

مقاله پژوهشی

مجله دانشگاه علوم پزشکی رفسنجان

دوره ۱۷، مرداد ۱۳۹۷، ۴۲۰-۴۰۷

بررسی کارایی فرآیند الکتروپرسولفات بهینه شده با پرکسید هیدروژن در حذف COD فاضلاب بیمارستانی به کمک روش سطح پاسخ

بیژن بینا^۱، یعقوب حاجی زاده^۲، سارا کریمی^۳، هاله احمدنیا^۴، مریم مصرقانی^۵

دریافت مقاله: ۹۶/۷/۴ ارسال مقاله به نویسنده جهت اصلاح: ۹۶/۱۰/۴ دریافت اصلاحیه از نویسنده: ۹۷/۲/۱۵ پذیرش مقاله: ۹۷/۳/۵

چکیده

زمینه و هدف: فاضلاب‌های بیمارستانی دارای ترکیبات مقاومی مثل عوامل میکروبی، دترژنت‌ها، ترکیبات آلی‌هالوژن دار، هورمون‌ها، آنتی بیوتیک‌ها، ایزوتوپ‌های رادیواکتیو است که از فعالیت‌های مختلف درمانی و تحقیقاتی تولید می‌گردد. هدف این مطالعه حذف اکسیژن مورد نیاز شیمیایی COD (Chemical Oxygen Demand) فاضلاب بیمارستانی توسط روش الکتروپرسولفات بهینه شده با استفاده از روش سطح پاسخ است.

مواد و روش‌ها: در این مطالعه آزمایشگاهی، از یک رآکتور الکتروشیمیایی مجهز به ۴ الکتروده میله ای آهنی، متصل به یک منبع برق مستقیم به منظور حذف COD فاضلاب استفاده شد. متغیرهای مستقل (دانسیته جریان، غلظت پرسولفات، غلظت پرکسید هیدروژن و pH اولیه) در برابر حذف COD به عنوان متغیر پاسخ، توسط نرم‌افزار Design Expert 8.0.6 با روش سطح پاسخ، بررسی و مدل پیشنهادی توسط آنالیز واریانس ANOVA تحلیل شد.

یافته‌ها: کارایی فرآیند حذف COD در شرایط بهینه در pH برابر با ۵/۲، غلظت پرسولفات ۳۱ میلی‌گرم در لیتر، دانسیته جریان ۴۰ میلی‌آمپر بر سانتی‌متر مربع و غلظت پرکسید هیدروژن ۴۵ میلی‌مول بر لیتر برابر با ۹۲/۶ درصد به دست آمد. میزان بالای ضریب تعیین برابر با ۹۲/۴ درصد و مقدار پایین ضریب تغییرات برابر با ۴/۵۸ درصد به دست آمد.

نتیجه‌گیری: روش سطح پاسخ نشان داد که بین مقادیر پیش‌بینی شده توسط مدل و نتایج حاصل از آزمایش‌ها تطابق وجود دارد. استفاده همزمان از دو واکنش‌گر (پرکسید هیدروژن و پرسولفات) راندمان حذف COD را افزایش می‌دهد. بنابراین به نظر می‌رسد، فرآیند الکتروپرسولفات با پرکسید هیدروژن یک روش کارآمد برای حذف COD فاضلاب باشد. طراحی آزمون به روش سطح پاسخ از طریق کاهش تعداد آزمون‌ها، بهترین شرایط حذف COD را نشان می‌دهد.

واژه‌های کلیدی: الکتروپرسولفات، پرکسید هیدروژن، COD، فاضلاب بیمارستانی، روش سطح پاسخ

۱- استاد گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران

۲- استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران

۳- کارشناس مسئول گروه بهداشت محیط، مرکز بهداشت غرب تهران، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

۴- رئیس مرکز بهداشت غرب تهران، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

۵- دانشجو دکترا بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اصفهان، اصفهان، ایران

تلفن: ۰۲۱-۶۶۰۲۳۰۴۱، دورنگار: ۰۲۱-۶۶۰۱۹۳۱، پست الکترونیک: m_eserghany@yahoo.com

مقدمه

فعال پودری (Powder activated carbon) (PAC)

جهت حذف COD و ۶۶ ترکیبات دارویی، بهره جست و نشان داد که با ۵ mg/l کربن فعال با زمان تماس ۵ ساعت تنها ۹ ترکیب دارویی به راندمان حذف ۵۰ درصد می رسند و مشکل تصفیه و دفع لجن دفعی هم چنان باقی می ماند [۱۱].

در مطالعات مختلفی از فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته (AOPs) جهت تصفیه فاضلاب بیمارستانی استفاده شده است [۱۲-۱۳]. Liu و همکاران با استفاده از فرآیند الکترواکتیو پرسولفات در تجزیه هیدروکلراید تتراسایکلین نشان داد که در ۲۴۰ دقیقه زمان تماس و میزان pH اولیه ۴/۲ و غلظت پرسولفات ۱۲/۶ میلی مول ۸۱ درصد تتراسایکلین حذف شد [۱۴].

به طور کلی فرآیندهای اکسیداسیون یکی از پیشرفته ترین، مؤثرترین و کارآمدترین فن آوری برای تجزیه و حذف آلاینده های آلی خطرناک، مقاوم و غیرقابل تجزیه بیولوژیکی در محیط های آبی می باشند و از جمله فرآیندهای AOP فرآیندهای فتوکاتالیستی، الکتروکواگولاسیون، ازن/پراکسید هیدروژن، واکنش های فنتون و فوتوفنتون برای حذف آلاینده ها از محیط آبی مورد استفاده قرار گرفته اند [۱۵-۱۶]. مکانیسم اصلی این فرآیندها بر اساس تولید رادیکال های هیدروکسیل (OH) می باشد. این رادیکال ها تقریباً قادرند اکثر ترکیبات آلی را با سرعت و غیر گزینشی اکسید نمایند. اخیراً فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته مبتنی بر تولید رادیکال سولفات (SO_4^-) در حذف آلاینده های آلی مقاوم از محیط های آبی به طور چشمگیری مورد توجه قرار گرفته است [۱۷].

