول‌های آبی کارایی مناسبی دارد.

کلیدواژه‌ها: استامینوفن، پراکسی الکتروشیمیایی، پراکسید هیدروژن، دارو

* نویسنده مسئول: گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی آزاد اسلامی تهران، تهران، ایران.

Email: g.kashi@yahoo.com

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۱/۰۵/۳۱

تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۱/۱۰/۰۷

مقدمه

استامینوفن یکی از داروهای کاهش‌دهنده تب، ضد درد و ضدالتهاب است که به‌طور گسترده برای درمان و کاهش تب استفاده می‌شود [۱]. استامینوفن دارای ساختار با نام شیمیایی ان-استیل-پی-آمینوفنل، فرمول تجربی $C_8H_9NO_2$ و وزن مولکولی ۱۵۱/۱۷ گرم بر مول می‌باشد. فرآورده‌های تجزیه آن سمی‌تر هستند. کم‌خونی، آلرژی، درماتیت و هپاتیت ازجمله اثرات جانبی مصرف آن محسوب می‌شوند [۲]. بیش از ۶۰۰ داروی بدون نسخه و بانسجه حاوی استامینوفن در کشور آمریکا اعلام شده است و نیمی از جمعیت کشور فرانسه داروی استامینوفن را مصرف می‌کنند [۳]. کشور ایران از دیدگاه مصرف دارو در جهان و آسیا به‌ترتیب رتبه بیستم و دوم را دارد [۴]. فرآورده‌های دارویی در چاه‌های آب آشامیدنی در کشور ایران یافت می‌شوند. کیفیت ضعیف آب آشامیدنی و مصرف آب آلوده به ترکیبات دارویی، آلی و معدنی شیمیایی سلامت افراد را تهدید می‌کند. افزایش غلظت استامینوفن منبع آب زیرزمینی را می‌توان به دفع فاضلاب، لجن‌خانگی و بیمارستانی، مصرف کود حیوانی و رواناب مراکز دامداری نسبت داد [۵]. علیرغم پیشرفت‌ها در فنآوری تصفیه فاضلاب و ارتقای واحدهای تصفیه‌خانه فاضلاب دفع ۹۰ درصد ترکیبات دارویی بدون تغییر ازطریق واحد تصفیه‌خانه فاضلاب صورت می‌پذیرد [۶، ۷]. مقدار بسیار کم این داروها در آب برای سلامتی انسان و محیط زیست بسیار مضر تلقی می‌شود [۸]. بنابراین تصفیه آب آلوده به انواع مختلف داروها به عنوان روش استراتژیک برای جلوگیری از مصرف بیش از حد آب و جلوگیری از به مخاطره انداختن زندگی انسان و محیط زیست از اولویت زیادی در چند دهه اخیر برخوردار است [۹]. غلظت مجاز این دارو در پساب کارخانجات طبق سازمان جهانی تصفیه کارخانه‌ها برابر ۶۵ میکروگرم بر لیتر است. استاندارد قابل قبول سازمان حفاظت محیط زیست برای حضور مواد دارویی و آنتی‌بیوتیکی در پساب کم‌تر از ۱ میلی‌گرم بر لیتر (فاقد ریسک ویژه برای محیط زیست) اعلام گردید [۱۰]. تصفیه متداول آب توانایی حذف استامینوفن را ندارد [۱۱]. روش‌های حذف باقی‌مانده داروها ازجمله استامینوفن بیش از حد مجاز تخلیه شامل روش جذب با کربن فعال، ازن‌زنی و فرآیندهای

غشایی هستند. حلالیت و پایداری کم، اکسایش ناقص ترکیبات آلی، فنآوری پیشرفته و هزینه زیاد از جمله معایب ازن‌زنی به عنوان فرآیند اکسیداسیون شیمیایی محسوب می‌شود [۱۲]. محدودیت‌های روش‌های فوق سبب توسعه و تحقیق گسترده کاربرد فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته به‌عنوان روش‌های نوین دوستدار محیط، برای تصفیه آب گردیده‌است [۱۳].

فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته (AOPS) از قبیل فرایند پراکسی الکتروشیمیایی وابسته به تولید رادیکال بسیار فعال هیدروکسیل با پتانسیل اکسایش ۲/۸ ولت است که برای حذف باقی‌مانده داروها از آب در دهه اخیر مورد استفاده قرار گرفته‌اند [۱۳، ۱۴]. فرایند پراکسی الکتروشیمیایی تلفیقی از میدان الکتریکی و پراکسید هیدروژن است. فنآوری پراکسی الکتروشیمیایی، واحد فرآیندی محسوب می‌شود که معدنی‌شدن استامینوفن در اثر واکنش‌های انتقال الکترون در سطح مشترک الکترو و آب اتفاق می‌افتد و پراکسید هیدروژن از خارج به سیستم الکتروشیمیایی افزوده می‌شود [۱۵]. متغیرهای اصلی موثر بر عملکرد فرآیند پراکسی الکتروشیمیایی شامل چگالی جریان الکتریکی، کیفیت آب و کدورت آب می‌باشند [۱۶]. مزایای حذف استامینوفن توسط پراکسی الکتروشیمیایی عبارتند از: عدم نیاز به پراکسید هیدروژن، عدم نیاز به تنظیم pH، عدم تولید لجن و راهبری و بهره‌برداری ساده‌تر [۱۷]. خانی و همکاران در سال ۲۰۲۰ از انعقاد الکتریکی توسط الکترو د آهن و آلومینیوم برای تصفیه فاضلاب روغن‌کشی زیتون استفاده نموده و متوجه شدند، فرایند انعقاد الکتریکی به همراه اکسیداسیون پیشرفته موجب تصفیه مؤثرتر پساب روغن زیتون می‌گردد [۱۸]. کرد مصطفی‌پور و همکاران در سال ۱۳۹۵ از الکترو د نانو ذرات اکسید مس و تابش فرابنفش برای تجزیه فوتو کاتالیستی آنتی‌بیوتیک سیپرو فلوکساسین استفاده نموده و متوجه شدند که میزان تجزیه داروی سیپروفلوکساسین در شرایط بهینه (pH معادل ۷، غلظت ۰/۰۷ گرم در لیتر نانو ذرات اکسید مس و زمان ۶۰ دقیقه) ۷۳ درصد است [۱۹]. بینا و همکاران در سال ۱۳۹۷ از الکتروپرسولفات بهینه‌شده با پراکسید هیدروژن برای حذف اکسیژن مورد نیاز شیمیایی از فاضلاب بیمارستانی استفاده نموده و متوجه شدند که میزان تجزیه اکسیژن مورد نیاز شیمیایی در شرایط بهینه (pH

