

راندمان حذف آنتی‌بیوتیک پنی‌سیلین جی در تالاب مصنوعی با جریان افقی زیرسطحی

محمد جواد ذوقی*، محمد رضا دوستی، وحید گل کاری

دانشکده مهندسی، دانشگاه بیرجند، بیرجند، ایران

تاریخچه داوری:

دریافت: ۱۳۹۸/۰۴/۰۲

بازنگری: ۱۳۹۸/۰۵/۱۳

پذیرش: ۱۳۹۸/۰۸/۲۲

ارائه آنلاین: ۱۳۹۸/۰۸/۲۷

کلمات کلیدی:

تالاب مصنوعی

پنی‌سیلین جی

روش سطح پاسخ

گیاه نی

فاضلاب بیمارستانی

خلاصه: آنتی‌بیوتیک‌ها به دلیل اثرات سمی بر زنجیره غذایی و بوم سازگان‌های آبی و ایجاد مقاومت دارویی، مشکلات زیست محیطی و بهداشتی برای انسان ایجاد می‌نمایند. در این مطالعه با استفاده از تالاب مصنوعی جریان افقی، حذف پنی‌سیلین جی، از فاضلاب مصنوعی انجام شد. هدف کلی این تحقیق، تعیین کارایی سیستم پایلوت تالاب مصنوعی با جریان افقی زیرسطحی در حذف آلاینده دارویی آنتی‌بیوتیک پنی‌سیلین جی است. برای بررسی تاثیر و بهینه‌سازی متغیر غلظت آلاینده در فاضلاب ورودی، زماند، ماند و وجود و عدم وجود گیاه در تالاب بر روی حذف آلاینده از روش سطح پاسخ استفاده شد. تالاب مصنوعی زیرسطحی در شرایط مختلف مورد بهره برداری قرار گرفت و ۳۰ نمونه فاضلاب از خروجی تالاب در شرایط مختلف، آزمایش شد. نتایج نشان داد که وجود گیاه نی، و زمان ماند با راندمان حذف، رابطه مستقیم و غلظت ورودی آلاینده با راندمان حذف رابطه معکوس دارد، وجود گیاه سبب افزایش تاثیر زمان ماند بر کاهش غلظت آلاینده در خروجی تالاب می‌شود. به طوری که در تالاب مصنوعی گیاه کاری شده، راندمان حذف برای زمان ماند ۷۲ ساعت و غلظت های ورودی مختلف بین ۹۴/۱۷٪ تا ۷۳/۶۱٪ بود. همچنین ضریب همبستگی، ضریب همبستگی اصلاحی و دقت تناسب در مدل به دست آمده از روش سطح پاسخ برای تخمین غلظت پنی‌سیلین جی در خروجی تالاب بترتیب برابر ۰/۹۹۲۹، ۰/۹۹۰۲ و ۰/۶۵۵۵ بود. بر مبنای نتایج حاصل از این مطالعه تالاب مصنوعی زیرسطحی می‌تواند فاضلاب حاوی پنی‌سیلین جی با غلظت دوبرابر متوسط غلظت حداکثری موجود در فاضلاب های بیمارستانی را با راندمان بالای ۹۰ درصد حذف و به عنوان یک سیستم تصفیه مناسب در حذف پنی‌سیلین جی، مورد استفاده قرار گیرد.

۱- مقدمه

جی، جزو آنتی‌بیوتیک‌های است که از قارچی بنام پنی‌سیلیوم تولید می‌گردد. این دارو جز اولین داروهای تولیدی محسوب می‌شود و این دارو به دلیل تولید بالا و کاربرد زیاد آن در درمان بیماری‌ها و عفونت‌ها، بسیار مورد توجه مسئولین بهداشتی است [۳].

در دهه‌های اخیر مهندسان فاضلاب توجه خود را بر روی سیستم‌های متداول تصفیه فاضلاب از قبیل لجن فعال، برکه‌های تثبیت، فیلتر چکنده، تماس دهنده‌های زیستی چرخان و راکتور بسته متوالی معطوف کرده‌اند، اما اکثر این سیستم‌ها علاوه بر هزینه بر بودن و وابستگی به انرژی، نیازمند نیروی کار آزموده جهت ساخت و راهبری و حفاظت می‌باشد [۴]. بنابراین تحقیق برای توسعه سیستم‌های مناسب به منظور غلبه بر مشکلات و معایب سیستم‌های متداول

آنتی‌بیوتیک‌ها گروه بزرگی از مواد دارویی هستند که به طور گسترده در درمان عفونت‌های پزشکی، دامپزشکی و غیره مورد استفاده قرار می‌گیرند و حدود ۱۵٪ مصرف کل داروها، مربوط به آنهاست. آنتی‌بیوتیک‌ها آلاینده‌های بالقوه خطرناکی هستند که به دلیل اثرات سمی آنها بر روی زنجیره غذایی و جریان‌های آبی مشکلات زیست محیطی عدیده‌ای را بر روی انسان و سایر موجودات زنده ایجاد می‌نمایند [۱]. امروزه نگرانی‌های جهانی در مورد تاثیر باقیمانده‌های آنتی‌بیوتیک‌ها بر تقویت مقاومت باکتری‌ها و کنترل تخلیه آنها در محیط زیست افزایش یافته است [۲]. پنی‌سیلین

* نویسنده عهده‌دار مکاتبات: mj.zoqi@birjand.ac.ir



با توجه به راندمان بالای تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی افقی در حذف مواد سخت تجزیه پذیر، سطح اشغال کمتر آن ها، بالاتر بودن نرخ بارگذاری هیدرولیکی و خطرات زیست محیطی کمتر آن ها نسبت به تالاب های مصنوعی با جریان روباز، در این مطالعه از تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی افقی برای تصفیه آنتی بیوتیک پنی سیلین جی استفاده شد. همچنین برای بررسی تاثیر متغیرهای مختلف بر درصد حذف پنی سیلین جی از روش سطح پاسخ^۱ (RSM) استفاده شد. در این مطالعه یک طرح مرکب مرکزی متعامد قابل چرخش برای بررسی اثرات سه متغیر زمان ماند، غلظت ورودی آلاینده و گیاه بر درصد حذف پنی سیلین جی و به دست آوردن شرایط آزمایشگاهی بهینه استفاده شد.

