Journal of North Khorasan
University of Medical Sciences
No 57, Volume 15, Issue 1

Research Article

Evaluation of US/UV/SO40- Advanced Oxidation Process on the Removal of Amoxicillin from Aqueous Solutions

Seyedeh Nastaran Asadzadeh[1], Ali Paseban[2], Mahdi Ghorbanian[2,3], Nima Firouzeh[3*]

[1] Assistant Professor of Environmental Health Engineering, School of Health, North Khorasan University of Medical Sciences, Bojnurd, Iran; Scholar of Student Research Committee, Faculty of Health, Kerman University of Medical Sciences, Kerman, Iran
[2] Assistant Professor of Environmental Health Engineering, School of Health, North Khorasan University of Medical Sciences, Bojnurd, Iran
[3] Assistant Professor, Vector-Borne Diseases Research Center, North Khorasan University of Medical Sciences, Bojnurd, Iran

*Corresponding author: Nima Firouzeh, Vector-Borne Diseases Research Center, North Khorasan University of Medical Sciences, Bojnord, Iran. E-mail: nimafirouzeh@gmail.com

DOI: 10.32592/nkums.15.1.70

How to Cite this Article:
Asadzadeh S N, Paseban A, Ghorbanian M, Firouzeh N. Evaluation of US/UV/SO40– Advanced Oxidation Process on the Removal of Amoxicillin from Aqueous Solutions. J North Khorasan Univ Med Sci. 2023;15(1):70-78. DOI: 10.32592/nkums.15.1.70

Received: 26 June 2022
Accepted: 06 February 2023

Keywords:
Advanced oxidation Processes (AOPs)
Amoxicillin
Degradation pathways
Water treatment

Abstract

Introduction: Pharmaceuticals, especially antibiotics, are new contaminants that have created a major environmental concern because of their cumulative nature, adverse effects, and drug resistance. Their existence in domestic wastewater will pollute water resources. This study aimed to determine the performance of US/UV/SO40– processes in the removal of Amoxicillin (AMX).

Method: The current experimental study used ultrasonic waves (US), ultraviolet rays (UV), and sulfate radicals (SO40–). To detect the effect of variables, including contact time (0-120 min), the antibiotic concentration (5-50 mg/l), pH (3-9), persulfate concentration (1-7 mM), and the input power (550 W), the reactor has been sampled in different intervals, and the residue concentration was detected using a spectrophotometer in 294 nm length wave.

Results: The results showed that the separate use of US and UV had no high operation with the best removal percentages of 33.3% and 13.29%, respectively. Simultaneous use of US/UV/SO40– showed a more high reduction in AMX concentration and the best removal percentage was 94.12% that took place in pH=6, the antibiotic concentration of 5 mg/L, persulfate concentration of 5 mM, and contact time of 120 min.

Conclusion: The result showed that the US/UV/SO40– process can be used as an operational process to remove the AMX from an aqueous environment.

Copyright © 2023 The Author(s); Published by Journal of North Khorasan University of Medical Sciences. This is an open access article, distributed under the terms of the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International License (http://creativecommons.org/licenses /by-nc/4.0/) which permits others to copy and redistribute material just in noncommercial usages, provided the original work is properly cited.

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]

مجله دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی
دوره ۱۵، شماره ۱، بهار ۱۴۰۲

مقاله پژوهشی

بررسی کارایی فرایند اکسیداسیون پیشرفته امواج اولتراسونیک، تابش فرابنفش و رادیکال سولفات در حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین محلول‌های آبی

سیده نسترن اسدزاده[۱]، علی پاسبان[۲]، مهدی قربانیان[۲،۳]، نیما فیروزه[۳*]

[۱] استادیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی، بجنورد، ایران؛ دانش‌آموخته کمیته تحقیقات دانشجویی، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی کرمان، کرمان، ایران
[۲] استادیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی، بجنورد، ایران
[۳] استادیار، مرکز تحقیقات بیماری‌های منتقله به‌وسیله ناقلین، دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی، بجنورد، ایران
*نویسنده مسئول: نیما فیروزه، مرکز تحقیقات بیماری‌های منتقله به‌وسیله ناقلین، دانشگاه علوم پزشکی خراسان شمالی، بجنورد، ایران. ایمیل: nimafirouzeh@gmail.com

DOI: 10.32592/nkums.15.1.70

تاریخ دریافت: ۱۴۰۱/۰۴/۰۵
تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۱۱/۱۷

واژگان کلیدی:
آموکسی‌سیلین
تصفیه آب
روش‌های تجزیه
فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته

چکیده

مقدمه: محصولات دارویی به‌ویژه آنتی‌بیوتیک‌ها ازجمله آلاینده‌های نوپدیدی هستند که به‌دلیل خاصیت تجمعی اثرات سوء مختلف و ایجاد مقاومت دارویی، نگرانی عمده زیست‌محیطی ایجاد کرده‌اند. بنابراین، هدف این پژوهش، تخمین عملکرد فرایند امواج اولتراسونیک، اشعه فرابنفش و رادیکال سولفات در حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین است.

روش کار: در مطالعه تجربی حاضر، به‌منظور حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین از امواج اولتراسونیک، اشعه فرابنفش و رادیکال سولفات استفاده شد. برای تشخیص اثر متغیرها، شامل زمان تماس (صفر تا ۱۲۰ دقیقه)، غلظت آنتی‌بیوتیک (۵ تا ۵۰ میلی‌گرم در لیتر)، pH (۳ تا ۹)، غلظت پرسولفات (۱ تا ۷ میلی‌مولار) و توان ورودی (۵۵۰ وات)، راکتور در فواصل مختلف نمونه‌برداری شد و برای تشخیص غلظت باقی‌مانده، از دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج ۲۹۴ نانومتر استفاده شد.

یافته‌ها: نتایج نشان داد که استفاده جداگانه از امواج اولتراسونیک و اشعه فرابنفش با بهترین درصد حذف ۳۳/۳ و ۱۲/۲۹ درصد کارایی زیادی نداشت. استفاده همزمان از امواج اولتراسونیک، اشعه فرابنفش و رادیکال سولفات کاهش شدیدتری را در غلظت آموکسی‌سیلین به‌همراه داشت. بهترین بازده حذف در pH=۹، غلظت آنتی‌بیوتیک ۵ میلی‌گرم در لیتر، غلظت پرسولفات ۵ میلی‌مولار و زمان تماس ۱۲۰ دقیقه، برابر با ۹۴/۱۲ درصد بود.

