



**HAL**  
open science

Fatemehsadat Moosavi, Touraj Tavakoli Gheinani, Mehrdad Nikravech, Khley Chang, Mamadou Traore, Andrei Kanaev

► **To cite this version:**

Fatemehsadat Moosavi, Touraj Tavakoli Gheinani, Mehrdad Nikravech, Khley Chang, Mamadou Traore, et al.. The Journal of Natural Environment, 2019. hal-02405985

**HAL Id: hal-02405985**

**<https://hal.science/hal-02405985>**

Submitted on 12 Dec 2019

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## بررسی حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین از آب بوسیله فتوکاتالیست

### خورشیدی در شرایط عملیاتی مختلف

فاطمه سادات موسوی<sup>۱</sup>؛ تورج توکلی<sup>۲\*</sup>؛ مهرداد نیکروش<sup>۳</sup>؛ چنگ کلی<sup>۴</sup>؛ اندرو کانااف<sup>۳</sup> و ممدو تراوره<sup>۵</sup>

۱- دانشجوی کارشناس ارشد گروه مهندسی شیمی دانشکده فنی و مهندسی دانشگاه اصفهان

۲- دانشیار گروه مهندسی شیمی دانشکده فنی و مهندسی دانشگاه اصفهان

۳- استاد گروه علوم، مواد و فرآیند دانشگاه پاریس

۴- دانشجوی دکتری گروه علوم، مواد و فرآیند دانشگاه پاریس

۵- استادیار گروه علوم، مواد و فرآیند دانشگاه پاریس

(تاریخ دریافت ۹۷/۰۹/۲۷ - تاریخ پذیرش ۹۷/۱۱/۰۸)

#### چکیده:

فاضلاب‌ها یکی از عوامل آلودگی محیط‌زیست هستند که باید آن‌ها را به طریق بهداشتی جمع‌آوری، تصفیه و در صورت امکان، مجدداً به چرخه آب در طبیعت برگرداند. آنتی‌بیوتیک‌ها آلاینده‌های خطرناک زیست محیطی بوده و به دلیل ساختمان فیزیکی و شیمیایی منحصر به فردشان، به عنوان آلاینده‌های اضطراری نام گرفته‌اند. فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته یک متد قوی برای بازسازی آب‌های آلوده حاوی مواد آلی تجزیه‌ناپذیر می‌باشد. مکانیسم اصلی آن بر پایه تولید رادیکال‌های آزاد بوده که برای از بین بردن مواد شیمیایی آلی بسیار کارآمد بوده است. در این مطالعه عملکرد فرآیند فتوکاتالیست خورشیدی به منظور حذف آموکسی‌سیلین از فاضلاب دارویی و اثرات پارامترهای غلظت آلاینده، غلظت فتوکاتالیست و pH اولیه مورد بررسی قرار گرفته است. از انرژی اشعه فرابنفش خورشید به منظور تحریک فتوکاتالیست استفاده می‌شود و راکتور مورد استفاده در این پژوهش دارای کالکتور سهموی مرکب است که دارای بهترین عملکرد می‌باشد. در میان پارامترهای بررسی شده به ترتیب pH، غلظت فتوکاتالیست و غلظت آلاینده بیشترین تاثیر را روی بازده تخریب داشتند. بر اساس این پژوهش تخریب آموکسی‌سیلین در محیط قلیایی به خوبی انجام می‌شود. به طوری که در شرایط یکسان با افزایش pH از ۲/۵ به ۹/۵ میزان بازده به ۸۳/۵۱ درصد می‌رسد. بازده بالا در pHهای قلیایی به دلیل هیدرولیز بیشتر آموکسی‌سیلین و عدم ثبات حلقه بتالاکتام آن، و تولید بیشتر رادیکال هیدروکسیل با توجه به ساختار فیزیکی و شیمیایی آلاینده و فتوکاتالیست است. با توجه به نتایج می‌توان ذکر کرد که فتوکاتالیست خورشیدی روشی مناسب برای حذف آموکسی‌سیلین از فاضلاب دارویی است.

**کلید واژگان:** آموکسی‌سیلین، سنتز تیتانیوم‌دی‌اکسید، فتوراکتور خورشیدی، فتوکاتالیست، کالکتور سهموی مرکب

## ۱. مقدمه

آب، اولین نیاز بشر برای ادامه‌ی حیاتش است. ۹۷/۵ درصد از آب‌های موجود بر روی کره زمین، آب‌های شور هستند. کمتر از ۱ درصد از ۲/۵ درصد باقیمانده‌ی آن در دسترس انسان و مابقی آن به صورت رطوبت در هوا، خاک و سایر منابع می‌باشد (Xu et al., 2011). واضح است که تهیه و ذخیره آب شرب کافی یک نیاز اساسی در جهت سلامت عمومی می‌باشد. امروزه آلودگی‌های دارویی، هورمون‌ها، حشره‌کش‌ها و ضد آفت‌ها به دلیل مصرف بالا، پتانسیل زیان قابل ملاحظه‌ای برای محیط زیست دارند. و به طور خاص ترکیبات دارویی، که بر سلامتی انسان‌ها و حیوانات دلالت دارند. داروها از طریق صنایع داروسازی، فاضلاب بیمارستانی، دفع انسان و حیوان، خروجی تصفیه خانه‌های شهری، تخلیه ضایعات در پرورش ماکیان و صنعت وارد آب و خاک می‌شوند (Sousa et al., 2013).