معادل ۵/۲ و غلظت پراکسید هیدروژن ۴۵ میلی مول بر لیتر) ۹۲/۶ درصد است [۲۰]. تحقیق حاضر با توجه به بحران آلودگی آب پذیرنده و حفظ منابع آب با توجه به آلودگی وسیع منابع آبی ناشی از تخلیه کنترل نشده پساب داروسازی، تحقق استانداردهای تصفیه و در نهایت راه اندازی روش جدید در کشور صورت پذیرفت. هدف این تحقیق بررسی تعیین کارایی حذف استامینوفن از آب آشامیدنی شهری توسط راکتور ناپیوسته پراکسی الکتروشیمیایی مرکب از الکترودهای روی-مس و پراکسید هیدروژن از محلول آبی می باشد.

مواد و روش ها

مواد مورد استفاده در تحقیق نظیر استامینوفن، دترجنت، اسید سولفوریک، سود و پراکسید هیدروژن از شرکت مرک (آلمان) با درجه خلوص بالا تهیه شد. محلول سنتتیک استامینوفن ۱۰۰۰ میلی گرم بر لیتر از طریق انحلال ۱ گرم استامینوفن در ۱۰۰۰ میلی لیتر آب مقطر دوبار تقطیر تهیه شد. با انجام رقیق سازی (با نسبت ۱ به ۲۰، ۶/۶ و ۵) غلظت استامینوفن ۵۰، ۱۵۰ و ۲۰۰ میلی گرم در لیتر آب حاصل شد. نمونه آب از شبکه توزیع آب آشامیدنی تهران تهیه شد. دستگاه های مورد استفاده در تحقیق شامل منبع برق جریان مستقیم مدل ایران جهش (ایران) دارای توان الکتریکی حداکثر ۶۰ وات، همزن مغناطیسی مدل Aika (آلمان) با شدت ۱۰۰ دور در دقیقه برای یکنواخت نمودن نمونه آب، pH متر مدل Hack (آمریکا) و دستگاه کروماتوگرافی مایع را با راندمان بالا مدل Danchrom (ایران) می باشند. موازین اخلاقی در تمام مراحل پژوهش، رعایت و هیچگونه دخل و تصرفی از طرف محقق در مراحل انجام پژوهش صورت نگرفته است.

تهیه الکترودها

محلول دترجنت و آب برای تمیز کردن الکترودها استفاده شد. الکترودها پس از شستشو با آب مقطر توزین، خشک و در راکتور قرار می گرفتند [۲۱، ۲۲]. راکتور ناپیوسته آرایش یک قطبی استفاده شد. ظرف ۲۵۰ میلی لیتر، الکتروود روی و مس با مساحت ۴۰ سانتی متر مربع (مساحت موثر ۳۲ سانتی متر مربع) و فاصله الکترودها ۲ سانتی متر می باشد. کلیه آزمایش ها در دمای

آزمایشگاه (۲۰ درجه سانتی گراد) انجام شد. برای ارزیابی کردن تاثیر جریان مستقیم بر فرآیند حذف و براساس روش طراحی آزمایشات، نمونه ها در pH (۴، ۶ و ۸)، زمان واکنش (۳۰، ۶۰ و ۹۰ دقیقه)، غلظت استامینوفن (۵۰، ۱۵۰ و ۲۰۰ میلی گرم در لیتر)، غلظت پراکسید هیدروژن (۰/۵، ۱ و ۱/۵ میلی گرم در لیتر) و در چگالی جریان (۳، ۶ و ۹ میلی آمپر بر سانتی متر مربع) تحت الکترولیز قرار گرفتند. به این ترتیب تعداد نمونه ها با توجه به روش فاکتوریل ۱۸۹ مورد بدست آمد. آزمایشات پس از کاربرد چگالی جریان و مدت واکنش شامل pH، حرارت و استامینوفن می شوند. اندازه گیری غلظت استامینوفن باقی مانده پس از صاف کردن توسط صافی غشایی Watman (انگلستان) با اندازه ۰/۴۵ میکرون به وسیله دستگاه کروماتوگرافی مایع با راندمان بالا در طول موج ۳۶۰ نانومتر طبق دستورالعمل های موجود در کتاب روش های استاندارد جهت انجام آزمایش های آب و فاضلاب انجام گرفت [۲۳]. اندازه گیری pH و حرارت توسط دستگاه pH متر طبق دستورالعمل های موجود در کتاب روش های استاندارد جهت انجام آزمایش های آب و فاضلاب انجام گرفت. برای تنظیم pH از دستگاه pH متر و محلول اسید سولفوریک و سود ۱ نرمال استفاده شد.