نتیجه‌گیری: نتایج نشان داد که از فرایند امواج اولتراسونیک، اشعه فرابنفش و رادیکال سولفات می‌توان به‌عنوان یک فرایند عملکردی برای حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین از محیط آبی استفاده کرد.

مقدمه

مصرف سالانه آنتی‌بیوتیک‌ها در جهان بین ۱۰۰ هزار تا ۲۰۰ هزار تن برآورد شده است [۱]. آنتی‌بیوتیک‌ها پس از مصرف، به‌ندرت در بدن به‌طور کامل متابولیزه می‌شوند و ۳۰ تا ۹۰ درصد از آن‌ها پس از دفع، به‌صورت فعال باقی می‌مانند [۲]. آنتی‌بیوتیک‌ها ترکیبات چربی‌دوست و پایداری هستند که ساختار شیمیایی خود را در بدن به‌مدت طولانی حفظ می‌کنند [۳]. آموکسی‌سیلین جزء گروه پنی‌سیلین‌ها و نیمه عمر آن ۸ ساعت است. آموکسی‌سیلین نوعی ترکیب فعال بیولوژیکی است که روی میکروارگانیسم‌ها اثر دارد [۴]. بیش از ۶۵ درصد از آنتی‌بیوتیک‌های مصرفی در جهان، به آنتی‌بیوتیک‌های گروه β- لاکتام مربوط می‌شود که آموکسی‌سیلین جزء آن است. آموکسی‌سیلین نوعی آنتی‌بیوتیک وسیع‌الطیف است که در پزشکی و دامپزشکی برای درمان عفونت‌های باکتریایی معده‌ای-روده‌ای و سیستماتیک استفاده می‌شود [۵-۶].

وجود این آنتی بیوتیک‌ها در محیط و ازجمله محیط آبی، ممکن است باعث بروز واکنش‌های مختلف از آلرژی‌های ساده گرفته تا در برخی موارد، سمیت مستقیم شود. علاوه بر این، وجود این مواد دارویی در محیط‌زیست منجر به توسعه پاتوژن‌های مقاوم به آنتی‌بیوتیک می‌شود که به‌طور بالقوه، عملکرد اکوسیستم و سلامت انسان را تهدید می‌کند [۷، ۳]. استاندارد قابل قبول سازمان حفاظت محیط‌زیست برای حضور آنتی‌بیوتیک‌ها در پساب، ۱ میلی‌گرم بر لیتر است. بنابراین، نیاز به توسعه یک روش جایگزین برای حذف این ترکیب و به حداقل رساندن خطرات زیست‌محیطی آن احساس می‌شود [۸]. روش‌هایی مانند جذب با کربن فعال و غشاها، آلاینده را از بین نمی‌برد، بلکه فقط آن را از یک مرحله به مرحله دیگر منتقل می‌کند [۹]. فرایندهای استفاده‌شده برای حذف آنتی‌بیوتیک‌ها شامل

Copyright © 2023 The Author(s); Published by Journal of North Khorasan University of Medical Sciences. This is an open access article, distributed under the terms of the Creative Commons Attribution-NonCommercial 4.0 International License (http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/) which permits others to copy and redistribute material just in noncommercial usages, provided the original work is properly cited.

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]

فرایندهای لجن فعال، میکروفیلتراسیون و اسمز معکوس است که کاربرد این فرایندها مستلزم احیا یا تعویض بستر و تصفیه پساب‌های ثانویه تولیدی است [۱۰-۱۲].

امروزه، استفاده از فناوری‌های اکسیداسیون پیشرفته (Advanced Oxidation Processes: AOPs) به تولید و استفاده از رادیکال‌های هیدروکسیل ($^{\bullet}OH$, HR) و رادیکال‌های سولفات ($SO_4^{\bullet-}$, SR) بستگی دارد و باعث حذف آلاینده‌های آلی سمی و تبدیل آن‌ها به محصولاتی با سمیت کمتر و در برخی موارد به CO_2، H_2O و محصولات معدنی طی فرایند معدنی‌سازی می‌شود [۱۳]. رادیکال هیدروکسیل با قابلیت روداکس زیاد (E^{o}=2.7 V) تحت شرایط آزمایشگاهی) به‌عنوان نوعی اکسیدکننده قوی و غیرانتخابی محسوب می‌شود که با آلاینده‌های آلی واکنش می‌دهد [۱۴]. رادیکال سولفات قابلیت روداکس استاندارد ۲/۵ تا ۳/۱ ولت (تحت شرایط آزمایشگاهی) دارد که به‌صورت انتخابی با آلاینده‌های آلی واکنش می‌دهد [۱۵].

اکسیدان‌هایی مانند سولفات، در اثر فعال‌سازی با امواج فرابنفش و اولتراسونیک، رادیکال‌هایی مانند سولفات و هیدروکسیل را تولید می‌کنند [۱۵-۱۶]. از طرف دیگر، فعال‌سازی پرسولفات با اشعه فرابنفش و امواج اولتراسونیک به‌دلیل حمل‌ونقل آسان، ذخیره‌سازی، حلالیت زیاد در آب، پایدارای متوسط و قابلیت روداکس زیاد (۲/۱ ولت) ترجیح داده می‌شود [۱۷]. علاوه بر این، سولفات واکنش‌پذیری کمتری با مواد آلی طبیعی (NOM) دارد. بنابراین، برای حذف آلاینده‌های آلی در محیط‌زیست با محتوای آلی طبیعی، کمتر مناسب است [۱۸-۱۹]. با توجه به این عوامل، واکنش‌های وابسته به رادیکال سولفات به‌تازگی به‌عنوان فناوری مؤثر برای حذف انواع آلاینده‌های آلی سمی مانند رنگ‌ها [۲۰]، آفت‌کش‌ها [۲۱] و داروها [۲۲] در آب‌های آلوده به‌کار می‌روند.

با توجه بـه وجـود کارخانـه‌های متعدد داروسازی و درنتیجـه، تولیـد حجـم زیادی فاضـلاب حاوی آنتی‌بیوتیک و همچنین، نظر به مقاوم بودن این ترکیبات نسبت به روش‌های متداول تصفیه و اسـتفاده از انرژی‌های جدید و کاهش چشم‌گیر هزینه‌های اقتصادی، به‌کار بردن یک فنـاوری نوین لازم به‌نظر می‌رسد. در این مطالعه، از انرژی فرابنفش، امواج اولتراسونیک و اکسیدان سولفات ($UV/US/SO_4^{0-}$) به‌منظور حذف آموکسی‌سیلین استفاده شد. همچنین، اثر پارامترهای غلظت آموکسی‌سیلین، غلظت اکسیدان و pH اولیه بررسی شد.