در مطالعات، غلظت آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط‌های آبی سطحی و زیرزمینی از ۱-۱۰۰ میکروگرم بر لیتر گزارش نموده اند. از طرفی صنایع داروسازی بویژه صنایع تولید آنتی‌بیوتیک‌ها دارای پساب با غلظت بالای ۱-۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر می‌باشند. نگرانی‌ها در مورد این آلاینده‌ها تنها به دلیل وجود آن‌ها در محیط‌زیست نیست، بلکه عوارضی مثل افزایش مقاومت و تغییرات زیستی را به همراه دارند (Prieto-Rodríguez et al., 2013). حدود ۱۰۰ تا ۲۰۰ کیلوتن در سال آنتی‌بیوتیک در جهان تولید می‌شود و ایران جزء مصرف‌کننده‌گان رده بالای آن است (Derakhsheshpoor et al., 2013). آموکسی‌سیلین یک ترکیب فعال بیولوژیکی است که روی میکروارگانیزم‌ها اثر دارد. مشکلی که توسط

آنتی‌بیوتیک‌ها حتی در غلظت‌های کم روی اکوسیستم آبی و خاکی بوجود می‌آید، مقاومت باکتریایی و افزایش واکنش‌های حساسیت‌زا است (Sheydaei et Dimitrakopoulou et al., 2012), (al., 2014). در بین انواع فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته، فتوکاتالیست با تیتانیوم‌دی‌اکسید یک روش امیدبخش بوده زیرا دارای مزایایی نظیر: پایداری شیمیایی بالا، مناسب بودن قیمت، خاصیت آبدوستی القا شده به آن در اثر تابش نور، غیرسمی بودن، فراوانی، ظرفیت استفاده از نور طبیعی و تجدیدپذیر خورشید (Sousa et al., 2013)، فعالیت بالا، عدم تخریب محیط زیست، داشتن انرژی شکست پیوند ۳/۲ eV (Malato et al., 2009)، کم بودن محدودیت انتقال جرم، عملکرد در شرایط محیطی و دسترسی تجاری است (Li et al., 2015), (Sheydaei et al., 2014).

مکانیسم فرآیند انجام شده بر روی فتوکاتالیست شامل ۵ مرحله است: ۱) انتقال واکنش‌دهنده‌ها از فاز سیال بر روی سطح ۲) جذب واکنش‌دهنده‌ها ۳) انجام واکنش در فاز جذب ۴) دفع فرآورده‌ها ۵) حذف فرآورده‌ها از سطح مشترک (Homem et al., 2010). هزینه فتوکاتالیست به دلیل استفاده از لامپ اشعه فرابنفش و مصرف انرژی بالا، بالا می‌باشد که با جایگزین کردن انرژی خورشید می‌توان این مانع را برطرف کرد (Prieto-Rodríguez et al., 2013). تکنولوژی فتوکاتالیست خورشیدی، تکنولوژی است که فتون‌های خورشید را به طور موثر جمع‌آوری کرده و به یک راکتور مناسب منتقل می‌دهد تا واکنش‌های شیمیایی انجام شوند. در این روش از اشعه فرابنفش خورشید برای تحریک کردن فتوکاتالیست در تماس با آب استفاده می‌شود (Malato et al., 2009).

نوع فتوکاتالیست P25 و ECT (فتوکاتالیست که به روش سل-ژل سنتز شده است)، غلظت فتوکاتالیست و pH را مطالعه نمودند. با افزایش غلظت تیتانیوم دی اکسید، سایت های فعال آن افزایش یافته و میزان معدنی شدن دارو کامل بود. افزایش pH بازده را افزایش داده و بهترین راندمان برای ECT در محیط قلیایی (pH = 11) و برای P25 در حالت خنثی به دست آمده است. دلیل آن مسیرهای متفاوت واکنش ها و ترکیبات واسطه فتوکاتالیست ها می باشد و اینکه P25 در محیط قلیایی سخت تر اکسید می شود (Pastrana-Martínez *et al.*, 2012). حال با توجه به وجود کارخانه های متعدد داروسازی و در نتیجه تولید حجم بالای فاضلاب حاوی آنتی بیوتیک و همچنین نظر به مقاوم بودن این ترکیبات نسبت به روش های متداول تصفیه و استفاده از انرژی فراوان و نامحدود خورشید و کاهش چشمگیر هزینه های اقتصادی بکار بردن یک فناوری نوین لازم بنظر می رسد. در این مطالعه از فتوکاتالیست تیتانیوم دی اکسید و راکتور خورشیدی به منظور حذف آموکسی سیلین استفاده شده است. همچنین اثر پارامترهای غلظت آموکسی سیلین، غلظت فتوکاتالیست و pH اولیه بررسی شده اند.