نحوه محاسبات درصد حذف

راندمان حذف استامینوفن در این تحقیق تجربی در مقیاس آزمایشگاهی توسط رابطه (۱) محاسبه شد [۲۴]:

$$\text{Removal (\%)} = \left(1 - \frac{C_t}{C_{t0}}\right) \times 100 \quad \text{رابطه (۱)}$$

که: C_t و C_{t0} به ترتیب غلظت استامینوفن پس از الکترولیز در زمان t و غلظت استامینوفن اولیه در زمان ۰ است.

یافته ها

اثر غلظت استامینوفن و پراکسید هیدروژن

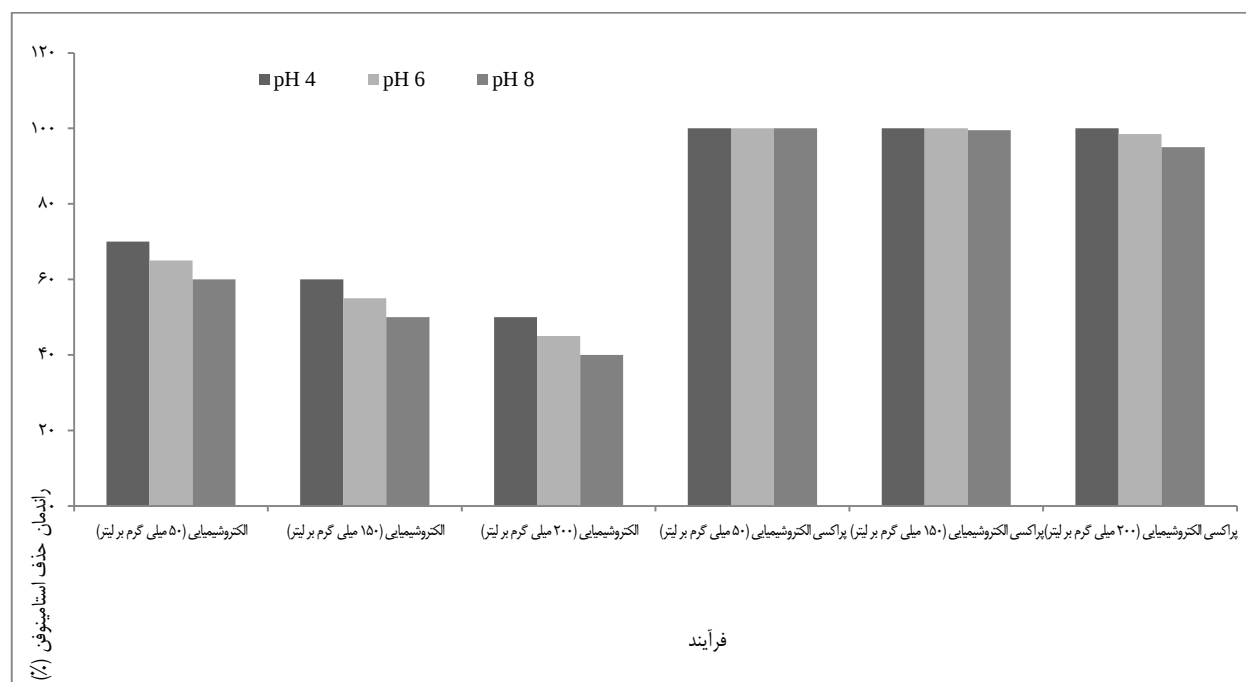
کارایی فرآیند حذف با افزایش غلظت استامینوفن از ۵۰ به ۲۰۰ میلی گرم در لیتر در راکتور الکتروشیمیایی و پراکسی الکتروشیمیایی کاهش یافت (شکل شماره ۱). راندمان حذف غلظت ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر استامینوفن در چگالی جریان ۹

۸۵، ۹۵ و ۱۰۰ درصد در رآکتور پراکسی الکتروشیمیایی بدست آمد.

اثر چگالی جریان و زمان

کارایی حذف غلظت‌های ۲۰۰-۵۰ میلی گرم بر لیتر استامینوفن با افزایش چگالی جریان، غلظت پراکسید هیدروژن و زمان افزایش یافت (جدول ۳-۲). بهترین چگالی جریان در رآکتور الکتروشیمیایی برای بیشینه حذف در pH بهینه ۴، ۹ میلی آمپر بر سانتی متر مربع است. بهترین غلظت پراکسید هیدروژن در رآکتور پراکسی الکتروشیمیایی برای بیشینه حذف استامینوفن در pH ۴، ۶ و ۸، ۱/۵ میلی گرم در لیتر است (شکل شماره ۲).

میلی آمپر بر سانتی متر مربع و زمان ۹۰ دقیقه در pH ۴، ۶ و ۸ به ترتیب ۵۰، ۴۵ و ۴۰ درصد در رآکتور الکتروشیمیایی بدست آمد (جدول شماره ۱). حذف ۱۰۰ درصد استامینوفن در رآکتور غلظت ۱/۵ میلی گرم در لیتر پراکسید هیدروژن پس از ۹۰ دقیقه انجام نشد (جدول شماره ۲). افزایش غلظت استامینوفن از ۵۰ به ۲۰۰ میلی گرم در لیتر و چگالی جریان ۹ میلی آمپر بر سانتی متر مربع به افزایش زمان الکترولیز از ۳۰ دقیقه به ۹۰ دقیقه به ۱۰۰ درصد حذف منجر شد (جدول شماره ۳). راندمان حذف غلظت ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر استامینوفن در غلظت ۱/۵ میلی گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن، چگالی جریان ۹ میلی آمپر بر سانتی متر مربع و pH بهینه ۴ در زمان تماس ۳۰، ۶۰ و ۹۰ دقیقه به ترتیب