روش کار

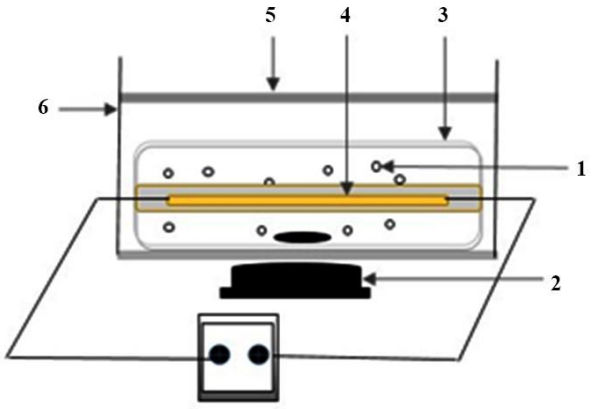
مواد مصرفی

آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین (فرمول شیمیایی $C_{16}H_{19}N_3O_5S_3$) با وزن مولکولی ۳۶۵/۴۱ گرم بر مول و درصد خلوص ۹۹/۵، همراه با سدیم سولفات (فرمول شیمیایی $Na_2S_2O_8$) با درصد خلوص ۹۸، از شرکت سیگما آلدریچ آمریکا تهیه شد.

روش کار

این مطالعه از نوع تجربی-کاربردی بود که به‌صورت ناپیوسته، در مقیاس آزمایشگاهی، روی غلظت‌های مختلفی از محلول سنتتیک حاوی آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین انجام شد. ابتدا، با حل کردن نمک آموکسی‌سیلین در آب مقطر، محلول استوک آموکسی‌سیلین (۵۰۰ میلی‌گرم بر لیتر) به‌صورت هفتگی تهیه و در تاریکی در دمای ۴ درجه سانتی‌گراد نگهداری شد. سپس، محلول‌هایی با غلظت‌های مدنظر، با استفاده از محلول مادر تهیه شد. برای تنظیم pH از اسید کلریدریک و سود یک نرمال استفاده شد. تمامی مواد شیمیایی ساخت شرکت مرک آلمان، با گرید آزمایشگاهی و درجه خلوص بالا بودند. بر اساس سایر پژوهش‌ها، پارامترهای مطالعه‌شده در این پژوهش عبارت بودند از: pH (۳ تا ۹)، غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک (۵ تا ۵۰ میلی‌گرم در لیتر)، فرکانس ورودی ۵۵۰ وات و زمان تماس (صفر تا ۱۲۰ دقیقه).

آزمایش‌ها روی نمونه‌های ۱۰۰ میلی‌لیتری با غلظت‌های مدنظر آنتی‌بیوتیک انجام شد. پس از تنظیم pH، نمونه‌ها در معرض تابش امواج اولتراسوند و اشعه فرابنفش قرار گرفتند. منبع تابش اشعه فرابنفش، لامپ UV با توان اسمی ۱۶ وات بود که با لوله کوارتزی پوشش داده و در وسط راکتور قرار داده شد. کل این سیستم برای جلوگیری از بازتاب، داخل فویل آلومینیومی پیچیده شد (مشخصات راکتور استفاده‌شده در شکل ۱ آمده است).



۱- پرسولفات
۲- همزن
۳- محفظه راکتور
۴- اشعه فرابنفش
۵- فویل آلومینیومی
۶- دستگاه اولتراسونیک

شکل ۱. مشخصات راکتور استفاده‌شده در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]

در فواصل زمانی از پیش تعیین‌شده، از راکتور نمونه‌برداری و غلظت آنتی‌بیوتیک با دستگاه اسپکتروفتومتر UV/Vis مدل $T80^{+}$ PG^{-} Instrumen (ساخت شرکت PG انگلیس) در طول موج ۲۹۴ نانومتر قرائت شد. پس از تعیین شرایط بهینه در هریک از فرایندهای اولتراسونیک و فرابنفش، ادامه آزمایش‌ها به‌منظور تعیین بازده تلفیقی سیستم اولتراسونیک، فرابنفش و رادیکال سولفات، در شرایط بهینه انجام شد. در قسمت پایانی پژوهش، به‌منظور سنجش تأثیر PS، غلظت‌های مختلف (۱ تا ۷ میلی‌مولار) از پرسولفات سدیم به راکتور US/UV اضافه و در زمان‌های مشخص از سیستم ترکیبی نمونه برداشته و با دستگاه اسپکتروفتومتر قرائت شد. به‌منظور تعیین معدنی‌سازی فرایند، میزان حذف کل کربن آلی (Total Organic Carbon: TOC) پس از ۱۵ دقیقه و پایان زمان واکنش (۶۰ دقیقه)، در شرایط بهینه به‌دست آمد و طبق روش شماره ۵۳۱۰B کتاب روش‌های استاندارد برای آزمایش‌های آب‌وفاضلاب، سنجیده شد. آزمایش‌ها با دوبار تکرار انجام شد. برای تجزیه‌وتحلیل داده‌ها از نرم‌افزار Microsoft Excel نسخه ۲۰۱۹ استفاده شد.

یافته‌ها

بررسی تأثیر pH در کارایی حذف آموکسی‌سیلین در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

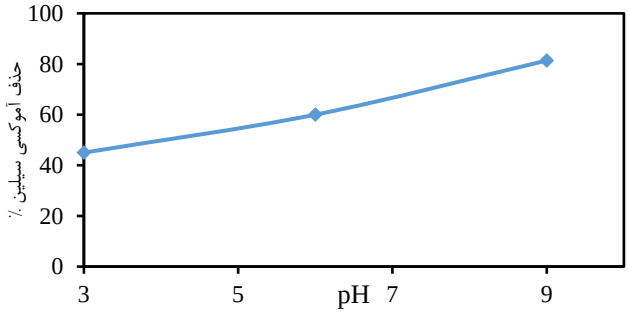
میانگین کارایی حذف آموکسی‌سیلین در سه سطح pH برابر ۳، ۶ و ۹ در نمودار ۱ نشان داده شده است. مقایسه نتایج نشان داد که کارایی حذف در سطوح میانی و خنثی pH، بازده بیشتری دارد. لذا، به‌منظور کاهش مصرف مواد شیمیایی برای تنظیم اسید و بازی بودن محیط، pH=۶ به‌عنوان بهینه انتخاب شد.