فاضلاب بیمارستانی به دلیل فعالیت های بیمارستان در دو بخش درمان و غیر درمانی تولید می گردد. بنابراین به دو زیرمجموعه فاضلاب خانگی و فاضلاب ویژه تقسیم می گردد [۱]. فاضلاب خانگی شامل فاضلاب بخش های آشپزخانه، رختشوخانه و بخش های معمولی بیمارستان می باشد و فاضلاب ویژه، فاضلاب تولیدی در بخش های درمانی مانند اتاق عمل و بخش های تشخیصی مانند آزمایشگاه و واحدهای تحقیقی است [۲]. فاضلاب ویژه به دلیل دارا بودن خطرات بالقوه بهداشتی و زیست محیطی بایستی با روش های صحیح جمع آوری، تصفیه و پس از رسیدن به استاندارد تخلیه، دفع گردد [۳-۴].

کمیت و کیفیت فاضلاب تولیدی در بیمارستان ها به تعداد تخت فعال، قدمت بیمارستان، میزان دسترسی به آب، نوع خدمات و سرویس های موجود در بیمارستان تعداد و نوع بخش ها، شرایط آب و هوایی، وضعیت فرهنگی، قوانین و دستورالعمل های ملی و سیاست های مدیریتی بستگی دارد [۵-۶]. پارامترهای متداول ارزیابی کمی و کیفی فاضلاب بیمارستانی شامل سرانه مصرف آب به ازای هر تخت در روز، pH، دما، میزان اکسیژن خواهی شیمیایی (COD)، میزان کسیرن خواهی بیوشیمیایی (BOD) و کل جامدات معلق، میزان کلی فرم کل و کلی فرم مدفوعی است [۷-۸].

اخیراً مطالعات فراوانی جهت تصفیه فاضلاب بیمارستانی با کمک روش های فیزیکوشیمیایی، بیولوژیکی انجام شده است [۹-۱۰]. در مطالعه ای Snyder و همکاران از کربن

نسبت به رادیکال‌های هیدروکسیل قابلیت انتخابی (گزینشی) بیشتری برای اکسیداسیون ترکیبات آلی مورد هدف دارد. ۴) رادیکال‌های سولفات پس از اکسیداسیون به سولفات غیر سمی تبدیل می‌شوند؛ بنابراین به هیچ گونه تصفیه بعدی نیاز ندارند [۲۱-۲۲]. بنابراین پرسولفات سدیم ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8$) که در این تحقیق به عنوان منبع پراکسید استفاده می‌شود، یک عامل اکسید کننده پایدار و قوی می‌باشد ($E^\circ = 2.01 \text{ V}$) که با قابلیت حلالیت بالا می‌تواند به طور کامل تری بوسیله SO_4^- تجزیه و اکسید شوند [۲۳-۲۴].

هدف این مطالعه بهینه‌سازی فرآیند الکتروپرسولفات با استفاده همزمان واکنش‌گر پراکسید هیدروژن در کاهش بارآلی فاضلاب بیمارستانی با کمک آنالیز روش سطح پاسخ می‌باشد.

مواد و روش‌ها

این مطالعه آزمایشگاهی به صورت طرح پایلوت در سیستم ناپیوسته انجام شد. نمونه فاضلاب مورد آزمایش از پساب حاصل از سیستم لجن فعال یک بیمارستان واقع در مناطق جنوبی شهر تهران در سه نوبت در اواسط هر ماه طی فصل زمستان ۹۴ برداشت گردید. نمونه در شرایط استاندارد به آزمایشگاه معتمد محیط زیست منتقل و مورد آزمایش قرار گرفت. پارامتر (pH - دما - هدایت الکتریکی) در محل توسط دستگاه پورتابل pH متر (Hack(HQ-USA)، EC متر مدل Lovibond آلمان قرائت گردید. به منظور تعیین دیگر پارامترها نظیر (کل جامدات معلق - میزان اکسیژن خواهی شیمیایی (COD) - میزان

رادیکال‌های سولفات معمولاً از طریق فعال‌سازی اکسیدان‌هایی از قبیل [پروکسی منو سولفات (PMS, HSO_5^-) یا اوکسون (Oxone , HSO_5^-)] و [پروکسی دی سولفات (PDS , $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$) یا پرسولفات (PS , $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$)] با استفاده از حرارت، اشعه ماورا بنفش، امواج اولتراسونیک، یون‌های فلزی واسطه مثل Co^{2+} , Fe^{2+} را تولید کنند [۱۸]. پراکسیدهای H_2O_2 , PS و PMS دارای ساختار مشابهی بوده و همگی دارای پیوند O-O می‌باشند. یک اتم هیدروژن در H_2O_2 بوسیله SO_3 برای تولید HSO_5^- و دو اتم هیدروژن در H_2O_2 بوسیله SO_3 برای تشکیل $\text{S}_2\text{O}_8^{2-}$ جایگزین شده است [۱۴]. هر سه این پروکسیدها توانایی محدودی برای اکسیداسیون ترکیبات آلی به صورت تنها و مستقل را دارند، اما با استفاده از یک فعال کننده می‌توانند رادیکال‌های سولفات و هیدروکسیل را با پتانسیل اکسیداسیون و احیاء به ترتیب ($2/5-3/17 \text{ V}$) و ($1/8-2/77$) تولید نمایند که توانایی اکسید نمودن اکثر آلاینده‌های آلی را در تصفیه آب و فاضلاب دارند [۲۰-۱۹].