## ۲. مواد و روش ها

آنتی بیوتیک آموکسی سیلین از کارخانه داروسازی الحاوی از شرکت زوهای تهیه شده است. فتوکاتالیست استفاده شده در آزمایش ها از نوع سیگما آلدریج (CAS#1317-70-0) و با خلوص ۹۹٪ (آناناز) می باشد. pH محلول با اسید سولفوریک (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) و سدیم هیدروکسید (NaOH) شرکت مرک تنظیم شده است. برای اندازه گیری غلظت آموکسی سیلین در پساب، دستگاه اسپکتروفتومتر

عمل اکسیداسیون با رادیکال هیدروکسیل یا حفره های آزاد همراه است، بدین صورت که به آلاینده حمله کرده و یک شکست مولکولی جلورونده را ایجاد می کند که در نهایت منجر به تولید آب، کربن دی اکسید و اسیدهای معدنی می شود.

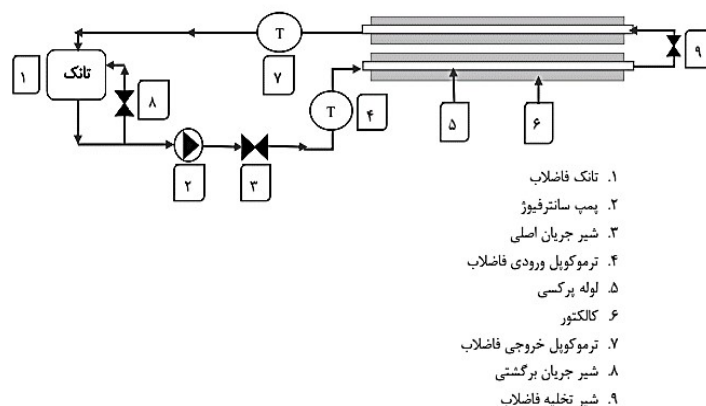
Elmolla و Chaudhuri (۲۰۱۰) در پژوهشی تخریب فتوکاتالیستی سه آنتی بیوتیک را تحت فرآیند فتوکاتالیست مورد مطالعه قرار دادند. نتایج بدست آمده تحت شرایط مختلف از جمله شدت تابش، غلظت فتوکاتالیست (TiO<sub>2</sub>) (۰.۵ تا گرم بر لیتر)، pH محلول (۳ تا ۱۱) و غلظت اکسیدکننده (۵۰ تا ۳۰۰ میلی گرم بر لیتر) نشان دادند که بهترین بازده برای شدت تابش، غلظت فتوکاتالیست، pH و غلظت اکسیدکننده به ترتیب ۳۰۰ نانومتر، ۱ گرم بر لیتر، ۱۱ و ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر بدست آمد (Elmolla and Sousa, Chaudhuri, 2010c). همکارانش (۲۰۱۳) برای حذف داروی لورازپام از فاضلاب مصنوعی نتایج زیر را بدست آوردند: میزان انرژی اشعه فرابنفش به هندسه راکتور، نوع محلول، حجم سوسپانسیون و زمان آزمایش بستگی دارد. دمای درون راکتور باید کنترل شود تا از تجزیه حرارتی دارو جلوگیری شود. با مقایسه دریافتند که مدل سینتیکی واکنش ها درجه یک بوده با این تفاوت که در تابش مصنوعی افزایش غلظت تاثیری در ثابت سرعت واکنش ندارد. در حالیکه در تابش خورشیدی ثابت سرعت افزایش یافته است. دلیل آن را اینطور توجیه کردند که ثابت سرعت واکنش در نور طبیعی به دلیل جذب گستره بالای اشعه فرابنفش بیشتر از نور مصنوعی است در نتیجه بازده بالاتری در حذف دارد (Sousa *et al.*, 2013). در تحقیق دیگری Pastrana-Martínez و همکارانش (۲۰۱۲) تخریب دیفن هیدرامین و تاثیر

نشان داده شده، فتوراکتور شامل ۴ کالکتور سهموی مرکب، ۴ لوله پرکسی، ۲ مخزن محلول، ۴ ترموکوپل، ۲ پمپ سانترفیوژ جهت به جریان انداختن فاضلاب داروئی، صفحات منعکس کننده، شیرهای تخلیه فاضلاب و اتصالات مربوط به لوله‌ها می‌باشد. فاضلاب اولیه از مخلوط آب مقطر و آموکسی سیلین خالص در آزمایشگاه تهیه شده است و از مخزن به لوله اول و بعد به لوله دیگری توسط پمپ جریان می‌یابد و دوباره به مخزن بازگردانده می‌شود. حجم سیال مواجهه با تابش خورشید و سطح تابش به ترتیب ۵/۰۷ لیتر و ۰/۶۷ مترمربع می‌باشند.