۲- مواد و روش ها

۲-۱- ساخت و بهره برداری از پایلوت

در این مطالعه دو سلول تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی افقی، شامل یک سلول بدون گیاه (H1) و سلول دیگر با گیاه (H2) در محل دانشگاه بیرجند ساخته شد. طول، عرض و عمق هر سلول به ترتیب 400 cm ، 150 cm و 55 cm می باشد [۱۷]. مساحت سطحی هر سلول برابر با 60000 cm^2 می باشد. بدنه سلول ها از خاک های ترانشه های حفر شده ی محل ساخته شد. شیب $1/5$ درصد در کف بستر در نظر گرفته و به منظور عایق بندی بستر از پلی اتیلن با چگالی پایین استفاده شد. برای ایجاد فضایی مناسب و امکان توزیع و جمع آوری یکنواخت جریان، منطقه ای به طول 20 cm از ابتدا و انتهای بستر هر سلول با استفاده از سنگدانه های درشت دانه به قطر متوسط 5 cm پر شد و لوله های PVC سوراخ دار در ورودی و خروجی قرار داده شد. سپس فضای باقی مانده بستر سلول به طول 360 cm در یک لایه و با استفاده از ماسه مخصوص (۲-۳ سانتی متر) تا ارتفاع 55 cm پر شد. کلیه مصالح سنگی به کار رفته در ساخت تالاب برای جلوگیری از ورود آلودگی شسته شد. برای بررسی میزان افت سطح فاضلاب در هر سیستم، لوله ای عمودی در بستر تعبیه گردید. سطح فاضلاب در هر سلول طبق طراحی انجام شده در فاصله 5 cm از زیر سطح بالایی بستر نگه داشته شد. با توجه به ابعاد و مواد بستر به کار رفته، هر سلول ظرفیتی برابر با 1000 لیتر فاضلاب داشت.

تصفیه فاضلاب مورد توجه قرار گرفته است. مناسب ترین سیستم تصفیه فاضلاب می تواند سیستمی با قابلیت راهبری و مدیریت با نیروهای محلی، دارای صرفه اقتصادی، سادگی ساخت و راهبری و اثرات زیست محیطی پایین باشد [۵]. تالاب مصنوعی سیستمی اقتصادی و سازگار با محیط زیست می باشد که علاوه بر راندمان بالا در حذف آلودگی های مختلف آلی، فلزات سمی، عناصر کمیاب، پاتوژن ها و مواد مغذی از جریان فاضلاب، فواید جانبی مختلفی از جمله ایجاد زیستگاه جانوری و گیاهی، ایجاد چرخه مواد مغذی، ایجاد منظره طبیعی و امکان تولید گیاهان زینتی را نیز دارد [۶-۸].

تالاب های مصنوعی مورد استفاده برای تصفیه فاضلاب با توجه به جهت جریان آب در سیستم به دو نوع تالاب های مصنوعی با جریان روباز و تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی تقسیم می شوند. در تالاب های مصنوعی با جریان روباز، آب به آرامی بر روی لایه میانی جریان داشته و یک سطح آب آزاد و آبی به عمق معمولاً چند سانتی متر را ایجاد می کند [۹]. در حالیکه در تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی آب درون یک لایه پر منفذ جریان داشته و جهت مسیر جریان در آن ها می توان افقی یا عمودی باشد [۱۰].

در تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی، با توجه به اینکه لایه سوبسترا و ریشه گیاهان تماس و ارتباط بهتری با محدوده مورد نظر فراهم می کنند، مساحت سطح اشغال شده بوسیله آن ها برای جریان فاضلابی با مشخصات یکسان نسبت به تالاب های مصنوعی با جریان روباز کمتر می باشد [۱۱، ۱۲]. همچنین نرخ بارگذاری هیدرولیکی در تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی بیشتر است. میانگین نرخ بارگذاری هیدرولیکی در تالاب های مصنوعی با جریان روباز حدود $1\text{ cm}^3\text{ d}^{-1}$ و در تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی افقی حدود $1\text{ cm}^3\text{ d}^{-1}$ می باشد [۱۳]. در تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی در حالتی که جهت مسیر جریان افقی باشد، برخلاف تالاب های مصنوعی با جریان روباز آب سطحی در معرض اتمسفر قرار نمی گیرد. بنابراین در این سیستم نسبت به سایر تالاب های مصنوعی خطرات زیست محیطی برای سکونتگاه حیات وحش و انسان ها و وجود پشه ها به حداقل می رسد [۱۴]. راندمان بالای این نوع از تالاب ها در مطالعات مختلف تایید شده است [۱۴-۱۶]. در این نوع تالاب ها، فاضلاب با شبکه ای از مناطق هوازی (مناطق اطراف ریشه و ریزوم ها که اکسیژن را در بستر آزاد می کنند)، بی هوازی و بی اکسیژن تماس می یابد.

1 Response surface methodology

۲-۲- استقرار گیاه

گیاه *Phragmites australis* در تالاب مصنوعی مورد مطالعه استفاده شد. این گیاه از نیزار موجود در مسیل فصلی منطقه امیرآباد بیرجند در فاصله ۱۵ km از سیستم پایلوت جمع آوری شد. تمام گیاهان دارای ارتفاع و ویژگی‌های تقریباً یکسان در میزان و طول ریشه‌ها، برگ و ساقه بودند. متوسط ارتفاع بافت روسطحی گیاه در سلول‌ها حدود ۲۰ cm بود. برای جلوگیری از مشکل گرفتگی بستر و عدم ایجاد آلودگی ناخواسته در آزمایشات، پس از انتقال گیاهان به محل پایلوت، بافت‌های زیرسطحی شستشو شد. گیاه به صورت نشاکاری در سیستم مورد نظر کاشته شد. پس از کاشت به منظور رشد و گسترش ریشه و ریزوم گیاه و استحکام گیاه در بستر و سازگاری گیاه با شرایط، تمام سیستم‌ها به مدت ۱۶ هفته با آب استخر موجود در محل تغذیه شدند.