به طور کلی مزایای فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته بر اساس رادیکال سولفات (SR-AOPs) نسبت به فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته بر اساس رادیکال هیدروکسیل (HR-AOPs) عبارتند از: ۱) رادیکال‌های سولفات ($E_o = 2.5-3.1 \text{ V}$) اکسید کننده بسیار کارآمد، مؤثرتر و قوی‌تر از رادیکال‌های هیدروکسیل ($E_o = 1.89-2.72 \text{ V}$) می‌باشند. ۲) رادیکال‌های سولفات ($\text{half-life} = 30-40 \mu\text{s}$) نسبت به رادیکال‌های هیدروکسیل ($\text{half-life} = 10^{-3} \mu\text{s}$) دارای نیمه عمر طولانی‌تر می‌باشند. ۳) رادیکال‌های سولفات

اکسیژن خواهی بیولوژیکی (BOD) - تعداد کل کلی فرم و کلی فرم مدفوعی) مطابق کتاب روش‌های استاندارد آب و فاضلاب مورد آزمایش و تعیین گردید [۲۵] و تجهیزات مربوط به واحد الکتروشیمیایی شامل یک مخزن به ابعاد $11 \times 10 \times 10$ cm از جنس پلکسی گلاس و با حجم مؤثر ۸۸۷ میلی‌لیتر بود. ۴ عدد الکترود آهنی میله‌ای به ابعاد (10×1) cm و سطح مؤثر $113/04$ cm² با فاصله ۱/۳ در داخل مخزن قرار گرفته‌اند. الکترودها با آرایش تک قطبی و به صورت موازی به یک منبع تغذیه جهت تبدیل برق شهری به جریان مستقیم متصل شدند. جهت سنجش مشخصات جریان از یک مولتی‌متر دیجیتال استفاده شد. جهت اندازه‌گیری میزان اکسیژن خواهی شیمیایی (COD) از دستگاه اسپکتوفتومتر (Hack USA--DR5000) استفاده گردید.

در هر بار آزمایش راکتور با ۸۸۰ میلی‌لیتر فاضلاب پر شد. به منظور بررسی تأثیر پارامترهای مستقل بر میزان کارایی فرآیند، آزمایش در مقادیر مختلف pH، دانسیته جریان، غلظت $Na_2S_2O_8$ و غلظت پرکسید هیدروژن انجام گرفت. نمونه‌ها پس از ۶۰ دقیقه از میانه راکتور برداشت شدند و از یک فیلتر ۴۵ میکرونی عبور و میزان COD قرائت گردید. در طی واکنش از یک همزن مغناطیسی با دور ۲۰۰ rpm استفاده شد. کلیه آزمایشات در دمای محیط انجام گرفت. مواد مورد استفاده در این مطالعه عبارتند از محلول پرکسید هیدروژن (۳۵ درصد)، پرسولفات سدیم ($Na_2S_2O_8$) (۹۸ درصد)، اسید سولفوریک و هیدروکسید سدیم از شرکت مرک آلمان تهیه شده بود.

در این مطالعه از روش سطح پاسخ بر مبنای طراحی باکس بنکن جهت ارزیابی اثر متغیرهای مستقل بر متغیر پاسخ و پیشگویی بهترین مقدار پاسخ استفاده شد. در این روش با تعیین حدود بیشینه و کمینه برای هر متغیر، ماتریس آزمایش طراحی گردید [۲۷] به این ترتیب تعداد آزمون‌ها و سطوح هر متغیر مشخص شد به ویژه زمانی که تعداد متغیرها زیاد باشد [۲۸] این روش در مقایسه با روش‌های پرحجمی مانند فاکتوریل کامل بدلیل (۱) کاهش تعداد آزمون‌ها، (۲) نتایج آماری قابل اعتماد، (۳) تسهیل و ساده‌سازی روند تحقیق، (۴) کاهش زمان و هزینه‌ها، (۵) مشخص کردن حساسیت پاسخ در برابر هر فاکتور و (۶) بررسی متغیرهای پیوسته مزیت دارد [۲۹] در مطالعه حاضر، غلظت پرسولفات ($Na_2S_2O_8$)، میزان دانسیته جریان، غلظت پرکسید هیدروژن، pH اولیه واکنش متغیرهای مستقل واکنش بودند و میزان حذف COD به عنوان متغیر پاسخ مورد مطالعه قرار گرفت. جهت طراحی آزمایشات و شرایط بهینه از طرح مرکب مرکزی (CCD) از روش سطح پاسخ (RSM) توسط نرم‌افزار 8.0.6 Design Expert برای تجزیه و تحلیل داده‌ها استفاده شد. با توجه به وجود ۴ متغیر در انجام آزمایش با استفاده از دستگاه آزمون‌گر، تعداد کل آزمایش‌های لازم ۳۰ آزمایش (۶ نقطه مرکزی، ۸ نقطه ستاره، ۱۶ نقطه محوری) محاسبه گردید. مقادیر کدگذاری شده متغیرهای مستقل مطابق جدول ۱ در پنج سطح (۲، -۱، ۰، +۱، +۲) طراحی شد. برای پیش‌بینی شرایط بهینه از معادله زیر استفاده گردید [۳۰].

انجام پذیرفت. کیفیت برازش مدل چند جمله‌ای با ضریب R^2 بیان شد. به منظور انتخاب مدل‌های تجربی برای پیش‌بینی پاسخ، رابطه خطی (Linear)، چند جمله‌ای درجه دوم (Quadratic) و سوم (Cubic) بر داده‌های بدست آمده از آزمایش‌ها برازش شدند. از نظر آماری مدلی مناسب است که آزمون برازش آن معنی‌دار نباشد و بالاترین مقدار R^2 ، $R^2_{adjusted}$ (تعدیل شده)، $R^2_{predicted}$ (پیش‌بینی شده) بالاتری داشته و مجموع مربعات باقی مانده (خطای پیش‌بینی) را داشته باشند [۲۶].

$$\eta = \beta_0 + \sum_{j=1}^k \beta_j x_j + \sum_{j=1}^k \beta_{jj} x_j^2 + \sum_{i < j=2}^k \sum \beta_{ij} x_i x_j + \epsilon_i$$