بکاربرده شد. میزان بازده تخریب و حذف آموکسی سیلین از معادله ۱ قابل محاسبه می‌باشد.

$$E = \frac{C_t - C_0}{C_t} \times 100 \quad (1)$$

در این معادله E نماد بازده، C<sub>0</sub> و C<sub>t</sub> به ترتیب نماد غلظت نهایی و اولیه آلاینده می‌باشند. آزمایش‌های فتوکاتالیست بوسیله راکتور خورشیدی ساخته شده در سایت خورشیدی دانشکده فنی و مهندسی دانشگاه اصفهان، در فصل تابستان سال ۱۳۹۶ و بین ساعت ۹ تا ۱۳ انجام شدند. پایلوت در ۳۳ درجه نسبت به افق قرار داده شده است و سیستم تصفیه در حالت ناپیوسته عمل می‌کند. همانطور که در شکل ۱



شکل ۱- شماتیک راکتور خورشیدی

روش فتوکاتالیست خورشیدی بین ۰/۵ تا ۱/۵ گرم بر لیتر انتخاب شد. هر یک از عوامل به تنهایی در بازده تخریب دارای تأثیر هستند، که هر یک به طور مجزا در بخش بعدی شرح داده خواهد شد. در جدول ۱ بازده حذف آموکسی سیلین در این آزمایش‌ها در شرایط اولیه مختلف در بازه زمانی ۲۴۰ دقیقه قابل مشاهده می‌باشد.

### ۳. نتایج

در این پژوهش، تخریب فتوکاتالیستی آموکسی سیلین به عنوان پاسخ تحت شرایط مختلف آزمایش مورد سنجش قرار گرفت. علت انتخاب این مقادیر برای غلظت فتوکاتالیست، غلظت آموکسی سیلین و pH، فراوانی کاربرد آن‌ها در مطالعات پیشین و امکانات موجود است. غلظت آنتی بیوتیک ۱۰، ۱۵ و ۲۰ میلی گرم بر لیتر انتخاب شده است. دامنه تیتانیوم دی اکسید نیز در تخریب آموکسی سیلین به

جدول ۱ - بازده تخریب آموکسی سیلین

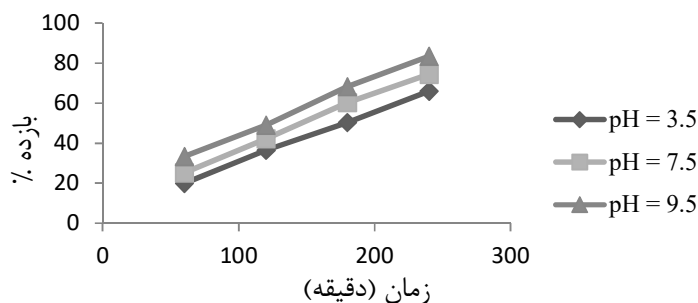
	بازده		
TiO <sub>2</sub>	۰,۵ g/L	۱ g/L	۱,۵ g/L
pH = ۳,۵	۳۹,۳۵	۵۹,۵۶	۶۸,۹۸
pH = ۷,۵	۴۴,۲۳	۶۶,۳۱	۷۴,۴
pH = ۹,۵	۶۸,۴۱	۷۷,۸۷	۸۳,۵۱
[AMX] = ۱۰ mg/L	۶۸,۴۱	۷۷,۸۷	۸۳,۵۱
[AMX] = ۱۵ mg/L	۴۱,۱۸	۶۱,۹۱	۶۸,۶۵
[AMX] = ۲۰ mg/L	۳۶,۱۴	۴۵,۶۵	۷۵,۶۵

#### ۴. بحث و نتیجه گیری

##### ۱,۴ اثر pH

در شکل ۲ نمودار تغییرات pH اولیه محلول با بازده تخریب آموکسی سیلین نشان داده شده است. دامنه

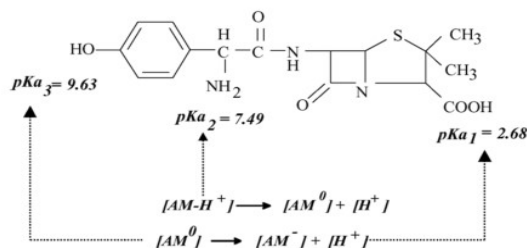
pH محلول ۳/۵، ۷/۵ و ۹/۵ به ترتیب برای سطوح پایین، میانی و بالا می باشد. با توجه به نمودار با افزایش pH بازده افزایش یافته است. به طوریکه در سطح بالای فتوکاتالیست و pH برابر با ۹/۵ بازده تخریب به ۸۳/۵۱٪ رسیده است.