شکل ۱- درصد حذف استامینوفن در رآکتور پراکسی الکتروشیمیایی و الکتروشیمیایی (زمان تماس ۹۰ دقیقه، چگالی جریان میلی آمپر بر سانتی متر مربع، غلظت ۱/۵ میلی گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن و pH های مختلف)

Figure 1- The removal percentage of Acetaminophen in Peroxy-electrochemical and Electrochemical reactor (contact time 90 minutes, current density mA/cm², hydrogen peroxide concentration 1.5 mg/L and different pH)

جدول ۱- نتایج اثر الکترولیز در حذف استامینوفن در شرایط بهره برداری متفاوت

Table 1- The results of Electrolysis in removing of Acetaminophen in different operating conditions

راندمان حذف (درصد)										چگالی جریان (میلی آمپر بر سانتی متر مربع)	pH
غلظت ۲۰۰ mg/L			غلظت ۱۵۰ mg/L			غلظت ۵۰ mg/L					
زمان (دقیقه)			زمان (دقیقه)			زمان (دقیقه)					
۹۰	۶۰	۳۰	۹۰	۶۰	۳۰	۹۰	۶۰	۳۰			
۴۰	۳۷	۳۲	۵۰	۴۷	۴۲	۶۰	۵۷	۵۲	۳	معادل ۴	
۴۵	۴۲	۳۸	۵۵	۵۲	۴۸	۶۵	۵۲	۵۸	۶		
۵۰	۴۸	۴۳	۶۰	۵۸	۵۳	۷۰	۶۸	۶۳	۹		
۳۵	۳۲	۲۷	۴۵	۴۲	۳۷	۵۵	۵۲	۴۷	۳	معادل ۶	
۴۰	۳۷	۳۳	۵۰	۴۷	۴۳	۶۰	۵۷	۵۳	۶		
۴۵	۴۳	۳۸	۵۵	۵۳	۴۸	۶۵	۶۳	۵۸	۹		
۳۰	۲۷	۲۲	۴۰	۳۷	۳۲	۵۰	۴۷	۴۲	۳	معادل ۸	
۳۵	۳۲	۲۸	۴۵	۴۲	۳۸	۵۵	۵۲	۴۸	۶		
۴۰	۳۸	۳۳	۵۰	۴۸	۴۳	۶۰	۵۸	۵۳	۹		

جدول ۲- نتایج اثر پراکسید هیدروژن در حذف استامینوفن در شرایط بهره برداری متفاوت

Table 2- The results of hydrogen peroxide in removing of Acetaminophen in different operating conditions

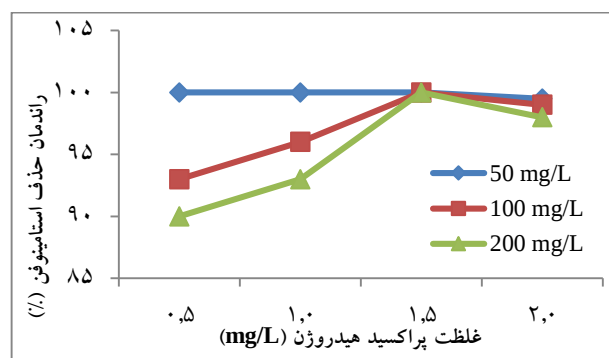
Operating conditions										pH
راندمان حذف (درصد)										
غلظت ۲۰۰ mg/L			غلظت ۱۵۰ mg/L			غلظت ۵۰ mg/L			چگالی جریان (میلی آمپر بر سانتی متر مربع)	
زمان (دقیقه)			زمان (دقیقه)			زمان (دقیقه)				
۹۰	۶۰	۳۰	۹۰	۶۰	۳۰	۹۰	۶۰	۳۰		
۱۴	۱۲/۰	۱۰	۱۵	۱۴	۱۲/۰	۱۷	۱۵	۱۴	۳	
۱۵	۱۴/۵	۱۲/۵	۱۶	۱۵/۵	۱۴/۵	۱۹	۱۷/۵	۱۵/۵	۶	
۱۷	۱۶	۱۵	۱۸	۱۷/۵	۱۶/۵	۲۰	۱۹/۵	۱۸	۹	
۱۲	۱۰/۰	۸	۱۳	۱۲	۱۰/۰	۱۵	۱۳	۱۲	۳	
۱۳	۱۲/۵	۱۰/۵	۱۴	۱۳/۵	۱۲/۵	۱۷	۱۵/۵	۱۳/۵	۶	
۱۵	۱۴	۱۳	۱۶	۱۵/۵	۱۴/۵	۱۸	۱۷/۵	۱۶	۹	
۱۰/۰	۸/۰	۶/۰	۱۱	۱۰/۰	۸/۰	۱۳	۱۱	۱۰	۳	
۱۱	۱۰/۵	۹/۰	۱۲	۱۱/۵	۱۰/۵	۱۵	۱۳/۵	۱۱/۵	۶	
۱۳	۱۲	۱۱	۱۴	۱۳/۵	۱۲/۵	۱۶	۱۵/۵	۱۴	۹	

جدول ۳- نتایج اثر پراکسی الکتروشیمیایی در حذف استامینوفن (غلظت پراکسی هیدروژن ۱/۵ میلی گرم در لیتر، pH معادل ۴، زمان‌های الکترولیز و چگالی جریان‌های مختلف)

Table 3- The results of Peroxyelectrochemical effect in removing of Acetaminophen (peroxyhydrogen concentration 1.5 mg/L, pH equal to 4, different electrolysis times and current densities)