که در آن پاسخ پیش‌بینی شده، X_i و X_j متغیرها، ضریب ثابت، j ، ij و jj به ترتیب ضرایب متقابل خطی، مربعی و درجه دوم، و ϵ_i خطا است. در نهایت با تحلیل نتایج بدست آمده و مقایسه با نتایج پیش‌بینی شده مدل روش سطح پاسخ میزان تطابق این دو با سطح اطمینان بالاتر از ۹۵ درصد بررسی گردید. آنالیز واریانس (ANOVA) برای ارزیابی اثرات معنی‌دار متغیرهای مستقل بر روی متغیر پاسخ یعنی راندمان حذف COD

جدول ۱ - نقاط آزمایشی متغیرهای مستقل و سطوح مقادیر تجربی آنها

متغیرهای مستقل	واحد	مقادیر کد گذاری شده				
		-	-۱	۰	+۱	+
(A) pH	-	۲/۵	۴	۵/۵	۷	۸/۵
میزان پرسولفات (B)	میلی‌گرم در لیتر	۲۰	۲۵	۳۰	۳۵	۴۰
میزان دانسیته جریان (C)	میلی‌آمپر بر سانتی‌متر مربع	۱۰	۲۰	۳۰	۴۰	۵۰
میزان پراکسید هیدروژن (D)	میلی‌مول بر لیتر	۳۵	۴۰	۴۵	۵۰	۵۵

نتایج

BOD, TSS، کلی فرم کل و کلی فرم مدفوعی از پساب خروجی از واحد تصفیه لجن فعال در جدول ۲ آمده است. با توجه به اینکه میزان COD فاضلاب برابر با mg/L 348 ± 25 بدست آمد. در طی این مطالعه میزان COD آزمایش برابر با mg/L ۴۰۰ به عنوان میزان ورودی به راکتور الکتروشیمیایی تنظیم شد.

در زمان این پژوهش، بیمارستان مورد مطالعه دارای ۲۰۰ تخت ثابت و ۱۲۰ تخت فعال بود. از سیستم لجن فعال با هوادهی سطحی با ظرفیت $21 \text{ m}^3/\text{d}$ به عنوان واحد تصفیه استفاده و نهایتاً پساب سیستم وارد چاه جاذب می‌گشت. میزان مصرف آب $56 \text{ m}^3/\text{d}$ بود. نتایج بدست آمده از آزمایش‌های انجام شده بر روی COD،

جدول ۲- ویژگی میکروبی و شیمیایی پساب خروجی از واحد تصفیه لجن فعال متعارف

FC (MPN/100ml)	TC (MPN/100ml)	TDS (mg/l)	TSS (mg/l)	COD mg/l	BOD (mg/l)	pH	نوع آزمایش
۲۴۰۰	۲۴۰۰	۳۸۰	۱۲۳	۳۴۸	۱۵۸	۷/۵	مقدار
۴۰۰	۱۰۰۰	-	-	۶۰	۵۰	۵-۹	استاندارد خروجی دفع پساب به چاه جاذب (۳۱)

بالاتر از آن باشد [۳۲] بدین ترتیب مدل پیشنهادی برای برآورد مقدار راندمان حذف COD مطابق رابطه ۱ تعیین گردید. نتایج آنالیز واریانس عوامل مدل مرتبه دوم پاسخ سطح در حذف COD در جدول ۳ نشان داده شده است.

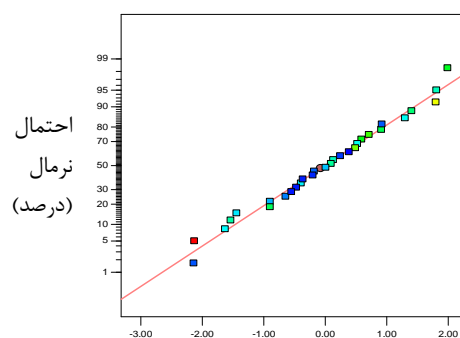
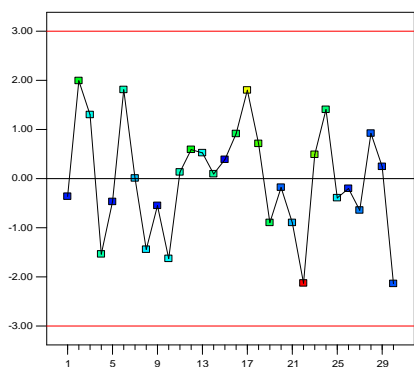
$$-Y = ۴۲/۴۸ + ۳۲۵/۰۵ (pH) + ۳/۱۹ (PS \text{ dose}) + ۰/۱۷ (H_2O_2 \text{ dose}) + ۱۱/۲۳ (\text{current density}) + ۰/۱۱ (PS \text{ dose})^2 - ۰/۱۵ (H_2O_2 \text{ dose})^2$$

رابطه ۱:

امروزه استفاده از روش سطح پاسخ (RSM) جهت طراحی آزمایش به صورت گسترده ای مورد استفاده قرار می گیرد [۲۸-۲۹]. در این مطالعه نتایج برازش مدل های مختلف بر داده های بدست آمده در حذف COD مدل مرتبه دوم (Quadratic) برازش بالاتری داشت. میزان ضریب تعیین R^2 برابر با ۹۲/۴ درصد، $R^2_{adjusted}$ برابر ۸۹/۶ درصد بدست آمد. شایان ذکر است هر چه قدر مقادیر R به ۱ نزدیک باشد بیانگر مطابقت بالای نتایج حاصل از مدل با نتایج واقعی یا آزمایشگاهی است و بایستی ۰/۸ و

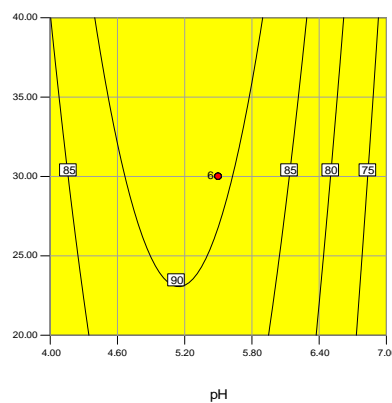
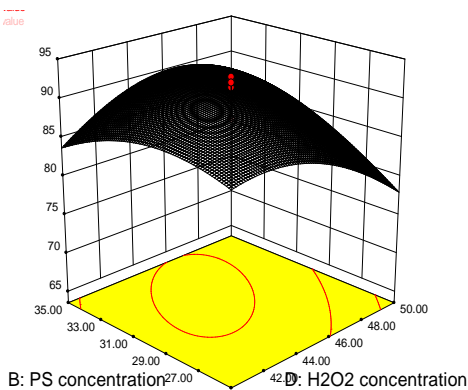
جدول ۳- نتایج آنالیز ANOVA و اثرات متقابل بین آن