شکل ۲- اثر تغییرات pH در تخریب آموکسی سیلین.

با ویژگی‌های ساختاری آموکسی سیلین و فتوکاتالیست قابل توضیح است. با توجه به مطالعات انجام شده، نقطه الکترواستاتیک برای فتوکاتالیست تیتانیوم دی اکسید در  $pH = ۶/۲۵$  است بدین معنی که در این نقطه سطح فتوکاتالیست از نظر الکتریکی خنثی می باشد (Elmolla and Chaudhuri, 2010a; Kanakaraju et al., 2015). همچنین آموکسی سیلین به دلیل دارا بودن گروه‌های یونی مختلف pKa های متفاوتی را داراست (شکل ۳) (Ay and Kargi, 2010; Andreozzi et al., Kanakaraju et al., 2015).

Li و همکارانش (۲۰۱۵) با راکتور ستونی پر شده با بستر تیتانیوم دی اکسید بر پایه سیلیکاژل حذف آموکسی سیلین را مورد بررسی قرار داده‌اند. نتایج بدست آمده نشان می دهد که با مدت زمان تابش ۳۰۰ دقیقه و غلظت ۲۵ میلی گرم بر لیتر، بازده حذف ۷۴/۶٪ است (Li et al., 2015). در حالیکه با فرآیند فتوکاتالیست خورشیدی با غلظت ۱۰ میلی گرم بر لیتر آموکسی سیلین، ۱ گرم بر لیتر تیتانیوم دی اکسید pH ۷/۵ و مدت زمان ۲۴۰ دقیقه می توان به بازده ۶۶/۳۱٪ رسید. با افزایش pH محلول بازده تخریب افزایش پیدا می کند. اثر قابل توجه pH بر میزان بازده

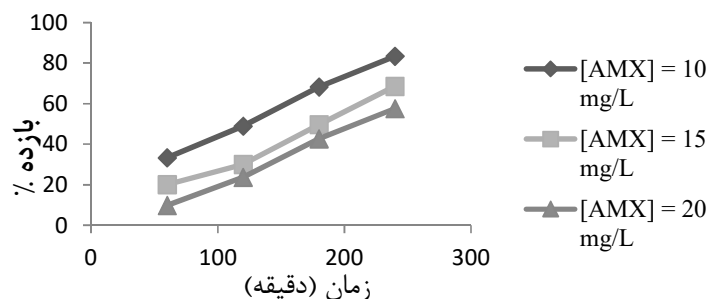


شکل ۳- نمودار pKa های آموکسی سیلین.

#### ۲.۴. اثر غلظت آموکسی سیلین

پس از بدست آمدن اطلاعات مربوط به بازده در pH های گوناگون، برای بدست آوردن اثر غلظت آلاینده با در نظر گرفتن pH برابر با ۹/۵ آزمایش های مربوط به اثر غلظت آلاینده طراحی و انجام شد. شکل ۴ اثر غلظت آموکسی سیلین بر بازده را نمایش می دهد و همانطور که مشخص است غلظت آلاینده تأثیر ناسازگار دارد. در بررسی که توسط Klauson و همکارانش (۲۰۱۰) برای حذف آموکسی سیلین در غلظت های ۱ تا ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر با غلظت ۱ گرم بر لیتر تیتانیوم دی اکسید انجام شده، رفتار مشابهی بدست آورده اند. و غلظت بهینه را در گستره ۱۰-۲۵ گرم بر لیتر گزارش کردند (Klauson *et al.*, 2010). که با نمودار بدست آمده در این پژوهش نیز مطابقت دارد. همچنین آن ها در آزمایش های خورشیدی به بازده ۸۰٪ رسیده اند که در این پژوهش با شرایط تقریباً مشابهی بازده تخریب ۷۷٪ بدست آمده است.

تحت شرایط اسیدی سطح فتوکاتالیست و آموکسی سیلین دارای بار الکتریکی مثبت هستند و در نتیجه نیروی دافعه بوجود آمده، جذب روی سطح فتوکاتالیست را محدود می کند. بازده بالای تخریب آموکسی سیلین در محلول قلیایی را می توان با دو دلیل توجیه کرد: الف) افزایش تشکیل رادیکال هیدروکسیل در pH قلیایی باعث توانایی اکسیداسیون آسان یون های هیدروکسیل روی سطح فتوکاتالیست ب) هیدرولیز آموکسی سیلین به دلیل عدم ثبات حلقه بتالاکتام در pH قلیایی (Chun *et al.*, 2015). روند مشابهی برای حذف فتوکاتالیستی آموکسی سیلین توسط Elmolla و Chaudhuri و بوسیله دو فتوکاتالیست تیتانیوم دی اکسید و اکسیدروی گزارش شده است (Elmolla and Chaudhuri, 2010b). در مطالعه دیگری Shaykhi و Zinatizadeh (۲۰۱۴) برای حذف آموکسی سیلین بوسیله تیتانیوم دی اکسید تثبیت شده نیز به نتایج مشابه رسیده اند (Shaykhi and Zinatizadeh, 2014).