راندمان حذف (درصد)									چگالی جریان (میلی آمپر بر سانتی متر مربع)
غلظت ۲۰۰ mg/L			غلظت ۱۵۰ mg/L			غلظت ۵۰ mg/L			
زمان (دقیقه)			زمان (دقیقه)			زمان (دقیقه)			
۹۰	۶۰	۳۰	۹۰	۶۰	۳۰	۹۰	۶۰	۳۰	
۸۱	۷۸	۷۳	۹۱	۸۸	۸۳	۱۰۰	۹۸	۹۳	۳
۸۸	۸۴	۷۹	۹۸	۹۴	۸۹	۱۰۰	۱۰۰	۹۹	۶
۱۰۰	۹۵	۸۵	۱۰۰	۱۰۰	۹۵	۱۰۰	۱۰۰	۱۰۰	۹

هیدروژن منجر شده است. علیرزاده نشان داد افزایش غلظت رنگ راکتیو پرتغالی ۱۶ از ۵۰ به ۲۵۰ میلی گرم در لیتر در مدت الکترولیز ۵ دقیقه و چگالی جریان ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع به کاهش ۱۰٪ راندمان حذف منجر شده است [۲۵]. افزایش غلظت استامینوفن به افزایش غلظت پراکسید هیدروژن افزودنی منجر می شود. این یافته تحقیق با تحقیق انجام گرفته توسط چلچله و همکاران مطابقت دارد [۲۶]. نتایج نشان دادند رآکتور پراکسی الکتروشیمیایی ناپیوسته در حذف آنتی بیوتیک استامینوفن از آب آشامیدنی شهری موثرتر از رآکتور ناپیوسته الکتروشیمیایی است. مقدار حذف استامینوفن با افزایش pH به علت اکسیداسیون آنیون هیدروکسید در آند کاهش می یابد. بهترین pH برای حداکثر حذف استامینوفن، pH بهینه معادل ۴ به علت افزایش واکنش های شیمیایی به همراه حداکثر تغییرات معدنی شدن و تولید انواع اکسیدکننده های واکنشگر در سیستم به علت افزایش انتقال الکترون میان استامینوفن و الکتروود است. بنهادجی و احمد بهترین pH حذف فاضلاب در جنت با الکتروود گرافیتی، مدت واکنش ۳۰۰ دقیقه و چگالی جریان ۲۲/۷ میلی آمپر بر سانتی متر مربع را pH معادل ۹/۵ اعلام نمودند [۲۷]. یزدان بخش و همکاران مقدار pH بهینه حذف اسید هیومیک از فاضلاب سنتتیک با روش پراکسی الکتروکواگولاسیون را ۳ اعلام نمودند [۲۸]. یها و همکاران مقدار pH بهینه حذف آنتی بیوتیک کاربامازپین با روش انعقاد شیمیایی را ۴ اعلام نمودند [۲۹]. می توان نتیجه گیری نمود که شرایط pH اسیدی به افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل



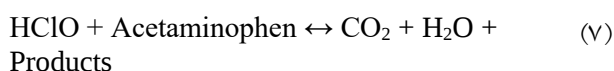
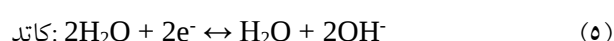
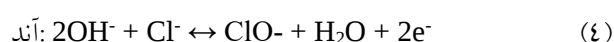
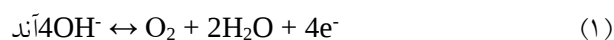
شکل ۲- درصد حذف استامینوفن در رآکتور پراکسی الکتروشیمیایی (زمان تماس ۹۰ دقیقه، pH ۴، چگالی جریان ۹ میلی آمپر بر سانتی متر مربع و غلظت های پراکسید هیدروژن)

Figure 2- The removal percentage of Acetaminophen in the peroxy electrochemical reactor (contact time 90 minutes, pH 4, current density 9 mA/cm² and concentrations of hydrogen peroxide)

بحث

متغیرهای موثر بر فرآیند از قبیل pH، زمان واکنش، غلظت پراکسید هیدروژن و چگالی جریان برای دستیابی به بالاترین درصد حذف استامینوفن، به عنوان آلاینده مدل دارویی بهینه سازی شدند. کارایی حذف به دلیل افزایش غلظت استامینوفن در مقابل چگالی جریان و مقدار ثابت مواد شیمیایی تولید شده نظیر هیدروژن در کاند کاهش یافته است. افزایش غلظت استامینوفن به کاهش میزان واکنش ها منجر می شود. این یافته تحقیق تأییدکننده این نتیجه گیری است که الکترولیز به افزایش تولید

دقیقه منجر می‌شود [۳۵]. افزایش چگالی جریان به کاهش زمان واکنش منجر می‌شود. مکانیسم حذف استامینوفن در فرایند مزبور با استفاده از الکترودهای روی و مس از الگوی زیر پیروی می‌کند:



مکانیسم اصلی واپاشی استامینوفن توسط الکتروشیمیایی را می‌توان به افزایش نیروی رانشی سطح الکتروده به علت افزایش چگالی جریان نسبت داد. بیشینه راندمان حذف غلظت ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر استامینوفن در غلظت بهینه ۱/۵ میلی گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن، چگالی جریان ۹ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، pH معادل ۴ و زمان ۹۰ دقیقه می‌باشد. افزایش غلظت پراکسید هیدروژن از ۰/۵ به ۱/۵ میلی گرم بر لیتر به افزایش راندمان حذف غلظت ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر استامینوفن از ۹۲ به ۱۰۰ درصد در زمان واکنش ۹۰ دقیقه منجر می‌شود که افزایش غلظت پراکسید هیدروژن به ۲ میلی گرم بر لیتر به کاهش راندمان حذف به ۹۸ درصد منجر می‌شود. می‌توان کاهش راندمان در غلظت بیش از بهینه پراکسید هیدروژن را به بازدارندگی تولید رادیکال هیدروکسیل نسبت داد. افزایش پراکسید هیدروژن به کاهش رادیکال هیدروکسیل ناشی از افزایش تولید رادیکال پراکسید به عنوان عامل اسکاونجر منجر می‌شود. پیش آزمون‌ها مقدار همبستگی معناداری مثبت قوی میان غلظت باقی مانده استامینوفن با پراکسید هیدروژن، زمان و چگالی جریان و همبستگی معناداری منفی قوی میان غلظت باقی مانده استامینوفن با pH و غلظت استامینوفن را نشان دادند ($P < 0.05$). هادی و همکاران اثر معنادار نبودن خطی پراکسید هیدروژن و دی اکسید تیتانیوم بر روی مقدار مجموع کربن آلی در سطح ۰/۰۵ و