منبع	مجموع مربعات	درجه آزادی	میانگین مربعات	مقدار F	مقدار P
مدل	۳۲۵۹/۵۱	۸	۴۰۷/۴۴	۳۲/۲۸	< ۰/۰۰۰۱
A	۳۸۴	۱	۳۸۴	۳۰/۴۲	< ۰/۰۰۰۱
B	۳۹/۰۱	۱	۳۹/۰۱	۳/۰۹	۰/۰۹۳
C	۶۹/۳۶	۱	۶۹/۳۶	۵/۵	۰/۰۲۹
D	۱۷/۳۴	۱	۱۷/۳۴	۱/۳۷	۰/۲۵۴۳
BD	۸۱/۹	۱	۸۱/۹	۶/۴۹	۰/۰۱۸۸
A ²	۲۳۸۸/۳۶	۱	۲۳۸۸/۳۶	۱۸۹/۲۳	< ۰/۰۰۰۱
B ²	۲۳۹/۲۷	۱	۲۳۹/۲۷	۱۸/۹۶	۰/۰۰۳
D ²	۴۳۰/۹۷	۱	۴۳۰/۹۷	۳۴/۱۴	< ۰/۰۰۰۱
باقی مانده	۲۶۵/۰۶	۲۱	۱۲/۶۲	-	-
نقص برازش	۲۴۵/۳۶	۱۶	۱۵/۳۴	۳/۸۹	۰/۰۶۹۹
خطای خالص	۱۹/۶۹	۵	۳/۹۴	-	-
کل	۳۵۲۴/۵۷	۲۹	-	-	-

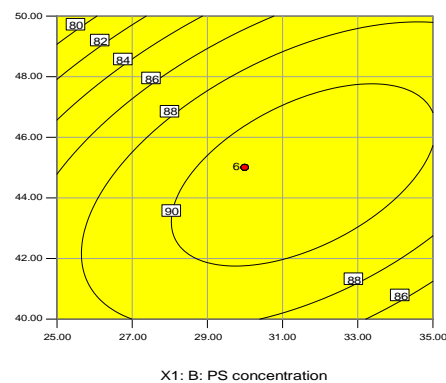
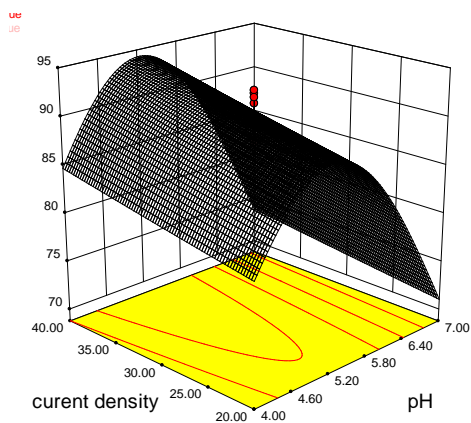


شکل ۲- مقادیر باقی مانده در برابر مقادیر پیش بینی شده با مدل

شکل ۱- احتمال نرمال برای باقی مانده های مدل



شکل ۳- تأثیر همزمان pH و میزان جریان بر راندمان حذف COD



شکل ۴- تأثیر همزمان میزان پرکسید هیدروژن و پرسولفات بر راندمان حذف COD

بحث

تخلیه ضروری است. مقایسه نتایج خروجی پساب تصفیه خانه با استاندارد تخلیه پساب به چاه جاذب سازمان حفاظت محیط زیست [۳۱] بیانگر این است مقادیر

بر اساس نتایج بدست آمده در این مطالعه و با توجه به ورود پساب تصفیه خانه به چاه جاذب رسیدن به استاندارد

پارامترهای COD و BOD با استاندارد تخلیه فاصله دارد و بایستی از فرآیند جایگزین یا تکمیلی برای تصفیه فاضلاب استفاده نمود. با توجه به نسبت BOD_5/COD برابر ۰/۴ و میزان پایین تجزیه پذیری زیستی روش الکتروپرسولفات همراه با پرکسید هیدروژن جهت تجزیه COD استفاده شد. پس از ۶۰ min زمان تماس راندمان حذف COD برابر ۹۲/۶ درصد (در pH برابر با ۵/۲ در غلظت پرسولفات (mg/L) ۳۱، دانسیته جریان 40 mA/cm^2 و غلظت پرکسید هیدروژن (mmol/L) ۴۵) بدست آمد. میزان COD خروجی برابر (mg/L) ۳۲ حاصل گردید که توانست استاندارد پساب دفع در چاه جذب را رعایت نماید. در مطالعه Arsalan با استفاده همزمان $(UV/H_2O_2/O_3)$ بر روی COD فاضلاب بیمارستانی و با COD اولیه (mg/L) ۸۰۷ راندمان حذف ۷۷/۹ درصد گزارش شد [۱۲].