بررسی تأثیر غلظت اولیه آموکسی‌سیلین در کارایی حذف آموکسی‌سیلین در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

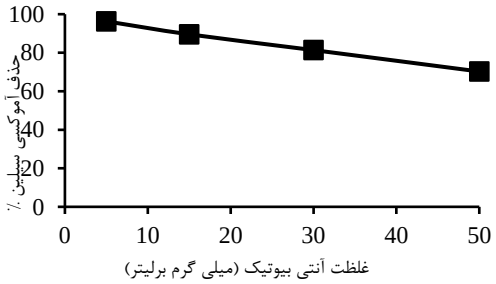
روند حذف آموکسی‌سیلین در غلظت‌های مختلف (۵، ۱۵، ۳۰ و ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر) در نمودار ۲، نشان می‌دهد که با افزایش غلظت اولیه آموکسی‌سیلین، کارایی حذف کاهش می‌یابد. نتایج نشان داد بیشترین کارایی حذف در غلظت ۵ میلی‌گرم بر لیتر به‌دست آمد که به‌عنوان غلظت بهینه انتخاب شد.

بررسی تأثیر غلظت اولیه پرسولفات در کارایی حذف آموکسی‌سیلین در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

نتایج حاصل از نمودار ۳ نشان می‌دهد که با افزایش غلظت پرسولفات در محدوده ۱ تا ۵ میلی‌مول در لیتر، کارایی حذف به‌طور چشم‌گیری افزایش می‌یابد، ولی با افزایش بیشتر غلظت پرسولفات، تأثیر چندانی در کارایی حذف مشاهده نشد. کارایی حذف آموکسی‌سیلین در غلظت‌های پرسولفات ۵ و ۷ میلی‌مول در لیتر تقریباً مشابه هم است. بنابراین، به‌منظور پیشگیری از مصرف بیش از حد پرسولفات، غلظت پرسولفات ۵ میلی‌مول در لیتر به‌عنوان غلظت بهینه پرسولفات برای فرایند در نظر گرفته شد.



نمودار ۱. تأثیر pH اسیدی، خنثی و بازی در بازده حذف آموکسی‌سیلین (غلظت آموکسی‌سیلین= ۵ میلی‌گرم بر لیتر، غلظت پرسولفات= **۵** میلی‌مولار، زمان تماس= ۱۲۰ دقیقه) در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات



نمودار ۲. تغییرات کارایی حذف آموکسی‌سیلین نسبت به تغییرات غلظت اولیه آن در شرایط بهینه (غلظت پرسولفات= **۵** میلی‌مولار، زمان تماس= ۱۲۰ دقیقه و pH=۶)

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]

نمودار ۳. تأثیر غلظت اولیه پرسولفات در بازده حذف آموکسی‌سیلین (غلظت آموکسی‌سیلین= ۵ میلی گرم بر لیتر، pH بهینه= ۶ و زمان واکنش= ۱۲۰ دقیقه) در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

بررسی سینتتیک واکنش حذف آموکسی‌سیلین در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

به‌منظور بررسی میزان حذف آموکسی‌سیلین در غلظت‌های مختلف و مقایسه آن‌ها با یکدیگر، سینتتیک واکنش تعیین شد. مدل‌های سینتتیکی شامل درجه صفر، درجه اول و درجه دوم بررسی و مناسب‌ترین مدل با توجه به ضریب R^2 انتخاب شد. نتایج حاصل از آزمایش‌ها حاکی از آن بود که روند حذف آموکسی‌سیلین در همه غلظت‌ها، از سینتتیک درجه اول پیروی می‌کند (جدول ۱). با افزایش غلظت اولیه آموکسی‌سیلین، ثابت سرعت واکنش کاهش می‌یابد.

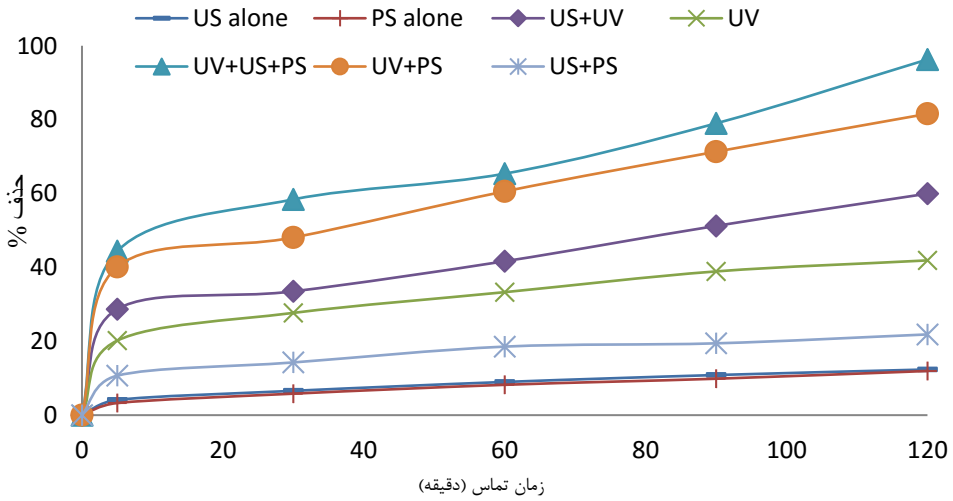
جدول ۱. نتایج بررسی سینتتیک تجزیه آموکسی‌سیلین در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات در شرایط بهینه (غلظت آموکسی‌سیلین= ۵ میلی‌گرم بر لیتر، pH=۶، غلظت بهینه پرسولفات= ۵ میلی‌مولار)

مدل سینتتیک	معادله	پارامتر	
درجه صفر	$r_c = \frac{dC}{dt} = k_0$	K_0 R^2	۰/۱۵۳۴ ۰/۸۴۷۲
درجه یک	$r_c = \frac{dC}{dt} = k_1C$	K_1 R^2	۰/۰۲۳۷ ۰/۹۷۲۶
درجه دو	$r_c = \frac{dC}{dt} = k_2C^2$	K_2 R^2	۰/۰۰۱۷ ۰/۹۳۱۵

بررسی تأثیر سینرژیستی فرایند تلفیقی امواج اولتراسونیک، اشعه فرابنفش و پرسولفات در مقایسه با فرایند امواج اولتراسونیک، اشعه فرابنفش و پرسولفات به‌تنهایی