۲-۳- خوراک ورودی

در این مطالعه بارگذاری سیستم به صورت ناپیوسته بود و هر دو تالاب مصنوعی با فاضلاب مصنوعی تغذیه شدند. برای تهیه فاضلاب مصنوعی از پنی‌سیلین جی شرکت داروسازی جابراین حیان استفاده شد. تمامی پنی‌سیلین جی از نوع ۱۲۰۰۰۰۰ واحدی بود. فرم اصلی پنی‌سیلین جی، بنزیل پنی‌سیلین است که شامل هسته ۶- آمینو پنی‌سیلانیک اسید و یک زنجیره فرعی بنزیل بوده و بسیار انحلال پذیر در آب است [۱۸]. با توجه به مطالعات انجام شده متوسط غلظت پنی‌سیلین جی در فاضلاب بیمارستانی حدود ۰/۴ mg/l بود [۱۹]. ۲۰ [۲۰] که این مقدار به عنوان غلظت پایه در این مطالعه قرار گرفت. برای بررسی درصد حذف، غلظت آلودگی در فاضلاب خروجی از هر دو سیستم برای فاضلاب‌هایی با غلظت ۰/۴ mg/l، ۰/۸ mg/l و ۱/۲ mg/l و در زمان‌های ماند ۶، ۱۲، ۲۴، ۴۸، ۷۲ ساعت، با ۳ بار تکرار اندازه‌گیری شد.

۲-۴- روش آماده‌سازی و آنالیز نمونه‌ها

اندازه‌گیری مقادیر آلودگی توسط دستگاه کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا^۱ (HPLC) برند Agilent Technologies و مدل HP 1200 Series انجام شد. برای آنالیز مقدار پنی‌سیلین جی، فاضلاب

از یک فیلتر با اندازه روزنه‌های ۰/۴۵ μm عبور داده شد، و با اسید هیدروکلریک تا pH برابر ۲ اسیدی شد. سپس مخزن استخراج فاز جامد (SPE) دستگاه HPLC با شرایط ۵ میلی‌لیتر نانوهرگان، ۵ میلی‌لیتر اتیل استات، ۱۰ میلی‌لیتر متانول و ۱۰ میلی‌لیتر آب دوبار تقطیر با نرخ جریان ۳ mL min⁻¹ تنظیم شد و نمونه با نرخ جریان ۱۰ mL min⁻¹ به وسیله لوله ای از جنس تفلون به داخل مخزن SPE وارد شد. فیلتر مخزن با ترکیب متانول و آب دوبار تقطیر با نسبت ۱۰ به ۹۰ و سپس با ۲۰ mL آب دوبار تقطیر شسته شد. سپس برای حذف آب اضافی مخزن به مدت ۳۰ دقیقه خشک و با اتیل استات شسته شد. مایع استخراج شده بوسیله جریان آرام نیتروژن تا ۴۰۰ μL تغلیظ و سپس با متانول تا ۵۰۰ μL افزایش یافت. ۲۰ میکرولیتر از این محلول به دستگاه کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا تزریق گردید. ارتفاع پیکهای به دست آمده، برای ارزیابی مورد استفاده قرار گرفت [۱۷]. ستون ۸C به ابعاد ۲۵۰ در ۴/۶ میلی‌متر I.D و قطر ذرات ۵ میکرومتر به همراه ستون محافظ مناسب از همین نوع در دمای ۴۰ درجه سانتیگراد به همراه دکتور با طول موج ۳۶۵ نانومتر استفاده شد. محدودیت تشخیص^۲ (LOD) و محدودیت اندازه‌گیری^۳ (LOQ) با استفاده از انحراف معیار عرض از مبدا (σ) و شیب نمودار استاندارد (S) و روابط ۱ و ۲ محاسبه شد. مقادیر LOD و LOQ محاسبه شده بترتیب برابر ۲/۶ g/L و ۷/۸۸ L μm بود.

$$\text{LOD} = 3.3 \times \sigma / S \quad (1)$$

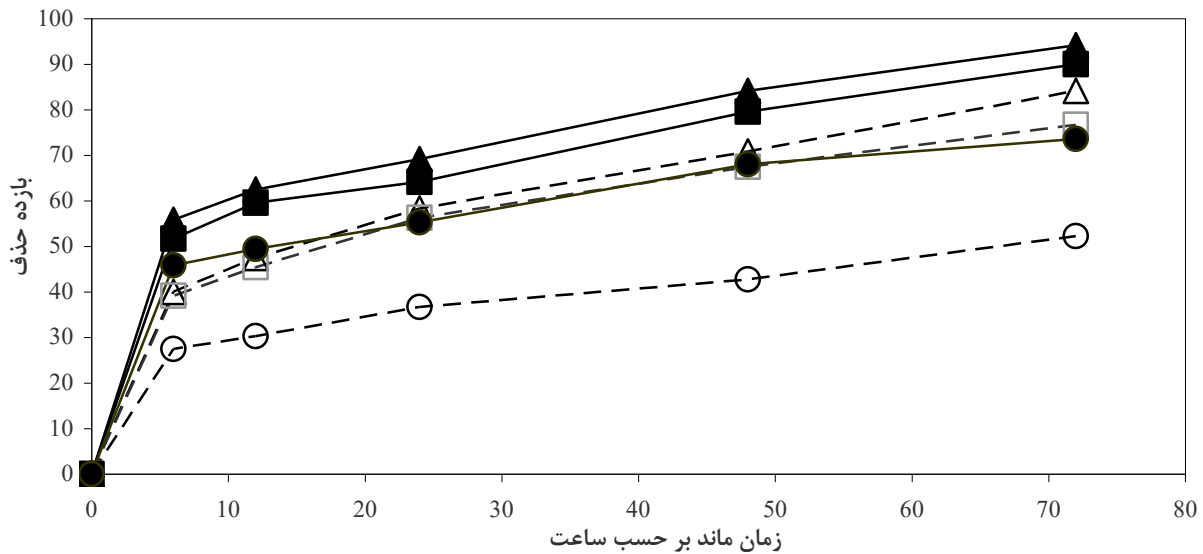
$$\text{LOQ} = 10 \times \sigma / S \quad (2)$$