شکل ۱ نمودار مقادیر پراکنش باقی مانده‌ها نسبت به مقادیر برازش شده، روندی که نشان‌دهنده زیاد یا کم شدن واریانس باشد نمایان نبود. بنابراین توزیع نرمال باقی مانده‌ها پذیرفته شد. در شکل ۲ نمودار پراکنش باقی مانده‌ها نسبت به ترتیب انجام آزمایش‌ها که برای بررسی استقلال بین داده‌هاست به کار می‌رود هیچ گونه تغییرات سینوسی مشاهده نشد و فرض استقلال داده‌های بدست آمده پذیرفته می‌شود. در ادامه جهت بیان اثرات منفرد و بر هم کنش متغیرها از پلات‌های دو (۲D) و سه بعدی (۳D) استفاده شد. شکل ۳ و ۴ که نمای دو و سه بعدی از سطح حذف COD با تأثیر متغیرهای مستقل است را نشان می‌دهد. بر اساس نتایج آنالیز آماری در مواردی که آزمون فقدان برازش معنی‌دار نباشد تناسب مدل در

برازش داده‌ها را ثابت می‌کند [۲۶-۳۲]. در این مطالعه ۰/۰۶۹ بود ($p\text{-value} > 0/05$) و باعث گردید نسبت معنی‌داری بین فقدان برازش و مقدار خطای خالص وجود نداشته باشد. میزان F نشان دهنده نسبت مربعات مدل به نسبت مربعات خطاهاست، که مقدار بالای F نشانگر مقدار کم خطا و تطابق بالای مدل را نشان می‌دهد. از طرفی هرچقدر میزان P کمتر باشد ضریب مرتبط با آن فاکتور (متغیر مستقل) تأثیرگذارتر بوده و اهمیت بیشتری دارد. فاکتور pH با ($p < 0/0001$) نشان داد pH یکی از تأثیرگذارترین پارامترهاست. مقادیر کفایت دقت (Adeq Precision) بیانگر اختلاف مقدار پاسخ پیش‌بینی شده مدل با مقدار متوسط خطای پیش‌بینی می‌باشد و مقادیر بیش از ۴ بیانگر کفایت مدل است و مدل‌های پیش‌بینی کننده بدست آمده از طرح مرکب مرکزی تبعیت می‌کند در این مطالعه میزان $24/842$ بدست آمد. بر اساس نتایج حاصل از شکل ۳، بالاترین راندمان حذف COD در pH برابر با ۵/۲ بدست آمد. با توجه به نتایج آزمون ANOVA مقدار P برابر ۰/۰۰۰۱ و مقدار F برابر $30/42$ بدست آمد و نشان داد پارامتر pH بر راندمان حذف COD تأثیر بسزایی دارد. در زمان برقراری جریان الکتریسیته با انحلال آند قربانی، یون‌های آهن به اشکال دو و سه ظرفیتی تبدیل می‌شوند. در pH‌های پایین نوع غالب آهن Fe^{2+} است. از آنجایی که در pH قلیایی فرم آهن به اشکال کلوئیدی $Fe(OH)_3$ تبدیل می‌شود، این موضوع باعث رسوب فعال کننده (یون آهن) از محیط می‌گردد. بنابراین در pH اسیدی راندمان واکنش بیش از pH قلیایی است [۳۳].

نتایج تجربی با استفاده از تابع تقریبی حذف COD در رابطه (۱) بهینه‌سازی گردید، شرایط بهینه با ۳۷ راه حل توسط نرم‌افزار Design Expert ارائه گردید. بهترین راه حل در میزان پرکسید هیدروژن (۴۴/۷ mmol/L)، میزان پرسولفات سدیم (۳۱ mg/L)، pH برابر با (۵/۲) و دانسیته جریان (۴۰ mA/cm²) بازده حذف COD برابر با ۹۸/۴ درصد پیش‌بینی شد و انجام واکنش در شرایط مذکور، میزان راندمان حذف COD برابر ۹۶/۶ درصد بدست آمد. پیشنهاد می‌گردد که اثر زمان بر روی راندمان حذف COD به عنوان یک فاکتور تأثیرگذار مورد بررسی و تحقیق قرار گیرد. علاوه بر این با توجه به پتانسیل ایجاد محصولات جانبی بایستی شناسایی و مورد بررسی قرار گیرد.

نتیجه‌گیری

در مطالعه حاضر تصفیه فاضلاب بیمارستانی با استفاده از فرآیند الکتروپرسولفات با استفاده همزمان واکنش گر پرکسید هیدروژن با کمک الکترودهای آهنی مدادی شکل انجام گرفت.

با توجه به طرح مرکب مرکزی و روش سطح پاسخ برای پیش‌بینی شرایط بهینه، بر اساس داده‌های آزمایش‌ها قابل استفاده است و بین مقادیر پیش‌بینی شده توسط مدل با نتایج حاصل از آزمایش‌ها تطابق خوبی وجود دارد. طبق نتایج بدست آمده روش الکتروپرسولفات با استفاده همزمان از واکنش گر پرکسید هیدروژن و تولید الکتریکی آهن می‌تواند برای تصفیه فاضلاب‌های قوی مورد استفاده قرار گیرد.

بر اساس نتایج حاصل از شکل ۴، بالاترین راندمان حذف در غلظت پرسولفات (mg/L) ۳۱ و غلظت پرکسید هیدروژن (mmol/L) ۴۵ رخ داد. در رابطه با تأثیر غلظت پرسولفات و پرکسید هیدروژن بر راندمان حذف COD مشاهده شد با افزایش غلظت ماده اکسید کننده بیش از مقدار بهینه به عنوان رایبند رادیکال عمل کرده و باعث مصرف رادیکال‌ها شده و در نتیجه کارایی فرآیند کاهش می‌یابد. نتایج مطالعه انجام شده Hills و همکاران بر روی حذف COD شیرابه در حضور همزمان پرسولفات سدیم و پرکسید هیدروژن نشان داد که پرکسید هیدروژن باعث بهبود راندمان در مقایسه کاربرد پرسولفات به تنهایی است که با نتایج بدست آمده این مطالعه هم‌خوانی دارد [۳۴].