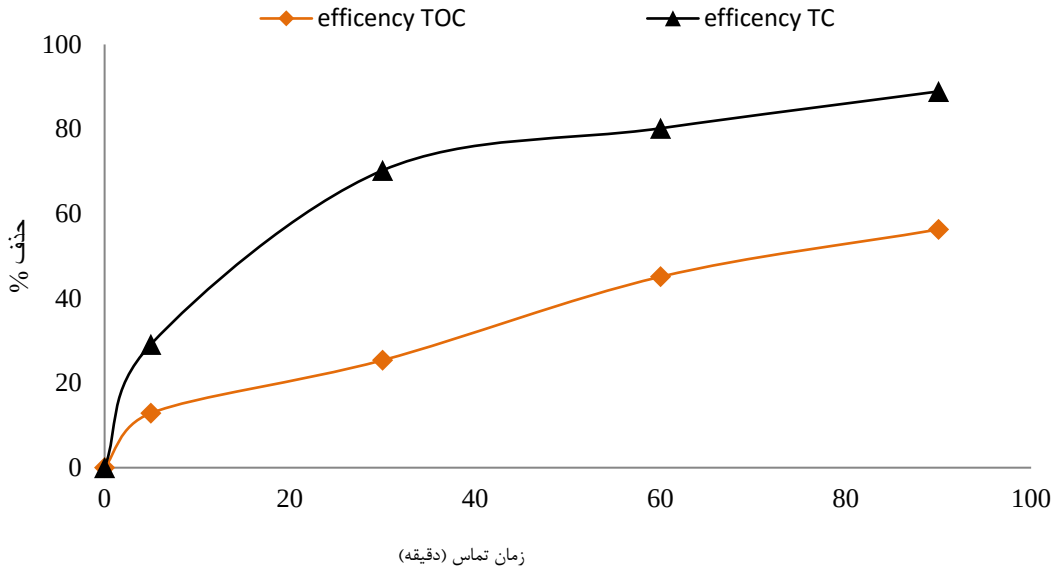
به‌منظور تعیین اثربخشی فرایند تلفیقی امواج اولتراسونیک، اشعه فرابنفش و پرسولفات در مقایسه با فرایند امواج اولتراسونیک، اشعه فرابنفش و پرسولفات به‌تنهایی، شاخص سینرژیستی بررسی شد.

نتایج به‌دست‌آمده حاکی از آن بود که فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات در مقایسه با فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات تنها، اثر سینرژیستی یکسانی در همه غلظت‌های اولیه آموکسی‌سیلین دارد و فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات در مقایسه با فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات تنها، اثر سینرژیستی بیشتر از ۵ دارد که این اثر سینرژیستی چشمگیر فرایند ترکیبی، نشان‌دهنده توانایی بسیار زیاد این فرایند در فعال‌سازی پرسولفات و تولید بیشتر رادیکال‌های آزاد فعال است (نمودار ۴).



نمودار ۴. مقایسه کارایی فرایندهای مختلف در شرایط بهینه

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]



نمودار ۵. بازده حذف TOC در شرایط بهینه (غلظت آموکسی‌سیلین= ۵ میلی‌گرم بر لیت، غلظت بهینه پرسولفات= ۵ میلی‌مولار و زمان تماس= ۱۲۰ دقیقه)

بررسی کارایی فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات در معدنی‌سازی آموکسی‌سیلین

فرایندهای فتوسونوشیمیایی، توانایی تجزیه ساختاری آلاینده‌های آلی و درنهایت، معدنی‌سازی کامل به CO_2 را دارند. معدنی‌سازی کامل اثر آنتی‌بیوتیک‌ها به‌دلیل پایداری زیاد آن‌ها بسیار مشکل است. نتایج به‌دست‌آمده نشان می‌دهد که حذف TOC از سینتتیک درجه اول پیروی می‌کند (نمودار ۵).

بررسی تأثیر رادیکال اسکاونجر در میانگین بازده حذف

به‌منظور بررسی تأثیر رادیکال اسکاونجر در کارایی حذف و تعیین گونه‌های غالب اکسیدکننده، از دو نوع رادیکال اسکاونجر ترشیاری بوتیل الکل (TBA) به‌عنوان اسکاونجر رادیکال هیدروکسیل و متانول به‌عنوان اسکاونجر هر دو رادیکال سولفات و هیدروکسیل استفاده شد. نتایج مطالعه نشان داد که با افزودن رادیکال‌خوارهای ترت بوتانول و متانول، بازده از ۹۶ درصد به‌ترتیب به ۴۸/۳۴ و ۳۴/۵۵ درصد کاهش یافت. این یافته‌ها بیانگر این بود که هر دو رادیکال سولفات و هیدروکسیل در تجزیه آموکسی‌سیلین با فرایند سونوشیمیایی نقش دارند، اما رادیکال غالب در تجزیه آموکسی‌سیلین، در هر سه سطح pH رادیکال سولفات است.

بحث

بررسی تأثیر pH در کارایی حذف آموکسی‌سیلین در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

نمودار ۱ نشان داد که بیشترین بازده حذف در pH خنثی حاصل شد. علت کاهش بازده در pH اسیدی، عدم فعال‌سازی مؤثر پرسولفات و علت کاهش بازده حذف آموکسی‌سیلین در pH قلیایی، واکنش رادیکال آزاد سولفات با یون هیدروکسیل و تولید یون سولفات و رادیکال آزاد هیدروکسیل است. رادیکال آزاد هیدروکسیل سریعاً به رادیکال آزاد اکسیژن تبدیل می‌شود که در مقایسه با رادیکال آزاد سولفات، بسیار ضعیف‌تر است [۲۳]. نتایج حاصل از مطالعه رضایی و همکاران (۱۴۰۰) در زمینه حذف آموکسی‌سیلین طی فرایند فتوکاتالیستی نشان داد که pH برابر ۵، بیشترین بازده حذف را دارد [۲۴].

مولکول‌های آموکسی‌سیلین طبیعتی آمفوتریک دارند و نقطه ایزوالکتریک آن برابر با ۵/۲ است. بنابراین، pH فاز محلول، تعیین‌کننده حالت یونیزاسیون مولکول‌های آموکسی‌سیلین است و بسته به مقادیر pH، ممکن است بار مثبت، منفی یا خنثی داشته باشد. همان‌طور که نمودار ۱ نشان می‌دهد، بیشترین بازده حذف آموکسی‌سیلین در pH برابر ۶ رخ داده که نزدیک نقطه ایزوالکتریک است.

این نتایج مشابه با نتایج لشکریانی و همکاران است که تجزیه آموکسی‌سیلین را با استفاده از فرایند $PMS/CoFe_2O_4/G$ در pHهای مختلف بررسی کردند [۲۵].

بررسی تأثیر غلظت اولیه آموکسی‌سیلین در کارایی حذف در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

نتایج حاصل از نمودار ۲ نشان داد که با افزایش غلظت اولیه آموکسی‌سیلین، مقدار کل آموکسی‌سیلین در محلول آبی افزایش می‌یابد. درحالی‌که، شرایط کاویتاسیون و مقدار رادیکال HO^0 ثابت است که این موضوع ممکن است کارایی حذف و میزان تجزیه آموکسی‌سیلین را کاهش دهد. در غلظت‌های بیشتر آموکسی‌سیلین، احتمال برخورد و واکنش بین مولکول‌های آموکسی‌سیلین و رادیکال هیدروکسیل و سولفات کاهش می‌یابد [۲۶].