۲-۵- طراحی آزمایش و متغیرها

در این مطالعه، برای تحلیل پارامترهای موثر بر فرایند از نرم‌افزار Design-Expert 7 و روش سطح پاسخ استفاده شد. برای به‌دست آوردن مدل رگرسیونی مناسب، مدل‌های خطی، برهمکنشی، درجه ۲ و ۳ بر روی داده‌های آزمایشگاهی برازش شد. برای ارزیابی این مدل‌ها از تحلیل واریانس (ANOVA) استفاده شد. متغیرهای موثر بر غلظت آلاینده در خروجی شامل زمان ماند، غلظت اولیه آلاینده و

2 Limit of detection
3 Limit of quantification

1 High-performance liquid chromatography



- ▲— غلظت آلاینده ورودی ۰.۴ میلی گرم بر لیتر تالاب بدون گیاه
- غلظت آلاینده ورودی ۱.۲ میلی گرم بر لیتر تالاب بدون گیاه
- غلظت آلاینده ورودی ۰.۸ میلی گرم بر لیتر تالاب با گیاه
- غلظت آلاینده ورودی ۱.۲ میلی گرم بر لیتر تالاب با گیاه
- غلظت آلاینده ورودی ۰.۸ میلی گرم بر لیتر تالاب بدون گیاه
- △— غلظت آلاینده ورودی ۰.۴ میلی گرم بر لیتر تالاب بدون گیاه

شکل ۱. تاثیر غلظت آلاینده ورودی، وجود گیاه و زمان ماند بر درصد حذف پنی سیلین جی

Fig. 1. The effect of initial concentration of penicillin G, HRT and reed on the penicillin G removal efficiency

در غلظت $1/2 \text{ mg/l}$ و زمان ماند ۷۲ ساعت، وجود گیاه در تالاب سبب افزایش درصد حذف از $52/22\%$ به $73/61\%$ شد. با توجه به این نتایج، میزان تاثیر مثبت گیاه در تالاب مصنوعی بر روی حذف پنی سیلین جی با افزایش غلظت آلاینده در ورودی افزایش یافته است. به طوری که در زمان ماند ۷۲ ساعت، درصد حذف آلاینده در صورت وجود گیاه نسبت به حالت بدون گیاه برای غلظت ورودی $0/4 \text{ mg/l}$ ، $0/8 \text{ mg/l}$ و $1/2 \text{ mg/l}$ بترتیب $11/88$ ، $17/39$ و 41 درصد افزایش یافت.

۳-۱- مدل سطح پاسخ

با توجه به آنالیز رگرسیون چندگانه داده‌های آزمایشگاهی، مدل درجه دوم برای پیش بینی غلظت پنی سیلین جی در خروجی تالاب مصنوعی در حالت با و بدون گیاه انتخاب شدند. مدل‌های تجربی نهائی بر حسب مقادیر واقعی فاکتورها برای غلظت پنی سیلین جی در خروجی تالاب مصنوعی در حالت بدون گیاه (Y_1) و در حالت با گیاه (Y_2) بترتیب در روابط ۳ و ۴ نشان داده شده که در آن C_{in} و HRT بترتیب غلظت پنی سیلین جی در فاضلاب ورودی و زمان ماند می‌باشد.

وجود گیاه در نظر گرفته شد. وجود و عدم وجود گیاه در روش سطح پاسخ به عنوان یک متغیر طبقه بندی در نظر گرفته و دو سطح برای آن تعیین شد. سطح ۱ به معنای عدم وجود گیاه و سطح ۲ به معنای وجود گیاه در تالاب برای نرم افزار تعریف شد. برای بررسی عملکرد تالاب مصنوعی در حذف پنی سیلین جی از فاضلاب مصنوعی ورودی، غلظت این آلاینده در شرایط مختلف و در زمان ماندهای ۶، ۱۲، ۲۴، ۴۸ و ۷۲ ساعت اندازه گیری شد [۱۷].

۳- نتایج

نتایج اندازه گیری غلظت پنی سیلین جی در غلظت‌های ورودی مختلف و زمان ماندهای ۶، ۱۲، ۲۴، ۴۸ و ۷۲ ساعت در سیستم فاقد گیاه و با گیاه در شکل ۱ نمایش داده شده است.

با توجه به شکل ۱ وجود گیاه (*Phragmites australis*) بر درصد حذف آلاینده تاثیر مستقیم دارد. به طوری که در غلظت $0/4 \text{ mg/l}$ و زمان ماند ۷۲ ساعت در سیستم تالاب مصنوعی گیاه کاری شده، راندمان برابر $94/17\%$ و در سیستم فاقد گیاه راندمان $84/17\%$ بود و در غلظت $0/8 \text{ mg/l}$ ، و زمان ماند ۷۲ ساعت به ترتیب در سیستم با گیاه و فاقد گیاه، راندمان 90% و $76/67\%$ حاصل شد و

جدول ۱. ارزیابی معناداری ضرایب رگرسیون و تجزیه و تحلیل واریانس (ANOVA)