دانسیته جریان از عوامل تأثیرگذار بر سرعت واکنش در فرآیندهای الکتروشیمیایی است و تابعی از غلظت عامل کاتالیست شرکت کننده در واکنش می‌باشد [۳۵]. در این فرآیند تنها منبع تولیدی یون آهن تجزیه الکتروود در سطح آند قربانی بوده بنابراین میزان دانسیته جریان ارتباط مستقیم با تولید عامل کاتالیست در محیط داشته و با افزایش دانسیته جریان میزان تولید یون‌های آهن افزوده شده و باعث افزایش راندمان واکنش می‌شود. در مطالعه Cai و همکاران بر روی تجزیه COD با کمک فرآیند الکترو پرسولفات نشان داد بین دانسیته جریان و راندمان حذف ارتباط مستقیم وجود دارد که با نتایج بدست آمده در این مطالعه نیز هم‌خوانی دارد. [۳۶]

اگرچه بررسی‌های لازم در خصوص صرفه اقتصادی فرآیند الکتروپرسولفات بایستی مدنظر قرار گرفته شود. تشکر و قدردانی

از کمیته تحقیقات مرکز بهداشت غرب تهران دانشگاه علوم پزشکی ایران که با تصویب این طرح راه را برای انجام آن هموار ساخته‌اند تشکر و قدردانی می‌شود.

References

- [1] Carraro E, Bonetta S, Bertino C, Lorenzi E, Bonetta S, Gilli G. Hospital effluents management: Chemical, physical, microbiological risks and legislation in different countries. *Environ Manage* 2016; 168: 185-99.
- [2] Suarez S, Lema JM, Omil F. Pre-treatment of hospital wastewater by coagulation–flocculation and flotation. *Bioresour Tech* 2009; 100(7): 2138-46.
- [3] Tahiri E, Benaabidate L, Nejjari C, Benbrahim KF. Assessment of physicochemical and biological parameters of Al Ghassani hospital wastewaters, Fez—Morocco. *Mater Environ Sci* 2012; 3(1): 115-20.
- [4] Prayitno ZK, Yanuwidi B, Laksmono RW. Study of hospital wastewater characteristic in Malang City. *Int J Eng Sci* 2013; 2: 13-6.
- [5] Zhang CM, Wang XC, Li X, Zhao L F, Zeng S. Quantification and distribution of Salmonella spp. and Salmonella typhi in wastewater treatment plants. *Pure Apply Microbial* 2013; 7: 409-15.
- [6] El-Gawad HA, Aly A. Assessment of Aquatic Environmental for Wastewater Management Quality in the Hospitals: a Case Study. *Aust J Basic Appl. Sci* 2011; 5(7).474-82.
- [7] Al Aukidy M, Verlicchi P, Voulvoulis N. A framework for the assessment of the environmental risk posed by pharmaceuticals originating from hospital effluents. *Sci. Total Environ* 2014; 493: 54-64.

- [8] Verlicchi P, Galletti A, Petrovic M, Barceló D. Hospital effluents as a source of emerging pollutants: an overview of micropollutants and sustainable treatment options. *Hydrology* 2010; 389(3): 416-28.
- [9] Escher BI, Baumgartner R, Koller M, Treyer K, Lienert J, Mc Ardell CS. Environmental toxicology and risk assessment of pharmaceuticals from hospital wastewater. *Water res* 2011; 45(1): 75-92.
- [10] Nguyen T-T, Bui X-T, Nguyen D-D, Nguyen P-D, Ngo H-H, Guo W. Performance and membrane fouling of two types of laboratory-scale submerged membrane bioreactors for hospital wastewater treatment at low flux condition. *Sep. Purif. Technol* 2016; 165: 123-9.
- [11] Snyder SA, Adham S, Redding AM, Cannon FS, DeCarolis J, Oppenheimer J, et al. Role of membranes and activated carbon in the removal of endocrine disruptors and pharmaceuticals. *Desalination* 2007; 202(1): 156-81.
- [12] Arslan A, Veli S, Bingöl D. Use of response surface methodology for pretreatment of hospital wastewater by O₃/UV and O₃/UV/H₂O₂ processes. *Sep. Purif. Technol* 2014; 132: 561-7.
- [13] Ahmed MM, Barbati S, Doumenq P, Chiron S. Sulfate radical anion oxidation of diclofenac and sulfamethoxazole for water decontamination. *Chem. eng* 2012;197:440-7.
- [14] Liu J, Zhong Sh, Song Y, Wang B, Zhang F. Degradation of tetracycline hydrochloride by electro-activated persulfate oxidation. *Electroanal. Chem* 2018; 809:74-79.
- [15] Lee M, Oh J. Sonolysis of trichloroethylene and carbon tetrachloride in aqueous solution. *Ultrason. sonochem* 2010; 17(1): 207-12.
- [16] Teel AL, Warberg CR, Atkinson DA, Watts RJ. Comparison of mineral and soluble iron Fenton's catalysts for the treatment of trichloroethylene. *Water res* 2001; 35(4): 977-84.
- [17] Devi P, Das U, Dalai AK. In-situ chemical oxidation: Principle and applications of peroxide and persulfate treatments in wastewater systems. *Sci. Total Environ* 2016; 571: 643-57.

- [18] Yang S, Wang P, Yang X, Shan L, Zhang W, Shao X, et al. Degradation efficiencies of azo dye Acid Orange 7 by the interaction of heat, UV and anions with common oxidants: persulfate, peroxymonosulfate and hydrogen peroxid. *Hazard Mater* 2010; 179(1): 552-8.
- [19] Gao Y-q, Gao N-y, Deng Y, Yang Y-q, Ma Y. Ultraviolet (UV) light-activated persulfate oxidation of sulfamethazine in water. *Chem. Eng* 2012; 195: 248-53.
- [20] Hou L, Zhang H, Xue X. Ultrasound enhanced heterogeneous activation of peroxydisulfate by magnetite catalyst for the degradation of tetracycline in water. *Sep. Purif. Technol* 2012; 84: 147-52.
- [21] Olmez-Hanci T, Arslan-Alaton I. Comparison of sulfate and hydroxyl radical based advanced oxidation of phenol. *Chem. Eng* 2013; 224: 10-6.
- [22] Su S, Guo W, Yi C, Leng Y, Ma Z. Degradation of amoxicillin in aqueous solution using sulphate radicals under ultrasound irradiation. *Ultrason. sonochem* 2012; 19(3): 469-74.
- [23] Lin Y-T, Liang C, Chen J-H. Feasibility study of ultraviolet activated persulfate oxidation of phenol. *Chemosphere* 2011; 82(8): 1168-72.
- [24] Rivas F, Gimeno O, Borallho T. Aqueous pharmaceutical compounds removal by potassium monopersulfate. Uncatalyzed and catalyzed semicontinuous experiments. *Chem. Eng* 2012; 192: 326-33.
- [25] APHA. AWWA. WEF. Standard methods for the examination of water and waste water. Washington D.C.2005.
- [26] Eslami A, Asadi A, Meserghani M, H B. Optimization of sonochemical degradation of amoxicillin by sulfate radicals in aqueous solution using response surface methodology(RSM). *J Mol Liq* 2016; 222: 739-44.
- [27] Srivastava V, Sharma Y, Sillanpää M. Application of response surface methodology for optimization of Co (II) removal from synthetic wastewater by adsorption on NiO nanoparticles. *J Mol Liq* 2015; 211: 613-20.
- [28] Yang Q, Zhong Y, Zhong H, Li X, Du W, Li X, et al. A novel pretreatment process of