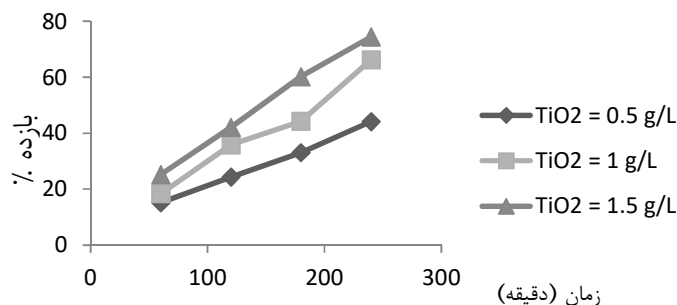


شکل ۴ - نمودار اثر غلظت آموکسی سیلین بر تخریب آموکسی سیلین.

(2012). در غلظت بالای آموکسی سیلین، سایت‌های فعال روی سطح فتوکاتالیست با مولکول‌های آموکسی سیلین اشغال شده و در نتیجه مولکول جدید نمی‌تواند روی سطح فتوکاتالیست جذب شده و دچار تخریب شود (Klauson *et al.*, 2010).

#### ۳.۴. اثر غلظت فتوکاتالیست

پس از انجام آزمایش‌ها، نمودار مربوط به اثر این پارامتر با نرم‌افزار بدست آمد که در شکل ۵ قابل مشاهده می‌باشد. همانطور که نمودار نشان می‌دهد غلظت تیتانیوم دی‌اکسید بر روی پاسخ اثر خطی سازگار دارد یعنی با افزایش غلظت آن در فاضلاب، بازده نیز افزایش می‌یابد.



شکل ۵- نمودار اثر غلظت تیتانیوم دی‌اکسید بر تخریب آموکسی سیلین.

افزایش غلظت فتوکاتالیست به ۱/۵ گرم بر لیتر، بازده ۷۴/۴٪ را بدست آورده است. این افزایش بازده را می‌توان با افزایش میزان فتوکاتالیست و شدت انرژی اشعه فرابنفش خورشید توجیه نمود زیرا تمام شرایط به جز منبع تابش اشعه فرابنفش و غلظت فتوکاتالیست، یکسان می‌باشد. بازده پایین تخریب آموکسی سیلین در غلظت پایین فتوکاتالیست و  $\text{pH} = 3$  بدست آمده است. با افزایش غلظت فتوکاتالیست سایت‌های فعال روی آن افزایش می‌یابد و در نتیجه بازده تخریب افزایش پیدا می‌کند. Kanakaraju و همکارانش (۲۰۱۵) از فتوکاتالیست

این تفاوت ناچیز در بازده تخریب را می‌توان به تفاوت در نوع فتوکاتالیست ارتباط داد زیرا طبق مطالعات پیشین در میان انواع تیتانیوم دی‌اکسیدها، نوع P25 شرکت دگوسا بالاترین عملکرد را داراست. در پژوهشی حذف افلوکسازین در غلظت اولیه ۵-۱۰ میلی‌گرم بر لیتر توسط ۱ گرم بر لیتر تیتانیوم دی‌اکسید میزان تخریب ۶۶٪ بدست آمده است (Molinari *et al.*, 2006). تخریب فتوکاتالیستی آموکسی سیلین نمایانگر این است که با افزایش غلظت آموکسی سیلین بازده فرآیند تخریب کاهش می‌یابد. علت این کاهش را می‌توان با مقدار ثابت تولید رادیکال هیدروکسیل و محدودیت انتقال جرم توجیه نمود (Dimitrakopoulou *et al.*, )

افزایش بازده تخریب با افزایش غلظت فتوکاتالیست به دلیل جذب بیشتر نور توسط فتوکاتالیست می‌باشد. که این نتیجه با تحقیقات پیشین روی تخریب آموکسی سیلین مطابقت دارد (Sheydaei *et al.*, 2014). در پژوهشی که Chun و همکارانش (۲۰۱۵) بر روی حذف آموکسی سیلین بوسیله فتوکاتالیست انجام داده‌اند، در غلظت اولیه ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر آنتی‌بیوتیک، مقدار ۱ گرم بر لیتر تیتانیوم دی‌اکسید،  $\text{pH}$  خنثی و مدت زمان ۲۴۰ دقیقه، بازده ۷۰/۱ درصد را گزارش کرده‌اند (Chun *et al.*, 2015). این پژوهش در شرایط یکسان و با

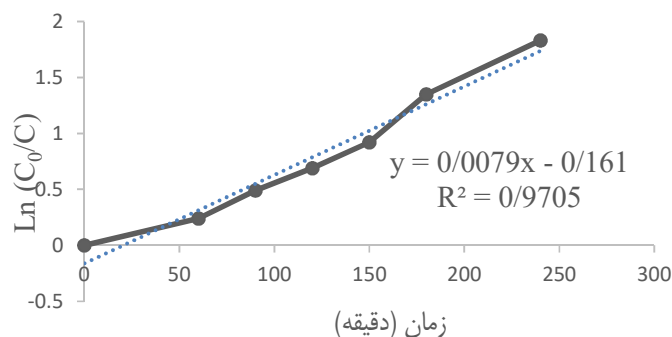


برای غلظت فتوکاتالیست بدست آورده‌اند (Basha et al., 2011).