Table 1. Analysis of variance (ANOVA) for penicillin G removal

منبع	مجموع مربعات	مقدار F	مقدار P
مدل	۱/۷۲	۳۶۸/۳۲	^a <۰/۰۰۰۱
C _{in}	۱/۰۵	۱۸۰۱/۸۹	^a <۰/۰۰۰۱
HRT	۰/۲۷	۴۷۱/۰۷	^a <۰/۰۰۰۱
A	۰/۱۳	۲۱۵/۷۳	^a <۰/۰۰۰۱
C _{in} × HRT	۰/۰۱۶	۲۷/۲۶	^a <۰/۰۰۰۱
C _{in} × A	۰/۰۴۶	۷۹/۰۲	^a <۰/۰۰۰۱
HRT × A	۰/۰۰۰۲	۰/۳۸	۰/۵۴۲۵
C _{in} ²	۰/۰۴۴	۷۵/۰۱	^a <۰/۰۰۰۱
HRT ²	۰/۰۰۴	۶/۱۶	^a ۰/۰۲۱۶

(R²) استفاده شد. این ضریب برای یک مدل با برازش مناسب باید بیش از ۰/۸۰ باشد [۲۱]. در این تحقیق میزان ضریب همبستگی برای مدل غلظت پنی‌سیلین جی در خروجی تالاب مصنوعی برابر ۰/۹۹۲۹ می‌باشد که نشان می‌دهد حداقل ۹۹٪ از داده‌ها با مدل سازگار می‌باشند. همپنین ضریب همبستگی اصلاحی برابر ۰/۹۹۰۲ بود. نسبت پردازش داده‌ها به اختلال، با دقت تناسب اندازه‌گیری شده و مقدار مناسب برای آن بیش از ۴ است [۲۲]. در این تحقیق دقت تناسب مدل برابر ۶۵/۵۵ بود.

با توجه به شکل ۲ و روابط ۱ و ۲، در تالاب فاقد گیاه و دارای گیاه زمان ماند دارای تاثیر خطی منفی بر غلظت پنی‌سیلین جی در خروجی تالاب مصنوعی می‌باشد. در این مطالعه یکی از اهداف، استفاده از گیاه برای کاهش غلظت آلاینده در خروجی بود. با توجه به این‌که در تالاب فاقد گیاه غلظت آلاینده ورودی دارای تاثیر خطی و غیرخطی مثبت و در تالاب دارای گیاه غلظت آلاینده ورودی دارای تاثیر خطی منفی و غیرخطی مثبت بر غلظت آلاینده در خروجی بود، بنابراین گیاه سبب کاهش اثرات غلظت آلاینده ورودی بر افزایش غلظت آلاینده در خروجی شده است. همچنین در تالاب دارای گیاه اندرکنش زمان ماند و غلظت ورودی آلاینده نسبت به تالاب بدون گیاه تاثیر منفی بیشتری بر غلظت آلاینده در خروجی دارد.

نرخ حذف برای کلیه غلظت‌های ورودی در ۶ ساعت اولیه زمان ماند نسبت به سایر زمان‌های ماند بیشتر است. میزان درصد حذف

$$Y_1 = 0.172 + 0.016 \times C_{in} - 3.512E-3 \times HRT - 2.88E-3 \times C_{in} \times HRT + 0.506 \times C_{in}^2 + 2.585E-5 \times HRT^2 \quad (3)$$

$$Y_2 = 0.239 - 0.224 \times C_{in} - 3.735E-3 \times HRT - 3.52E-3 C_{in} \times HRT + 0.506 \times C_{in}^2 + 2.585E-5 \times HRT^2 \quad (4)$$

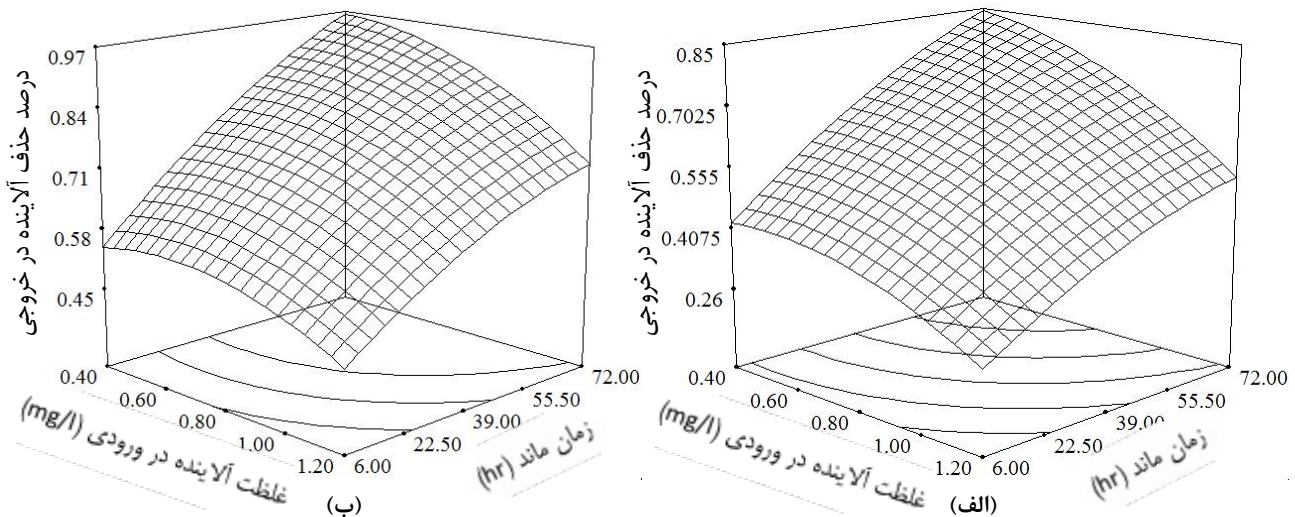
در جدول ۱ نتایج تحلیل واریانس برای ارزیابی معناداری اثرات اصلی و اثرات برهمکنشی متغیرها بر غلظت پنی‌سیلین جی در خروجی تالاب مصنوعی از طریق مقدار P نشان داده شده است. تا زمانیکه مقدار P برای مدل کمتر از ۰/۰۵ باشد، بین متغیر و پاسخ مورد نظر در سطح اطمینان ۹۵٪ رابطه آماری وجود دارد.