- mature landfill leachate with ultrasonic activated persulfate: Optimization using integrated Taguchi method and response surface methodology. *Process Saf Environ Prot* 2015; 98: 268-75.
- [29] Agarwal S, Tyagi I, Gupta VK, Dastkhoo M, Ghaedi M, Yousefi F, et al. Ultrasound-assisted adsorption of Sunset Yellow CFC dye onto Cu doped ZnS nanoparticles loaded on activated carbon using response surface methodology based on central composite design. *J Mol Liq* 2016; 219: 332-40.
- [30] Arslan A, Veli S, Bingöl D. Use of response surface methodology for pretreatment of hospital wastewater by O₃/UV and O₃/UV/H₂O₂ processes. *Sep. Purif. Technol* 2014; 132: 561-7.
- [31] Environmental regulation and standards of Iran. Iranian Environment Conservation Organization. 2003; 234-39 [Farsi].
- [32] Xu X-R, Li X-Z. Degradation of azo dye Orange G in aqueous solutions by persulfate with ferrous ion. *Sep Purif Technol* 2010; 72(1): 105-11.
- [33] Romero A, Santos A, Vicente F, González C. Diuron abatement using activated persulphate: effect of pH, Fe (II) and oxidant dosage. *Chem Eng* 2010; 162(1): 257-65.
- [34] Hilles AH, Amr SSA, Hussein RA, El-Sebaie OD, Arafa AI. Performance of combined sodium persulfate/H₂O₂ based advanced oxidation process in stabilized landfill leachate treatment. *Environ Manage* 2016; 166: 493-8.
- [35] da Silva-Rackov CK, Lawal WA, Nfodzo PA, Vianna MM, do Nascimento CA, Choi H. Degradation of PFOA by hydrogen peroxide and persulfate activated by iron-modified diatomite. *Appl Catal B* 2016; 192: 253-9.
- [36] Cai C, Zhang Z, Zhang H. Electro-assisted heterogeneous activation of persulfate by Fe/SBA-15 for the degradation of Orange II. *Hazard Mater* 2016; 313: 209-18.

Efficiency of Electro-Persulfate Process Optimized with Hydrogen Peroxide in Removal of Hospital Wastewater COD by Response Surface Methodology

B. Bina¹, Y. Hajizadeh², S. Karimi³, H. Ahmadnia⁴, M. Meserghani⁵

Received: 26/09/2017 Sent for Revision: 25/12/2017 Received Revised Manuscript: 05/05/2018 Accepted: 26/05/2018

Background and Objectives: Hospital wastewaters contain persistent substances such as microbial factors, deterjents, halogenated organic compounds, hormones, antibiotics, and radioactive isotopes that are produced by a variety of research and treatment activities. This study aimed to remove COD (Chemical Oxygen Demand) of hospital wastewater by optimized electro-persulfate process using response surface methodology

Materials and Methods: In this laboratory study, an electrochemical batch reactor equipped with four iron electrodes connected to a DC power supply was used for eliminating COD of wastewater. The independent variables (current density, initial pH, H₂O₂ dosage, persulfate dosage) against COD removal as the dependent variable were investigated using 8.0.6 Design Expert software by the response surface method, and the proposed model was analyzed using ANOVA.

Results: The optimal operational condition for COD removal with current density of 40 mA/cm², initial pH of 5.2, persulfate dosage of 31 mg/L, and hydrogen peroxide dosage of 45 mM was 92.6%. High value of coefficient of determination was 92.4 % and low value of coefficient of variation 4.58%.

Conclusion: The response surface method showed that there was an agreement between the predicted values by the model and the results obtained from the experiments. Simultaneous use of two reactives (persulfate/H₂O₂) increases the COD removal efficiency. Therefore, it seems that electro-persulfate oxidation with hydrogen peroxide is an effective method for the the removal of hospital wastewater COD. Designing experiment using response surface methodology can show the best conditions for COD removal through reducing the number of experimental tests.

Key words: Electro-persulfate, Hydrogen peroxide, COD, Hospital wastewater, Response surface methodology

Funding: This research was funded by Iran University of Medical Sciences.

Conflict of interest: None declared.

How to cite this article: 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. *J Rafsanjan Univ Med Sci* 2018; 17 (5): 407-20. [Farsi]

1- Prof., Dept. of Environmental Health Engineering, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran, ORCID: 0000-0002-1718-6089

2- Assistant Prof., Dept. of Environmental Health Engineering, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran, ORCID: 0000-0002-1901-4475

3- Expert in Charge of Dept. of Environmental Health, West of Tehran Health Center, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran, ORCID: 0000-0001-6521-143X

4- Head of West of Tehran Health Center, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran, ORCID: 0000-0002-9258-2612

5- PhD Student of Environmental Health Engineering, School of Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran, ORCID: 0000-0002-5619-986X

(Corresponding Author) Tel: (021) 66023041, Fax: (021) 66001931, E-mail: m_meserghany@yahoo.com