

بررسی حذف فتوکاتالیستی سفالکسین از محلول‌های آبی با استفاده از فرایند UV/ZnO

شهین ادهمی^۱، مهدی فضل‌زاده^۲، صادق حضرتی^{۳*}

^۱ دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اردبیل، اردبیل، ایران
^۲ گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اردبیل، اردبیل، ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۶/۶/۲؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۶/۱۰/۴

چکیده

زمینه و هدف: تصفیه‌های متداول فاضلاب قادر به حذف مؤثر مواد دارویی از قبیل آنتی بیوتیک‌ها نیستند، بنابراین حذف آنتی بیوتیک‌های باقی مانده از محیط زیست مهم می‌باشد. هدف از این مطالعه بررسی کارایی فرایند فتوکاتالیستی UV/ZnO در حذف آنتی بیوتیک سفالکسین از محلول‌های آبی می‌باشد. مواد و روش‌ها: این مطالعه از نوع تجربی - کاربردی بود که به صورت ناپیوسته در مقیاس آزمایشگاهی صورت پذیرفت. متغیرهای مورد مطالعه در این تحقیق شامل pH اولیه محلول (11، 9، 7، 5، 3)، دوز نانوذره (1، 5/0، 75/0، 25/0، 1/0، 05/0 گرم در لیتر)، زمان واکنش (40-50-60-10-15-20-30 دقیقه) و غلظت اولیه آلاینده (100، 50، 25، 10 میلی گرم در لیتر) مورد بررسی قرار گرفتند. سنجش مقدار سفالکسین در نمونه‌ها با استفاده از دستگاه HPLC انجام گرفت. یافته‌ها: نتایج نشان داد که با کاهش pH و کاهش غلظت اولیه سفالکسین و افزایش زمان تماس، کارایی فرایند افزایش می‌یابد. ولی با افزایش دوز نانوذره تا 0.1 گرم بر لیتر، کارایی فرایند افزایش و بیش از این مقدار کاهش می‌یابد. نتیجه‌گیری: نتایج این مطالعه نشان داد که استفاده از فرایند فتوکاتالیستی UV/ZnO در حذف آنتی بیوتیک سفالکسین از محلول‌های آبی می‌تواند به عنوان روشی کارآمد برای حذف سفالکسین از محلول‌های آبی مورد استفاده قرار گیرد.

کلمات کلیدی: سفالکسین، فتوکاتالیستی، اکسید روی، اشعه فرابنفش

مقدمه

با توسعه اقتصاد و جامعه، آنتی بیوتیک‌ها به طور فزاینده در صنعت داروسازی، کشاورزی و تولید زیستی به کار برده می‌شوند.^۱ آلودگی محیط زیست با آنتی بیوتیک‌ها از جمله سرنوشت آنان در خاک و آب، به دلیل خطرات بالقوه برای سلامت انسان و محیط زیست یکی از نگرانی‌های مهم امروز می‌باشد.^۲ فاضلاب خانگی، بیمارستان‌ها و کارخانه‌های داروسازی منابع اصلی آنتی بیوتیک می‌باشد.^۳ ۹۰-۳۰ درصد آنتی بیوتیک‌های موجود به طور کامل در ارگانسیم‌ها متابولیزه نشده و از طریق ادرار و مدفوع، به عنوان ترکیب فعال به محیط زیست تخلیه می‌شود.^۴ امروزه درمان عفونت‌ها به علت افزایش سویه‌های باکتریایی مقاوم به آنتی بیوتیک‌ها دشوارتر شده است. گزارش شده که در غلظت‌های زیرمهماری آنتی بیوتیک‌ها، انتقال ژن‌های مقاومت افزایش می‌یابد.^۵ ظهور باکتری‌های مقاوم شاید بزرگترین چالش باشد، زیرا باعث می‌شود درمان دشوار، پرهزینه و در پایان حتی غیرممکن شود.^۶

تصفیه‌های متداول فاضلاب قادر به حذف مؤثر مواد دارویی از قبیل آنتی بیوتیک‌ها نیستند،^{۶،۷} بنابراین حذف آنتی بیوتیک‌های باقی مانده از محیط زیست مهم می‌باشد. سفالکسین (CFX) یک آنتی بیوتیک سفالوسپورین نسل اول است^۸ و با طیف گسترده‌ای از فعالیت‌های ضد باکتریایی و حلالیت بالا در آب، به طور گسترده‌ای برای درمان انواع عفونت‌ها در انسان ناشی از باکتری‌های گرم مثبت و گرم منفی استفاده می‌شود.^{۲،۷} در اروپا، سفالوسپورین دومین گروه آنتی بیوتیک دارای بیشترین تجویز است، و در بین این گروه، سفالکسین دارای بیشترین تجویز است. از آنجا که CFX قابلیت انتقال بیولوژیکی اش تنها ۱۰ درصد می‌باشد، ۹۰ درصد باقی مانده بدون تغییر در ادرار دفع می‌شود.^۵