^a: معنی دار در سطح اطمینان ۹۵٪

A: فاکتور طبقه بندی که در سطح ۱ به معنای عدم وجود گیاه و در سطح ۲ به معنای وجود گیاه در تالاب است
برای درک بهتر نتایج و روابط بین متغیرها، از نمودارهای سه بعدی استفاده شد. نمودار سه بعدی اثر همزمان زمان ماند و غلظت آلاینده در ورودی بر درصد حذف آلاینده در خروجی تالاب مصنوعی فاقد گیاه و دارای گیاه بترتیب در شکل‌های ۲-الف و ب نمایش داده شده اند.

۴- بحث و نتیجه گیری

برای ارزیابی میزان برازش مدل از بررسی ضریب همبستگی



شکل ۲. نمودار سطح پاسخ نشان دهنده تاثیر همزمان زمان ماند و غلظت آلاینده در ورودی بر درصد حذف آلاینده در خروجی تالاب (الف) فاقد گیاه و (ب) دارای گیاه

Fig. 2. Response surface plots of penicillin G removal efficiency as a function of HRT and initial concentration of penicillin G (Cin) in (a) non-planted and (b) planted CW

جدول ۲. درصد حذف پنی سیلین جی در ۶ ساعت اولیه زمان ماند در شرایط مختلف

Table 2. Penicillin G removal efficiency in the first 6 hours of HRT in different conditions

درصد حذف	غلظت خروجی	تراکم گیاه در مترمربع	غلظت ورودی
۰/۴	۰/۲۴	۰ ریزوم	۰/۴
۰/۳۹	۰/۴۹	۰ ریزوم	۰/۸
۰/۲۸	۰/۸۷	۰ ریزوم	۱/۲
۰/۵۵	۰/۱۸	۶ ریزوم	۰/۴
۰/۵۱	۰/۳۹	۶ ریزوم	۰/۸
۰/۴۶	۰/۶۵	۶ ریزوم	۱/۲

با توجه به روابط ۳ و ۴ برای اینکه در حالت بدون گیاه غلظت پنی سیلین جی از $1/2 \text{ mg/l}$ به $0/6 \text{ mg/l}$ برسد مدت زمان ماند مورد نیاز برابر ۵۹ ساعت خواهد بود. در حالیکه در حالت با گیاه این مدت زمان به ۱۴ ساعت کاهش می یابد، به عبارت دیگر برای این مقدار کاهش در غلظت آلاینده خروجی، میزان نیاز به زمین در حالت با گیاه نسبت به حالت بدون گیاه ۷۶٪ کاهش می یابد. همچنین برای کاهش ۵۰٪ در غلظت آلاینده خروجی برای غلظت اولیه ورودی $0/8 \text{ mg/l}$ و $0/4 \text{ mg/l}$ میزان نیاز به زمین در حالت با گیاه نسبت به حالت بدون گیاه به ترتیب ۷۱٪ و ۵۲٪ کاهش می یابد.

با توجه به شکل ۲-الف و ب میزان تاثیر غلظت ورودی بر غلظت خروجی آلاینده نسبت به زمان ماند بیشتر است. میزان تاثیر زمان

در بازه زمانی ۶ ساعت اولیه، برای حالات مختلف در جدول ۲ نمایش داده شده است. با توجه به اینکه در ساعات اولیه، حذف بیشتر بر اساس جذب سطحی صورت می پذیرد و در ساعات بعدی، حذف بعلت انجام واکنش ها بیولوژیکی است [۲۳، ۲۴]. شیب افزایش درصد حذف پس از ۶ ساعت اولیه ملایمتر می شود. همچنین با توجه به جدول ۲ مشخص است که وجود گیاهان سبب افزایش درصد حذف در ۶ ساعت اولیه می شود. بنابراین وجود گیاهان علاوه بر اینکه حذف بیولوژیکی را افزایش داده سبب افزایش ظرفیت جذب سطحی خواهد شد. وجود گیاه علاوه بر اینکه سبب افزایش تخلخل و سطح ویژه جذب می شود سبب ایجاد جاذب آلی شده که در جذب مواد آلی مانند آلاینده های دارویی از راندمان بالایی برخوردار است [۲۵، ۲۶].

جدول ۳. شرایط آزمایشگاهی بهینه و مقادیر محاسبه شده و اندازه‌گیری شده آن

Table 3. Penicillin G removal efficiency at optimum values of the process parameters

اندازه‌گیری شده		محاسبه شده		تراکم گیاه در مترمربع	زمان ماند	غلظت ورودی
درصد حذف	غلظت خروجی	درصد حذف	غلظت خروجی			
۰/۷۴	۰/۳۰	۰/۷۵	۰/۲۹۱۵	۶ ریزوم	۷۲	۱/۱۷
۰/۷۷	۰/۲۷	۰/۷۵	۰/۲۸۷۴	۶ ریزوم	۷۲	۱/۱۶
۰/۶۴	۰/۳۶	۰/۶۳	۰/۳۷۱۶	۰ ریزوم	۷۲	۱
۰/۶۰	۰/۴۲	۰/۶۱	۰/۴۱۶۵	۰ ریزوم	۷۲	۱/۰۶

همچنین برای تایید اعتبار مدل، در این چهار شرایط بهینه نمونه‌های آزمایشگاهی ساخته شد که نتایج اندازه‌گیری شده و پیش بینی شده بوسیله مدل در جدول ۳ نمایش داده شده‌است. با توجه به این جدول و مقایسه درصد حذف پنی‌سیلین جی محاسبه شده بوسیله مدل با مقادیر اندازه‌گیری شده در آزمایشگاه مشخص است که روش سطح پاسخ روش مناسبی برای بهینه‌سازی بود.