به علت کاهش پتانسیل احیای سیستم منجر می‌شود. ملاحظات ناشی از تغییرات چگالی جریان و مدت زمان الکترولیز، افزایش کارایی حذف استامینوفن در سه pH ۴، ۶ و ۸ را هنگام افزایش چگالی جریان و مدت زمان الکترولیز تایید می‌کند. تغییرات pH به عنوان سنجشی از معدنی شدن استامینوفن است. pH نمونه پس از الکترولیز در غلظت ۲۰۰ میلی گرم بر لیتر استامینوفن، مدت ۹۰ دقیقه، pH معادل ۴ و چگالی جریان ۴، ۶ و ۸ میلی آمپر در سانتی متر مربع به ترتیب ۵/۵۴، ۵/۵۲ و ۵/۶۴ می‌باشند. می‌توان تغییرات pH هنگام فرآیند پراکسی الکتروشیمیایی را به تولید دی اکسید کربن نسبت داد [۳۰]. تولید رادیکال هیدروکسیل وابسته موجب معدنی شدن استامینوفن می‌شود. افزایش قابلیت دسترسی آنیون هیدروکسید در شرایط اسیدی به افزایش تولید رادیکال هیدروکسیل به علت کاهش پتانسیل احیای سیستم منجر می‌شود [۳۱]. پروتونه و دپروتونه شدن گروه NO_2 استامینوفن وابسته به pH است. مطالعه کریمی و همکاران نشان داد که افزایش pH به کاهش کارایی حذف فوتوکاتالیتیکی آسپرین منجر می‌شود [۳۲]. میزان ثابت مشاهده شده یکنواختی استامینوفن وابسته به pH است و با افزایش pH افزایش می‌یابد [۳۳]. افزایش چگالی جریان و مدت زمان الکترولیز به علت تولید زیادتر مقدار یونها در الکتروده به افزایش کارایی حذف استامینوفن ناشی از پیشرفت میزان واکنش‌های اکسیداسیون مستقیم و غیرمستقیم در آند منجر می‌شود. افزایش چگالی جریان و مدت زمان الکترولیز به بهبود حذف استامینوفن ناشی از افزایش تولید انواع اکسیدکننده‌های واکنشگر از قبیل پراکسید هیدروژن به علت خوردگی آند منجر می‌شود. میرزامحمدی و همکاران چگالی جریان بهینه برای حذف سم دیازینون با روش انعقادشیمیایی/فلوتاسیون را ۶۶/۷ آمپر بر مترمربع اعلام نمودند [۳۴]. افزایش چگالی جریان بیش از ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع به کاهش راندمان حذف به دلیل واپاشی رادیکال هیدروکسیل منجر می‌شود. زیرا افزایش چگالی جریان به همراه افزایش دما است که به واپاشی رادیکال هیدروکسیل و کاهش راندمان حذف منجر می‌شود. مسعودی نژاد و همکاران نشان دادند که افزایش جریان از ۱۰ به ۲۰ ولت به افزایش راندمان حذف توده باکتری‌های فاضلاب بیمارستانی از ۵۳/۸ به ۹۰/۱ درصد در زمان واکنش ۳۰

به عنوان روشی عملی نوین و باصرفه جهت تصفیه محیط‌های آبی آلوده به پساب دارویی استفاده شود. برای مطالعات آینده پیشنهاد می‌شود که اثر تداخل متغیرهای شیمیایی کیفیت آب بر راندمان حذف پراکسی الکتروشیمیایی استامینوفن و اثر تشدیدکنندگی ترکیب رآکتور پراکسی الکتروشیمیایی ناپیوسته با انواع الکترودهای دیگر در حضور دیگر عوامل دارویی نیز بررسی گردد.

تشکر و قدردانی

این مقاله حاصل بخشی از پایان‌نامه با عنوان بررسی راندمان حذف داروی استامینوفن توسط روش پراکسی الکتروشیمیایی می‌باشد. نویسندگان مقاله از حمایت آزمایشگاهی گروه مهندسی بهداشت محیط و مرکز تحقیقات پالایش آب دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم پزشکی تهران تشکر می‌نمایند.

تضاد منافع

در این مطالعه نویسندگان هیچگونه تضاد منافی ندارند.