#### ۴.۴. سینتیک تخریب آموکسی سیلین

در شرایط بدست آمده به منظور بدست آوردن سینتیک تخریب، یک آزمایش طراحی و انجام شد. برای بدست آوردن سینتیک فرآیند در هر ۳۰ دقیقه یک نمونه از محلول برداشته و مورد آنالیز قرار می‌گیرد. نتایج حاصل از آزمایش نشان می‌دهد که سینتیک تخریب فتوکاتالیستی آموکسی سیلین درجه اول می‌باشد که دارای ثابت سرعت  $1/0.038 \text{ min}^{-1}$  است. این نتیجه مشابه با نتایج مطالعات پیشین است که گزارش کرده‌اند سینتیک درجه اول می‌باشد (Elmolla and Chaudhuri, 2010c).

سنز شده بر پایه زئولیت به منظور حذف آموکسی سیلین از فاضلاب استفاده نموده‌اند (Kanakaraju et al., 2015). با غلظت اولیه ۳۰ میلی گرم بر لیتر آنتی بیوتیک و مقدار ۰/۵ و ۱ گرم بر لیتر فتوکاتالیست به بازده کمتر از ۵۰٪ رسیده‌اند، در حالیکه در این پژوهش در غلظت‌های ۱۵ و ۲۰ میلی گرم بر لیتر آموکسی سیلین و مقدار مشابه تیتانیوم دی‌اکسید، بازده تخریب به ترتیب ۶۸٪ و ۵۷٪ بدست آمده است. این نتایج در مقایسه با مطالعه مذکور قابل توجه می‌باشد زیرا زئولیت به کار رفته در فتوکاتالیست نیز نوعی جاذب است و مطمئناً درصدی از بازده مربوط به خاصیت جذبی اش خواهد بود. در مطالعه دیگری که توسط Basha و همکارانش (۲۰۱۱) انجام شده نیز نتیجه‌ی مشابهی



شکل ۶ - نمودار سینتیک واکنش

آن، و تولید بیشتر رادیکال هیدروکسیل با توجه به ساختار فیزیکی و شیمیایی آلاینده و فتوکاتالیست است. همچنین هرچه میزان غلظت آلاینده کمتر باشد بازده واکنش به مراتب بهتر می‌باشد. در مجموع این فرآیند راندمان قابل قبولی از خود ارائه داده است. باتوجه به موارد ذکر شده این روش نوین می‌تواند یک گزینه مناسب و کاربردی برای حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین باشد.

ایران بدلیل قرار گرفتن در موقعیت جغرافیایی مناسب و بهره‌مندی از انرژی پایان‌ناپذیر خورشید، این تکنولوژی می‌تواند گزینه مناسبی برای تصفیه انواع آلاینده‌های آلی به کار رود. طبق تحقیقات انجام شده با این راکتور خورشیدی، کالکتور سهموی مرکب با لوله‌های پرکس برای واکنش‌های فتوکاتالیستی و فتوشیمیایی خورشیدی مناسب می‌باشد و بالاترین بازده را دارد. به طور کلی بازده فرآیند در pH های قلیایی بالا بوده است که این امر به دلیل هیدرولیز بیشتر آموکسی سیلین و عدم ثبات حلقه بتالاکتام

## تقدیر و تشکر

این پروژه با حمایت مالی مرکز مطالعات و همکاری های علمی بین المللی انجام شده است.

ضمن تشکر و قدردانی از همکاری دانشگاه پاریس ۱۳ و دانشگاه اصفهان، شایان ذکر است که اعلام نماییم

## References:

Andreozzi, R., Canterino, M., Marotta, R. & Paxeus, N. 2005. Antibiotic removal from wastewaters: the ozonation of amoxicillin. *Journal of hazardous Materials*, 122, 243-250.

Ay, F. & Kargi, F. 2010. Advanced oxidation of amoxicillin by Fenton's reagent treatment. *Journal of hazardous materials*, 179, 622-627.

Basha, S., Barr, C., Keane, D., Nolan, K., Morrissey, A., Oelgemöller, M. & Tobin, J. M. 2011. On the adsorption/photodegradation of amoxicillin in aqueous solutions by an integrated photocatalytic adsorbent (IPCA): experimental studies and kinetics analysis. *Photochemical & Photobiological Sciences*, 10, 1014-1022.