۵- نتیجه گیری

با توجه به نتایج آزمایشگاهی تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی افقی در حذف آلاینده دارویی مورد نظر از راندمان بالایی برخوردار بود. گیاه نی بومی مورد استفاده در این مطالعه (*Phragmites australis*) سازگاری خوبی با تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی افقی داشت و در طی فصول بهار و تابستان رشد مناسبی از خود نشان داد. به طوری که پس از گذشت ۴ ماه از کاشت، گیاه تقریباً رشد کامل خود را انجام داد و میانگین ارتفاع بافت روستحی گیاهان به ۱۰۰ cm رسید. حضور این گیاه در تالاب مورد نظر بر درصد حذف آلاینده دارویی پنی‌سیلین جی، اثر گذار بود. به طوری که در زمان ماند ۷۲ ساعت، درصد حذف آلاینده در صورت وجود گیاه نسبت به حالت بدون گیاه برای غلظت ورودی ۰/۴ mg/l، ۰/۸ mg/l و ۱/۲ mg/l بترتیب ۱۱/۸۸، ۱۷/۳۹ و ۴۱ درصد افزایش یافت. یکی دیگر از اهداف این تحقیق، تعیین شرایط بهینه برای رسیدن به حداکثر حذف پنی‌سیلین جی با استفاده از تالاب مصنوعی بود. برای تعیین این شرایط بهینه از توابع مطلوبیت استفاده شد. آزمایش‌های انجام شده در شرایط بهینه نشان دهنده اعتبار مدل برای بهینه‌سازی درصد حذف آلاینده در تالاب مصنوعی با جریان زیرسطحی افقی بود.

ماند بر کاهش غلظت آلاینده در خروجی تالاب، با افزایش غلظت آلاینده در ورودی، افزایش می‌یابد. میزان تاثیر غلظت ورودی بر افزایش غلظت خروجی آلاینده با کاهش زمان ماند افزایش می‌یابد. با مقایسه شکل ۲-الف و ۲-ب مشخص می‌شود که در تالاب دارای گیاه نسبت به تالاب فاقد گیاه میزان تاثیر زمان ماند بر کاهش غلظت آلاینده در خروجی بیشتر و تاثیر غلظت ورودی آلاینده بر افزایش غلظت آلاینده در خروجی کمتر است. این نتایج نشان می‌دهد وجود گیاه در تالاب مصنوعی راندمان فرایندهای حذف پنی‌سیلین جی (جذب سطحی و بیولوژیکی) را افزایش می‌دهد. این نتایج در سایر مطالعات نیز تایید شده‌است [۲۷، ۲۸].

۴-۱- بهینه‌سازی

در این تحقیق یکی از اهداف رسیدن به حداکثر حذف پنی‌سیلین جی با استفاده از تالاب مصنوعی می‌باشد. برای رسیدن به این هدف باید درصد حذف و غلظت آلاینده در ورودی تالاب حداکثر باشد. با افزایش هم‌زمان این دو پارامتر درصد حذف پنی‌سیلین جی حداکثر خواهد بود. با توجه به شکل ۱ حداکثر درصد حذف در تالاب مصنوعی زمانی رخ می‌دهد که غلظت آلاینده ورودی حداقل باشد. به عبارت دیگر این دو پارامتر با هم رابطه معکوس دارند و همانطور که در تحلیل واریانس مشخص شد رابطه آن‌ها از نوع درجه دوم می‌باشد. بنابراین شرایط بهینه برای حذف حداکثر پنی‌سیلین جی در یک شرایط آزمایشگاهی واحد به دست نمی‌آید. در این حالت باید بین معیارهای مخالف تعادل برقرار شود که بهینه‌سازی پاسخ و ایجاد این تعادل با توابع مطلوبیت انجام می‌شود [۲۹]. پس از محاسبه به وسیله نرم‌افزار Design Expert چهار شرایط آزمایشگاهی به عنوان شرایط بهینه انتخاب که در جدول ۳ نمایش داده شد.