References

- 1- Yousefichaijan P, Ghafari MOS, Taher Ahmadi H, Farajzadeh L, Zamamiyan A. Comparison between antipyretic effects of Acetaminophen and Ibuprofen monotherapy with alternative regimen of both drugs in children aged 6 Months to 12 Years. Journal of Arak University of Medical Sciences 2014; 17(4):82-88 (In Persian).
- 2- Quesada HB, Baptista ATA, Cusioli LF, Seibert D, De Oliveira Bezerra C, Bergamasco R. Surface Water pollution by pharmaceuticals and an alternative of removal by low-cost adsorbents: A review. Chemosphere 2019; 222: 766-80. Doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.02.009.
- 3- Duong M, Gulmez SE, Salvo F, Abouelfath A, Lassalle R, Droz C, et al. Usage Patterns of paracetamol in France. British Journal of Clinical Pharmacology 2016; 82(2):498-503.
- 4- Azami-Aghdash S, Mohseni M, Etemadi M, Royani S, Moosavi A, Nakhaee M. Prevalence and cause of self-medication in Iran: A Systematic

معناداری اثر درجه دوم آن‌ها بر روی مقدار مجموع کربن آلی را نشان دادند [۳۶]. اصلانی و نبی‌زاده کارایی بیش‌تر افزودن پراکسید هیدروژن به یون‌های مس و نقره را در غیرفعال‌سازی اسپور باسیلوس سوبتیلیس اعلام نمودند [۳۷]. مقدم ارجمند و همکاران نشان دادند که افزایش جریان الکتریکی به افزایش نابودی اسپورهای باسیلوس سوبتیلیس به علت تولید الکتروشیمیایی اکسیدان‌های قوی در الکتروود آند منجر می‌شود [۳۸]. بررسی هزینه فرآیند از جمله نقطه قوت تحقیق محسوب می‌شود. عدم بررسی راندمان حذف فرآیند پراکسی الکتروشیمیایی در حضور متغیرهای شیمیایی کیفیت آب از جمله محدودیت‌های این تحقیق محسوب می‌شود.

نتیجه‌گیری

این تحقیق با هدف مقایسه راندمان حذف استامینوفن، به عنوان آلاینده داروی هدف، در فرآیندهای الکتروشیمیایی و پراکسی الکتروشیمیایی انجام گرفت. نتایج این تحقیق نشان می‌دهد که فرایند پراکسی الکتروشیمیایی در مدت زمان کم از توانایی و کارایی مناسب حذف استامینوفن از محیط آبی برخوردار است. مقدار حذف استامینوفن با افزایش چگالی جریان، افزایش مدت زمان الکترولیز و کاهش غلظت استامینوفن افزایش می‌یابد. بنابراین روش پراکسی الکتروشیمیایی ناپیوسته می‌تواند

Review and Meta-Analysis article. Iranian Journal of Public Health 2015; 44(12):580-93.

5- Hashemian F, Roohi E. Exploring cytotoxic drugs residues in hospital effluents: A Narrative Review. Medical Science Journal of Islamic Azad University- Tehran Medical Branch 2019; 29(4): 284-95(In Persian).

6- Nannou C, Kaprara E, Psaltou S, Salapasidou M, Palasantza PA, Diamantopoulos P, et al. Monitoring of a broad set of pharmaceuticals in wastewaters by high-resolution mass spectrometry and evaluation of heterogenous catalytic ozonation for their removal in a pre-industrial level unit. Analytica 2022; 3(2):195-212.

7- Yazdanbakhsh AR, Massoudinejad M, Elyasi S. An experimental investigation of proxy electrocoagulation process efficiency for COD removal from Azithromycin contaminated aqueous