Chun, S. Y., Chung, W. J., Kim, S. S., Kim, J. T. & Chang, S. W. 2015. Optimization of the TiO<sub>2</sub>/Ge composition by the response surface method of photocatalytic degradation under ultraviolet-A irradiation and the toxicity reduction of amoxicillin. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*.

Derakhsheshpoor, R., Homayoonfal, M., Akbari, A. & Mehrnia, M. R. 2013. Amoxicillin separation from pharmaceutical wastewater by high permeability polysulfone nanofiltration membrane. *J Environ Health Sci Eng*, 11, 1-9.

Dimitrakopoulou, D., Rethemiotaki, I., Frontistis, Z., Xekoukoulotakis, N. P., Venieri, D. & Mantzavinos, D. 2012. Degradation, mineralization and antibiotic inactivation of amoxicillin by UV-A/TiO<sub>2</sub> photocatalysis. *Journal of environmental management*, 98, 168-174.

Elmolla, E. S. & Chaudhuri, M. 2010a. Comparison of different advanced oxidation processes for treatment of antibiotic aqueous solution. *Desalination*, 256, 43-47.

Elmolla, E. S. & Chaudhuri, M. 2010b. Degradation of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution by the UV/ZnO photocatalytic process. *Journal of hazardous materials*, 173, 445-449.

Elmolla, E. S. & Chaudhuri, M. 2010c. Photocatalytic degradation of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution using UV/TiO<sub>2</sub> and UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> photocatalysis. *Desalination*, 252, 46-52.

Homem, V., Alves, A. & Santos, L. 2010. Amoxicillin degradation at ppb levels by Fenton's oxidation using design of experiments. *Science of the total environment*, 408, 6272-6280.

Kanakaraju, D., Kockler, J., Motti, C. A., Glass, B. D. & Oelgemöller, M. 2015. Titanium dioxide/zeolite integrated photocatalytic adsorbents for the degradation of amoxicillin. *Applied Catalysis B: Environmental*, 166, 45-55.

Klauson, D., Babkina, J., Stepanova, K., Krichevskaya, M. & Preis, S. 2010. Aqueous photocatalytic oxidation of amoxicillin. *Catalysis Today*, 151, 39-45.

Li, D., Zhu, Q., Han, C., Yang, Y., Jiang, W. & Zhang, Z. 2015. Photocatalytic degradation of recalcitrant organic pollutants in water using a novel cylindrical multi-column photoreactor packed with TiO<sub>2</sub>-coated silica gel beads. *Journal of hazardous materials*, 285, 398-408.

Malato, S., Fernández-Ibáñez, P., Maldonado, M., Blanco, J. & Gernjak, W. 2009. Decontamination and disinfection of water by solar photocatalysis: recent overview and trends. *Catalysis Today*, 147, 1-59.

Molinari, R., Pirillo, F., Loddo, V. & Palmisano, L. 2006. Heterogeneous photocatalytic degradation of

pharmaceuticals in water by using polycrystalline TiO<sub>2</sub> and a nanofiltration membrane reactor. *Catalysis Today*, 118, 205-213.

Pastrana-martínez, L. M., Faria, J. L., Doña-rodríguez, J. M., Fernández-rodríguez, C. & Silva, A. M. 2012. Degradation of diphenhydramine pharmaceutical in aqueous solutions by using two highly active TiO<sub>2</sub> photocatalysts: Operating parameters and photocatalytic mechanism. *Applied Catalysis B: Environmental*, 113, 221-227.

Prieto-rodríguez, L., Oller, I., Klammerth, N., Agüera, A., Rodríguez, E. & Malato, S. 2013. Application of solar AOPs and ozonation for elimination of micropollutants in municipal wastewater treatment plant effluents. *Water research*, 47, 1521-1528.

Shaykhi, Z. & Zinatizadeh, A. 2014. Statistical modeling of photocatalytic degradation of synthetic amoxicillin wastewater (SAW) in an immobilized TiO<sub>2</sub> photocatalytic reactor using response surface

methodology (RSM). *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 45, 1717-1726.

Sheydaei, M., Aber, S. & Khataee, A. 2014. Degradation of amoxicillin in aqueous solution using nanolepidocrocite chips/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/UV: Optimization and kinetics studies. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 20, 1772-1778.

Sousa, M., Goncalves, C., Pereira, J. H., Vilar, V. J., Boaventura, R. A. & Alpendurada, M. 2013. Photolytic and TiO<sub>2</sub>-assisted photocatalytic oxidation of the anxiolytic drug lorazepam (Lorenin® pills) under artificial UV light and natural sunlight: a comparative and comprehensive study. *Solar Energy*, 87, 219-228.

Xu, H., Cooper, W. J., Jung, J. & Song, W. 2011. Photosensitized degradation of amoxicillin in natural organic matter isolate solutions. *Water research*, 45, 632-638.