علاوه بر این، افزایش غلظت آموکسی‌سیلین ممکن است منجر به تولید محصولات میانی بیشتر و مقاوم‌تر با میل واکنشی بیشتر شود. بنابراین، کاهش کارایی حذف آموکسی‌سیلین ممکن است به‌دلیل رقابت و

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]

مداخله محصولات میانی حاصل از تجزیه آموکسی‌سیلین در واکنش با رادیکال‌های هیدروکسیل باشد که درنهایت منجر به کاهش واکنش آموکسی‌سیلین با رادیکال‌های هیدروکسیل می‌شود. با این‌حال، با افزایش غلظت آموکسی‌سیلین در محلول‌های آبی، مولکول‌های آموکسی‌سیلین بیشتری وارد حباب‌های کاویتاسیون و اینترفاز آب-حباب می‌شوند و درنتیجه مقدار کل آموکسی‌سیلین حذف‌شده افزایش می‌یابد [۲۷]. نتایج این پژوهش مشابه با نتایج محققان دیگر ازجمله Dulova و همکاران (۲۰۲۰) و Kattel و همکاران (۲۰۲۰) است [۲۸-۲۹].

بررسی تأثیر غلظت اولیه پرسولفات در کارایی حذف آموکسی‌سیلین در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

نتایج مطالعات متعددی نشان داده است که افزایش غلظت پرسولفات فراتر از یک عدد مشخص، منجر به افزایش بسیار جزئی و حتی کاهش در نرخ تجزیه مواد آلی می‌شود [۱۸]. منبع تولید رادیکال‌های سولفات در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات، پرسولفات است. بنابراین، در غلظت‌های زیاد پرسولفات، رادیکال‌های سولفات بیشتری برای تجزیه آموکسی‌سیلین تولید می‌شود. در مطالعه Sun و همکاران که به بررسی روند کاهش سمیت آموکسی‌سیلین با استفاده از US/PS/Fe پرداختند، به این نتیجه رسیدند که با افزایش غلظت پرسولفات، بازده حذف آموکسی‌سیلین به‌طور قابل توجهی افزایش می‌یابد [۱۸].

افزایش غلظت عامل اکسیدکننده تا مقدار معینی سرعت واکنش را افزایش می‌دهد. به‌طوری‌که، با افزایش غلظت پرسولفات بیش از ۵ میلی‌مولار، روند کاهشی و معکوس در حذف آموکسی‌سیلین مشاهده شد. با افزایش دُز پرسولفات، رادیکال $SO_4^{\cdot-}$ بیش از حد تولید می‌شود که به‌عنوان رادیکال اسکاونجر عمل می‌کند و طبق معادلات ۱ و ۲، عاملی برای تبدیل رادیکال سولفات به پرسولفات است. از طرف دیگر، رادیکال پرسولفات با پرسولفات واکنش می‌دهد و آنیون سولفات تولید می‌کند که این موارد باعث از بین رفتن رادیکال پرسولفات می‌شود و کارایی حذف را کاهش می‌دهد [۱۸].

معادله ۱: $SO_4^{0-}+S_2O_4^{2-} \rightarrow SO_4^{2-}+S_2O_8^{0-}$

معادله ۲: $SO_4^{0-}+SO_4^{0-} \rightarrow S_2O_8$

بررسی سینتیک واکنش حذف آموکسی‌سیلین در فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

نتایج حاصل از آزمایش‌ها حاکی از آن بود که با افزایش غلظت اولیه آموکسی‌سیلین، ثابت سرعت واکنش کاهش می‌یابد (معادله ۳).

معادله ۳: $-dTC/dt=kTC$

در معادله ۳، k ثابت سرعت سنتیک درجه اول است و از طریق شیب خط حاصل از رسم منحنی تغییرات لگاریتم، غلظت باقی‌مانده آموکسی‌سیلین به غلظت اولیه آن در مقابل زمان به‌دست می‌آید.

مطالعه Zhang و همکاران روی تجزیه آموکسی‌سیلین با استفاده از فرایند فتوشیمیایی نشان داد که سینتیک واکنش تجزیه آموکسی سیلین از نوع درجه اول بوده است [۳۰].

بررسی تأثیر سینرژیستی فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات در مقایسه با فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات

نتایج به‌دست‌آمده حاکی از آن است که فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات در مقایسه با هر فرایند به‌تنهایی، اثر سینرژیستی بیشتری دارد که این اثر سینرژیستی چشمگیر فرایند ترکیبی نشان‌دهنده توانایی بسیار زیاد این فرایند در فعال‌سازی پرسولفات و تولید بیشتر رادیکال‌های آزاد فعال است. با توجه به نتایج، کارایی فرایند UV قابل ملاحظه نیست. این میزان حذف، هرچند ناچیز است، ناشی از فتولیز مستقیم یا هیدرولیز آنتی‌بیوتیک تحت این شرایط است. نتایج حاصل با مطالعه Wang و همکاران در سال ۲۰۲۱ در زمینه تجزیه PFBA با فرایند پرسولفات/اشعه فرابنفش مطابقت دارد [۳۱].

تنها منبع تولید رادیکال آزاد OH^{o} در حضور امواج اولتراسونیک، سونولیز آب است. میزان رادیکال تولیدشده طی این فرایند ناچیز است و قدرت تخریب و حذف آموکسی‌سیلین تحت این شرایط، چشمگیر نیست. Olushola و همکاران مشخص کردند که اولتراسونیک به‌تنهایی تأثیر ناچیزی در حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین داشته است [۳۲].

بررسی کارایی فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات در معدنی‌سازی آموکسی‌سیلین

فرایندهای فتوسونوشیمیایی توانایی تجزیه ساختاری آلاینده‌های آلی و درنهایت معدنی‌سازی کامل به CO_2 را دارند. معدنی‌سازی کامل اثر آنتی‌بیوتیک‌ها به‌دلیل پایداری زیاد آن‌ها بسیار مشکل است. نتایج نشان می‌دهد که حذف TOC از سینتیک درجه اول پیروی می‌کند. اگرچه فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات کارایی قابل ملاحظه‌ای در حذف TOC دارد، عدم معدنی‌سازی کامل آموکسی‌سیلین توسط این فرایند نشان‌دهنده تشکیل فرآورده‌های جانبی ناشی از تجزیه آموکسی‌سیلین طی فرایند است [۳۳].