- solution. *Journal of Health in the Field* 2014; 2(2):11-17 (In Persian).
- 8- Oghazyan A, Yazdanbakhsh A, Eslami A, Asadi A. Removal of Ibuprofen from aqueous solutions by ozonation process. *Journal of Health in the Field* 2016; 4(3):9-17 (In Persian).
- 9- Prego-Domínguez J, Takkouche B. Takkouche, paracetamol intake and hematologic malignancies: A Meta-Analysis of observational studies. *Journal of Clinical Medicine*, 2021; 10(11):2429. Doi://doi.org/10.3390/jcm10112429.
- 10- Ghannadi M. Drugs in water: Environmental concerns, an alarming truth. *Journal of Water and Wastewater Science and Engineering* 2018; 3(3):3-16 (In Persian).
- 11- Kashi G, Potkee M. Investigation electro-photocatalytic removal of acetaminophen from drinking water. *Journal of Safety Promotion and Injury Prevention* 2016; 4(3):175-84 (In Persian).
- 12- Shahamat YD, Farzadkia M, Nasser S, Mahvi AH, Gholami M, Esrafiy A. Evaluation of toxicity reduction, mineralization, and treatability of phenolic wastewater treated with combined system of catalytic ozonation process/biological reactor (SBR). *Iranian Journal of Health and Environment* 2015; 8(3):e331-44 (In Persian).
- 13- Nourieh N, Nabizadeh R, Faramarzi MA, Nasser S, Yaghmaeian K, Mahmoudi B, et al. Photocatalytic degradation of ketoconazole by Z-Scheme Ag₃PO₄/Graphene Oxide: Response surface modeling and optimization. *Environmental Science and Pollution Research* 2020; 27(1):250-63. Doi://doi.org/10.1007/s11356-019-06812-5.
- 14- Khan AH, Khan NA, Ahmed S, Dhingra A, Singh CP, Khan SU, et al. Application of advanced oxidation processes followed by different treatment technologies for hospital wastewater treatment. *Journal of Cleaner Production* 2020; 269:122411. Doi: 10.1016/j.jclepro.2020.122411.
- 15- Samarghandi M, Rahmani A, Darabi Z, Mehralipour J. Performance evaluation of electroproxone process in degradation of ceftriaxone pharmaceutical compound from synthetic solution. *Iranian Journal of Health and Environment* 2020; 12(4):515-30 (In Persian).
- 16- Assadi A, Naseri S, Mohammadian Fazli M. Investigation of Phenol removal by proxy-electrocoagulation process with iron electrodes from aqueous solutions. *Journal of Human Environment and Health Promotion* 2017; 2(4):212-19.
- 17- Li Z, Yuan S, Qiu C, Wang Y, Pan X, Wang J, et al. Effective degradation of refractory organic pollutants in landfill leachate by electro-peroxone treatment. *Electrochimica Acta* 2013; 102:174-82.
- 18- Khani M, Mahvi A, Zazouli M, Yousefi Z, Shahamat YD. Investigating the treatment and mineralization of olive oil mill wastewater by using electrocoagulation and novel various advanced oxidations: A kinetic study. *Iranian Journal of Health and Environment* 2019; 12(1):47-62 (In Persian).
- 19- Kord Mostafapour F, Bazrafshan E, Belarak D, Khoshnamvand N. Survey of Photo-catalytic degradation of ciprofloxacin antibiotic using copper oxide nanoparticles (UV/CuO) in aqueous environment. *Journal of Rafsanjan University of Medical Sciences* 2016; 15(4):307-18 (In Persian).
- 20- Bina B, Hajizadeh Y, Karimi S, Ahmadnia H, Meserghani M. Efficiency of electro-persulfate process optimized with hydrogen peroxide in removal of hospital wastewater COD by response surface methodology. *Journal of Rafsanjan University of Medical Sciences* 2018; 17(5):407-20 (In Persian).
- 21- Aliannejad S, Kashi G, Khezri SM, Mashinchian A. Removal of Fluoride from Drinking Water Using an Electrocoagulation Reactor, Batch Experiments. *Safety Promotion and Injury Prevention* 2014; 2(1):47-54 (In Persian).
- 22- Kashi G, Nayerloo N. Choosing the most suitable Electrode for drinking water treatment by electrochemical process. *Journal of Health in the Field*, 2021; 9(1):68-79 (In Persian).
- 23- Baird R, Eaton A, Rice E, Bridgewater L. Standard methods for the examination of water and wastewater. Washington, DC: American Public Health Association, United State of America; 2017.
- 24- Kashi G, Hydarian N. Optimization electrophotocatalytic removal of sulfanilamide from aqueous water by Taguchi model. *Journal of Mathematics* 2019; 6(10):50-3.
- 25- Alizadeh M, Mahvi AH, Mansoorian HJ. The survey of electrocoagulation process for removal dye reactive orange 16 from aqueous solutions using sacrificial iron electrodes. *Iranian Journal of Health, Safety and Environment* 2014; 1(1):1-8.
- 26- Noroozi Cholchek M, Fadaei A, Mohammadi-Moghadam F, Mardani G. Efficiency of advanced H₂O₂/ZnO oxidation process in ceftriaxone antibiotic removal from aqueous solutions. *Journal of Water and Wastewater* 2017; 28(5):39-47 (In Persian).
- 27- Benhadji A, Ahmed MT. Detergent removal from rinsing water by peroxi electrocoagulation process. *International Journal of Environmental and Ecological Engineering* 2019; 13(10):607-10.
- 28- Yazdanbakhsh AR, Kermani M, Komasi S, Aghayani E, Sheikhmohammadi A. Humic acid

removal from aqueous solutions by peroxi-electrocoagulation process. *Environmental Health Engineering and Management Journal* 2015; 2(2):53-58.

29- Yehya T, Favier L, Kadmi Y, Audonnet F, Fayad N, Gavrilescu M, et al. Removal of Carbamazepine by electrocoagulation: Investigation of some key operational parameters. *Environmental Engineering & Management Journal* 2015; 14(3):639-45.

30- Biglari H, Bazrafshan E. Performance evaluation of electrochemical process using iron and aluminum electrodes in phenol removal from synthetic aqueous environment. *Iranian Journal of Health and Environment* 2013; 5(4):445-56 (In Persian).

31- Kashi G. Optimization of electrochemical process for phenanthrene removal from aqueous medium by Taguchi. *Toxicological & Environmental Chemistry* 2017; 99(5-6):772-82.

32- Karimi P, Baneshi MM, Malakootian M. Photocatalytic degradation of Aspirin from aqueous solutions using the UV/ZnO process: Modelling, analysis and optimization by response surface methodology (RSM). *Desalination and Water Treatment* 2019; 161:354-64.

33- Nematollahi D, Barnaji BF, Amani A. Electrochemical synthesis and kinetic evaluation of electrooxidation of Acetaminophen in the presence of antidepressant drugs. *Iranian Journal of Pharmaceutical Research* 2015; 14(4):1115-22.

34- Mirzamohammadi H, Daraei H, Shahmoradi B, Gharibi F, Maleki A. An Investigation of electrocoagulation-flotation process and alternating pulse current in diazinon removal from aqueous solutions. *Journal of Mazandaran University of Medical Sciences* 2017; 27(147):322-38 (In Persian).

35- Massoudinejad M, Khashij M, Soltanian M. Survey of electrocoagulation process in the removal of pathogen bacteria from wastewater before discharge in the acceptor water. *Journal of Safety Promotion and Injury Prevention* 2014; 2(1):9-14 (In Persian).

36- Hadi M, Solaimany Aminabad M, Amiri M, Arjipour M. Optimization of UV/H₂O₂/TiO₂ process for the treatment of hospital effluent. *Iranian Journal of Health and Environment* 2018; 11(3):293-306 (In Persian).

37- Aslani H, Nabizadeh R. Effect of combined disinfection techniques for inactivation of B. Subtilis Spores. *Iranian Journal of Health and Environment* 2016; 8(4):481-90 (In Persian).

38- Mogadam Arjmand A, Rezaee M, Naseri S, Eshraghi S. Study of sodium chloride supporting electrolyte on electrochemical removal of Bacillus Subtilis Spores from drinking water. *Iranian Journal of Health and Environment* 2015; 8(1):81-88 (In Persian).