- flow constructed wetlands fed with secondary treated wastewater, *Ecological engineering*, 99 (2017) 222-227.
- [10] R. Bonner, L. Aylward, U. Kappelmeyer, C. Sheridan, A comparison of three different residence time distribution modelling methodologies for horizontal subsurface flow constructed wetlands, *Ecological engineering*, 99 (2017) 99-113.
- [11] H. Eslami, S. Ghelmani, V.A. SALEHI, D. Hosseinshahi, S. Ghaleaskari, H.P. TALEBI, T. MERAJIMOGHADAM, Comparing the Efficiency of Stabilization Ponds and Subsurface Constructed Wetland in Domestic Sewage Treatment in City of Yazd, (2015).
- [12] A. Yadav, F. Chazarenc, S. Mutnuri, Development of the "French system" vertical flow constructed wetland to treat raw domestic wastewater in India, *Ecological engineering*, 113 (2018) 88-93.
- [13] C. Ávila, C. Reyes, J.M. Bayona, J. García, Emerging organic contaminant removal depending on primary treatment and operational strategy in horizontal subsurface flow constructed wetlands: influence of redox, *Water research*, 47(1) (2013) 315-325.
- [14] H. Wu, J. Zhang, H.H. Ngo, W. Guo, S. Liang, Evaluating the sustainability of free water surface flow constructed wetlands: Methane and nitrous oxide emissions, *Journal of cleaner production*, 147 (2017) 152-156.
- [15] R. Bakhshoodeh, M.A. SOLTANI, N. Alavi, H. Ghanavati, Treatment of High Polluted Leachate by Subsurface Flow Constructed Wetland with Vetiver, (2017).
- [16] A.I. Stefanakis, C.S. Akratos, V.A. Tsihrintzis, Effect of wastewater step-feeding on removal efficiency of pilot-scale horizontal subsurface flow constructed wetlands, *Ecological Engineering*, 37(3) (2011) 431-443.
- [17] D.Q. Zhang, R.M. Gersberg, T. Hua, J. Zhu, N.A. Tuan, S.K. Tan, Pharmaceutical removal in tropical subsurface flow constructed wetlands at varying hydraulic loading rates, *Chemosphere*, 87(3) (2012) 273-277.
- [18] F. Aldeek, D. Canzani, M. Standland, M.R. Crosswhite, W. Hammack, G. Gerard, J.-M. Cook, Identification of penicillin G metabolites under various environmental conditions using UHPLC-MS/MS, *Journal of agricultural*
- [1] S. Rodriguez-Mozaz, S. Chamorro, E. Marti, B. Huerta, M. Gros, A. Sánchez-Melsió, C.M. Borrego, D. Barceló, J.L. Balcázar, Occurrence of antibiotics and antibiotic resistance genes in hospital and urban wastewaters and their impact on the receiving river, *Water research*, 69 (2015) 234-242.
- [2] J. Williams-Nguyen, J.B. Sallach, S. Bartelt-Hunt, A.B. Boxall, L.M. Durso, J.E. McLain, R.S. Singer, D.D. Snow, J.L. Zilles, Antibiotics and antibiotic resistance in agroecosystems: state of the science, *Journal of environmental quality*, 45(2) (2016) 394-406.
- [3] S.A. Newmister, C.M. Gober, S. Romminger, F. Yu, A. Tripathi, L.L.L. Parra, R.M. Williams, R.G. Berlinck, M.M. Joullie, D.H. Sherman, Oxad: a versatile indolic nitrone synthase from the marine-derived fungus *Penicillium oxalicum* F30, *Journal of the American Chemical Society*, 138(35) (2016) 11176-11184.
- [4] C. Tanner, J. Sukias, Linking pond and wetland treatment: performance of domestic and farm systems in New Zealand, *Water science and Technology*, 48(2) (2003) 331-339.
- [5] H. Sasani, N. Mehrdadi, B. Aminzadeh, A. Takdastan, Performance of Pilot-Scale Attached Growth Baffled Waste Stabilization Ponds in Coliform Removal, *Journal of Mazandaran University of Medical Sciences*, 27(151) (2017) 155-165.
- [6] L. Kröpfelová, J. Vymazal, J. Švehla, J. Štíchová, Removal of trace elements in three horizontal sub-surface flow constructed wetlands in the Czech Republic, *Environmental Pollution*, 157(4) (2009) 1186-1194.
- [7] K. Lizama, T.D. Fletcher, G. Sun, Removal processes for arsenic in constructed wetlands, *Chemosphere*, 84(8) (2011) 1032-1043.
- [8] A. Valipour, V.K. Raman, V. Ghole, A new approach in wetland systems for domestic wastewater treatment using *Phragmites* sp, *Ecological Engineering*, 35(12) (2009) 1797-1803.
- [9] V. Matamoros, Y. Rodríguez, J.M. Bayona, Mitigation of emerging contaminants by full-scale horizontal

- [24] V. Matamoros, J. Puigagut, J. García, J.M. Bayona, Behavior of selected priority organic pollutants in horizontal subsurface flow constructed wetlands: a preliminary screening, *Chemosphere*, 69(9) (2007) 1374-1380.
- [25] S. Hussain, S. Prasher, R. Patel, Removal efficiency of horizontal subsurface flow wetlands for veterinary pharmaceuticals, *Transactions of the ASABE*, 54(6) (2011) 2037-2046.
- [26] L. Liu, C. Liu, J. Zheng, X. Huang, Z. Wang, Y. Liu, G. Zhu, Elimination of veterinary antibiotics and antibiotic resistance genes from swine wastewater in the vertical flow constructed wetlands, *Chemosphere*, 91(8) (2013) 1088-1093.
- [27] A.V. Dordio, A.J.P. Carvalho, Organic xenobiotics removal in constructed wetlands, with emphasis on the importance of the support matrix, *Journal of Hazardous materials*, 252 (2013) 272-292.
- [28] S.A. Hussain, S.O. Prasher, R.M. Patel, Removal of ionophoric antibiotics in free water surface constructed wetlands, *Ecological engineering*, 41 (2012) 13-21.
- [29] M.J. Zoqi, H. Ganjidoust, N. Mokhtarani, B. Ayati, Effect of inorganic material and non-uniform electrokinetic on solidification/stabilization of lead, zinc and arsenic, *Sharif Journal: Civil Engineering*, 33 (2017) 79-89.
- and food chemistry, 64(31) (2016) 6100-6107.
- [19] M. Dehghani, S. Nasser, M. Ahmadi, M.R. Samaei, A. Anushiravani, Removal of penicillin G from aqueous phase by Fe+ 3-TiO 2/UV-A process, *Journal of Environmental Health Science and Engineering*, 12(1) (2014) 56.
- [20] J. Ory, G. Bricheux, A. Togola, J.L. Bonnet, F. Donnadiu-Bernard, L. Nakusi, C. Forestier, O. Traore, Ciprofloxacin residue and antibiotic-resistant biofilm bacteria in hospital effluent, *Environmental pollution*, 214 (2016) 635-645.
- [21] X. Guan, H. Yao, Optimization of Viscozyme L-assisted extraction of oat bran protein using response surface methodology, *Food chemistry*, 106(1) (2008) 345-351.
- [22] J.P. Maran, S. Manikandan, K. Thirugnanasambandham, C.V. Nivetha, R. Dinesh, Box-Behnken design based statistical modeling for ultrasound-assisted extraction of corn silk polysaccharide, *Carbohydrate Polymers*, 92(1) (2013) 604-611.
- [23] P.N. Carvalho, J.L. Araújo, A.P. Mucha, M.C.P. Basto, C.M.R. Almeida, Potential of constructed wetlands microcosms for the removal of veterinary pharmaceuticals from livestock wastewater, *Bioresource technology*, 134 (2013) 412-416.

چگونه به این مقاله ارجاع دهیم

M.J. Zoqi, M.R. Doosti, R. Golkari, Removal efficiency of penicillin G in horizontal subsurface flow wetlands, *Amirkabir J. Civil Eng.*, 53(2) (2021) 723-732.

DOI: [10.22060/ceej.2019.16625.6284](https://doi.org/10.22060/ceej.2019.16625.6284)