بررسی تأثیر رادیکال اسکاونجر در میانگین بازده حذف

نتایج نشان داد که فعال‌سازی پرسولفات توسط اشعه فرابنفش و امواج اولتراسوند منجر به تشکیل رادیکال‌های سولفات می‌شود. حضور رادیکال‌های سولفات در محلول‌های آبی ممکن است منجر به واکنش‌های تبادلات رادیکالی به‌منظور تولید رادیکال‌های هیدروکسیل شود. بنابراین، هر دو رادیکال سولفات و هیدروکسیل مسئول تجزیه آلاینده‌های آلی توسط فرایند اشعه فرابنفش، امواج اولتراسونیک و پرسولفات هستند. نتایج مطالعه نشان داد که در تجزیه آموکسی‌سیلین با فرایند سونوشیمیایی، هر دو رادیکال سولفات و هیدروکسیل نقش دارند، اما رادیکال غالب در تجزیه آموکسی‌سیلین در هر سه سطح اسیدی، خنثی و قلیایی، رادیکال سولفات است [۱۴-۱۵].

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]

نتیجه‌گیری

نتایج این مطالعه نشان می‌دهد که فرایند سونولیز و فتولیز به‌تنهایی به‌عنوان روشی کارآمد برای حذف آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین از محلول‌های آبی استفاده نمی‌شود، اما افزودن کاتالیست پرسولفات به‌طور قابل ملاحظه‌ای بازده حذف را افزایش می‌دهد. با توجه به نتایج به‌دست‌آمده و با در نظر داشتن اهداف تصفیه، استانداردهای موجود برای تخلیه پساب و کم بودن هزینه عملیاتی، از این فرایند می‌توان به‌عنوان تصفیه نهایی پساب یا پیش‌تصفیه در مقیاس وسیع‌تر نیز استفاده کرد. از طرف دیگر، می‌توان از این فرایند برای حذف آنتی‌بیوتیک‌ها با ساختار مشابه یا افزایش زیست‌تخریبی آن‌ها استفاده کرد.

سپاسگزاری

نویسندگان بر خود لازم می‌دانند از تمام کسانی که در انجام این پژوهش آنان را یاری کردند، تقدیر و تشکر کنند. این مقاله حاصل طرح مصوب دانشکده علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی کرمان با کد اخلاق IR.KMU.1398.528 است.

تعارض منافع

در پژوهش حاضر، هیچ‌گونه تضاد منافعی وجود ندارد.

References

1. Ghauch A, Tuqan A, Abou Assi H. Antibiotic removal from water: elimination of amoxicillin and ampicillin by microscale and nanoscale iron particles. *Environ Pollut.* 2009;157(5):1626-1635. **DOI:** 10.1016/j.envpol.2008.12.024 **PMID:** 19168269
2. Diório A, Díaz-Angulo J, Castellanos RM, Gomes AI, Bergamasco R, Vieira MF, et al. A tubular ceramic membrane coated with TiO2-P25 for radial addition of H2O2 towards AMX removal from synthetic solutions and secondary urban wastewater. *Environ Sci Pollut Res Int.* 2022;**29**(28):42120-42129. **DOI:** 10.1007/s11356-021-14297-4 **PMID:** 33983609
3. Belaissa Y, Nibou D, Assadi AA, Bellal B, Trari M. A new hetero-junction p-CuO/n-ZnO for the removal of amoxicillin by photocatalysis under solar irradiation. *J Taiwan Inst Chem Eng.* 2016;**68**:254-265. **DOI:** 10.1016/j.jtice.2016.09.002
4. Jin X, Zha S, Li S, Chen Z. Simultaneous removal of mixed contaminants by organoclays—amoxicillin and Cu (II) from aqueous solution. *Appl Clay Sci.* 2014;**102**:196-201. **DOI:** 10.1016/j.clay.2014.09.040
5. Moarefian A, Golestani HA, Bahmanpour H. Removal of amoxicillin from wastewater by self-made Polyethersulfone membrane using nanofiltration. *J Environ Health Sci Eng.* 2014;**12**(1):127. **DOI:** 10.1186/s40201-014-0127-1 **PMID:** 25379184
6. Tran ML, Fu CC, Juang RS. Removal of metronidazole and amoxicillin mixtures by UV/TiO2 photocatalysis: an insight into degradation pathways and performance improvement. *Environ Sci Pollut Res Int.* 2019;**26**(12):11846-11855. **DOI:** 10.1007/s11356-019-04683-4 **PMID:** 30820920
7. Pham TD, Bui TT, Nguyen VT, Bui TK, Tran TT, Phan QC, et al. Adsorption of polyelectrolyte onto nanosilica synthesized from rice husk: characteristics, mechanisms, and application for antibiotic removal. *Polymers (Basel).* 2018;**10**(2):220. **DOI:** 10.3390/polym10020220 **PMID:** 30966256
8. Yaghmaeian K, Moussavi G, Alahabadi A. Removal of amoxicillin from contaminated water using NH4Cl-activated carbon: Continuous flow fixed-bed adsorption and catalytic ozonation regeneration. *Chem Eng J Adv.* 2014;**236**:538-544. **DOI:** 10.1016/j.cej.2013.08.118
9. Ighalo JO, Igwegbe CA, Aniagor CO, Oba SN. A review of methods for the removal of penicillins from water. *J Water Process Eng.* 2021;**39**:101886. **DOI:** 10.1016/j.jwpe.2020.101886
10. Oberoi AS, Jia Y, Zhang H, Khanal SK, Lu H. Insights into the fate and removal of antibiotics in engineered biological treatment systems: a critical review. *Environ Sci Technol.* 2019;**53**(13):7234-7264. **DOI:** 10.1021/acs.est.9b01131 **PMID:** 31244081
11. Eniola JO, Kumar R, Barakat MA. Adsorptive removal of antibiotics from water over natural and modified adsorbents. *Environ Sci Pollut Res Int.* 2019;**26**(34):34775-34788. **DOI:** 10.1007/s11356-019-06641-6 **PMID:** 31713137
12. Oliveira JT, de Sousa MC, Martins IA, de Sena LM, Nogueira TR, Vidal CB, et al. Electrocoagulation/oxidation/flotation by direct pulsed current applied to the removal of antibiotics from Brazilian WWTP effluents. *Electrochim Acta.* 2021;**388**:138499. **DOI:** 10.1016/j.electacta.2021.138499
13. Mirzaei A, Chen Z, Haghighat F, Yerushalmi L. Removal of pharmaceuticals from water by homo/heterogonous Fenton-type processes–A review. *Chemosphere.* 2017;**174**:665-688. **DOI:** 10.1016/j.chemosphere.2017.02.019 **PMID:** 28199944
14. Pirsaheb M, Hossaini H, Janjani H. Reclamation of hospital secondary treatment effluent by sulfate radicals based–advanced oxidation processes (SR-AOPs) for removal of antibiotics. *Microchem J.* 2020;**153**:104430. **DOI:** 10.1016/j.microc.2019.104430
15. Behnami A, Aghayani E, Benis KZ, Sattari M, Pourakbar M. Comparing the efficacy of various methods for sulfate radical generation for antibiotics degradation in synthetic wastewater: degradation mechanism, kinetics study, and toxicity assessment. *RSC Adv.* 2022;**12**(23):14945-14956. **DOI:** 10.1039/d2ra01618d **PMID:** 35702226
16. Kalantary RR, Rahmatinia M, Moradi M. Data on modeling of UV/Na2S2O8/FeS2 process in amoxicillin removal using Box-Behnken methodology. *Data Brief.* 2018;**19**:1810-1815. **DOI:** 10.1016/j.dib.2018.06.109 **PMID:** 30246081
17. Eslami A, Asadi A, Meserghani M, Bahrami H. Optimization of sonochemical degradation of amoxicillin by sulfate radicals in aqueous solution using response surface methodology (RSM). *J Mol Liq.* 2016;**222**:739-744. **DOI:** 10.1016/j.molliq.2016.07.096
18. Sun X, Qin Y, Zhou W. Degradation of amoxicillin from water by ultrasound-zero-valent iron activated sodium persulfate. *Sep Purif Technol.* 2021;**275**(1):119080. **DOI:** 10.1016/j.seppur.2021.119080
19. Yang Q, Ma Y, Chen F, Yao F, Sun J, Wang S, et al. Recent advances in photo-activated sulfate radical-advanced oxidation process (SR-AOP) for refractory organic pollutants removal in water. *Chem Eng J.* 2019;**378**:122149. **DOI:** 10.1016/j.cej.2019.122149
20. Javaid R, Qazi UY. Catalytic oxidation process for the degradation of synthetic dyes: an overview. *Int J Environ Res Public Health.* 2019;**16**(11):2066. **DOI:** 10.3390/ijerph16112066 **PMID:** 31212717
21. Liu P, Wu Z, Abramova AV, Cravotto G. Sonochemical processes for the degradation of antibiotics in aqueous solutions: A review. *Ultrason Sonochem.* 2021;**74**:105566. **DOI:** 10.1016/j.ultsonch.2021.105566 **PMID:** 33975189
22. Lian L, Yao B, Hou S, Fang J, Yan S, Song W. Kinetic study of hydroxyl and sulfate radical-mediated oxidation of pharmaceuticals in wastewater effluents. *Environ Sci Technol.* 2017;**51**(5):2954-2962. **DOI:** 10.1021/acs.est.6b05536 **PMID:** 28151652
23. Dehghan S, Kakavandi B, Kalantary RR. Heterogeneous sonocatalytic degradation of amoxicillin using ZnO@ Fe3O4 magnetic nano-composite: influential factors, reusability and mechanisms. *J Mol Liq.* 2018;**264**:98-109. **DOI:** 10.1016/j.molliq.2018.05.020
24. Kakavandi B, Esrafili A, Mohseni-Bandpi A, Jonidi Jafari A, Rezaei Kalantary R. Magnetic Fe3O4@ C nanoparticles as adsorbents for removal of amoxicillin from aqueous solution. *Water Sci Technol.* 2014;**69**(1):147-155. **DOI:** 10.2166/wst.2013.568

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]

PMID: 24434981
25. Lashkaryani EB, Kakavandi B, Kalantary RR, Jafari AJ, Gholami M. Activation of peroxymonosulfate into amoxicillin degradation using cobalt ferrite nanoparticles anchored on graphene (CoFe2O4@ Gr). *Toxin Rev.* 2021;**40**(2):215-224. DOI: 10.1080/15569543.2019.1582066
26. Zhang Y, Xiao Y, Zhong Y, Lim TT. Comparison of amoxicillin photodegradation in the UV/H2O2 and UV/persulfate systems: Reaction kinetics, degradation pathways, and antibacterial activity. *Chem Eng J.* 2019;**372**:420-428. DOI: 10.1016/j.cej.2019.04.160
27. Soltani RD, Mashayekhi M, Khataee A, Ghanadzadeh MJ, Sillanpää M. Hybrid sonocatalysis/electrolysis process for intensified decomposition of amoxicillin in aqueous solution in the presence of magnesium oxide nanocatalyst. *J Ind Eng Chem.* 2018;**64**:373-382.
28. Dulova N, Kattel E, Kaur B, Trapido M. UV-induced persulfate oxidation of organic micropollutants in water matrices. *Ozone Sci Eng.* 2020;**42**(1):13-23. DOI: 10.1080/01919512.2019.1599711
29. Kattel E, Kaur B, Trapido M, Dulova N. Persulfate-based photodegradation of a beta-lactam antibiotic amoxicillin in various water matrices. *Environ Technol.* 2020;**41**(2):202-210. DOI: 10.1080/09593330.2018.1493149 PMID: 29932810
30. Kumar A, Rana A, Sharma G, Naushad M, Dhiman P, Kumari A, et al. Recent advances in nano-Fenton catalytic degradation of emerging pharmaceutical contaminants. *J Mol Liq.* 2019;**290**:111177. DOI: 10.1016/j.molliq.2019.111177
31. Wang M, Wang Q, Cai Y, Yuan R, Wang F, Qian Y, et al. Efficient degradation and defluorination of perfluorobutyric acid under UV irradiation in the presence of persulfate. *J Clean Prod.* 2021;**327**:129472. DOI: 10.1016/j.jclepro.2021.129472
32. Ayanda OS, Aremu OH, Akintayo CO, Sodeinde KO, Igboama WN, Oseghe EO, et al. Sonocatalytic degradation of amoxicillin from aquaculture effluent by zinc oxide nanoparticles. *Environ Nanotechnol Monit Manag.* 2021;**16**:100513. DOI: 10.1016/j.enmm.2021.100513
33. Pourakbar M, Moussavi G, Shekoohiyan S. Homogenous VUV advanced oxidation process for enhanced degradation and mineralization of antibiotics in contaminated water. *Ecotoxicol Environ Saf.* 2016;**125**:72-77. DOI: 10.1016/j.ecoenv.2015.11.040 PMID: 26669695

[Downloaded from journal.nkums.ac.ir on 2025-12-08]