تکنیک‌های مختلف مانند جداسازی غشایی مایعات،^۹

استخراج فاز جامد،^{۱۰} تقویت زیستی،^{۱۱} اکسیداسیون الکتروفتون،^۵ نانوفیلتراسیون،^{۱۲} تجزیه سونو شیمیایی^{۱۳} و کمپلکس آنزیمی^{۱۴} برای حذف CFX از محلول‌های آبی استفاده شده است. نانوتکنولوژی به عنوان یکی از تکنولوژی‌های جذاب برای تصفیه آب ظاهر شده است. مزایای استفاده از نانو مواد شامل سطح زیاد، واکنش پذیری بالا، ساخت در محل و پتانسیل بالای استفاده در تصفیه آب می‌باشد.^{۱۵} ZnO دارای مزایای پایداری بالا در مقابل خوردگی نوری و شیمیایی، قابلیت تجزیه ترکیبات آلی سمی، قابلیت جذب طیف وسیعی از امواج الکترومغناطیسی، قابلیت فتوکاتالیستی در معرض تابش پرتو به دلیل راندمان بالا در تولید الکترون‌ها، حرکت الکترون‌ها و جداسازی الکترون‌های نوری و منفدهای موجود در آن می‌باشد که برای اکسیداسیون طیف وسیعی از ترکیبات آلی استفاده شده است.^{۱۶} با توجه به اینکه بیش تر فرایندهای متداول تصفیه آب قادر به تأمین حداقل (DOC) کربن آلی محلول نیست، لذا در سال‌های اخیر روش‌های نوینی از جمله اکسیداسیون پیشرفته (AOP) مورد توجه قرار گرفته است. در فرایند اکسیداسیون پیشرفته با استفاده از تولید رادیکال هیدروکسیل (OH^0) ترکیباتی که توسط اکسیدکننده‌های متداول اکسید نمی‌شوند، از بین می‌روند.^{۱۷} مکانیزم اکسیداسیون پیشرفته با فناوری فتوکاتالیتیکی، تابش اشعه فرابنفش به ماده نیمه هادی و متعاقب آن برانگیختگی الکترون از نوار ظرفیت به نوار رسانایی است. برانگیختگی الکترون باعث تولید رادیکال‌های هیدروکسیل در محلول‌های آبی می‌شود.^{۱۸،۱۹} بنابراین این مطالعه با هدف بررسی کارایی فرایند فتوکاتالیستی UV/ZnO در حذف آنتی بیوتیک تتراسایکلین از محلول‌های آبی می‌باشد.

مواد و روش‌ها

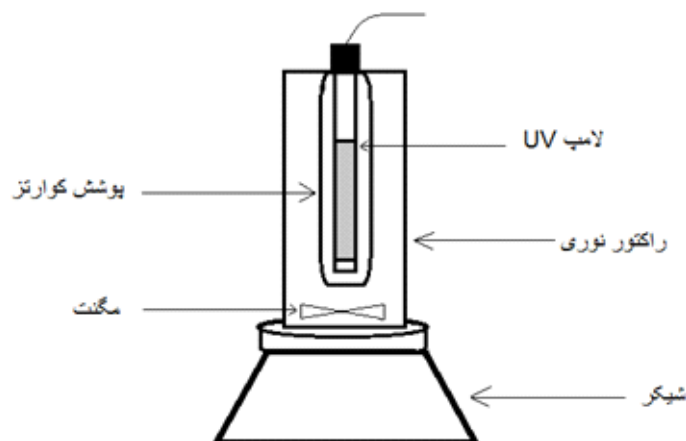
سنتز نانوذره: عصاره پونه بوسیله جوشاندن ۶۰ گرم در

لیتر از پونه در ۸۰ درجه سانتی گراد به مدت ۶۰ دقیقه آماده شد. بعد از ته نشین شدن به مدت ۱ ساعت، پونه بوسیله پمپ خلاء، فیلتر گردید. برای تولید نانوذرات اکسید روی، محلول ۰/۲ نرمال $ZnCl_2$ بوسیله اضافه کردن ۶/۸ گرم $ZnCl_2$ جامد در ۲۵۰ سی سی آب مقطر آماده شد. سپس محلول ۰/۲ نرمال $ZnCl_2$ به عصاره پونه در یک نسبت ۲ به ۳ اضافه گردید. در مرحله بعد تنظیم PH با استفاده از اسید سولفوریک و سود یک نرمال صورت گرفت. در این لحظه ظهور رسوب تیره رنگ نشان دهنده تشکیل نانو ذرات اکسید روی ناشی از پونه می باشد. بعد از آن نانو ذرات بوسیله تبخیر آب از محلول حاوی عصاره و روی بر روی یک هات پلیت جداسازی شده و در یک آون خشک گردید. سپس نانوذرات خشک شده در کوره در دمای ۵۰۰ درجه سانتی گراد به مدت ۲ ساعت قرار داده شد.^{۲۰}

آزمایش ها در یک راکتور شیشه ای به حجم ۲ لیتر به ابعاد ۳۰*۱۲*۹ سانتی متر انجام شد. منبع تابش لامپ UVC کم فشار ۶ وات بود. لامپ مذکور درون پوشش کوارتز بسیار شفاف به قطر دو سانتی متر قرار داشت. برای اینکه نمونه بهتر مورد تابش قرار گیرد و نور تابیده شده تلف نشود، لامپ در مرکز ظرف در محلول قرار داده شد و با فاصله ۷ سانتی متری دیواره قرار گرفت بودند و راکتور به طور کامل با فویل آلومینیومی پوشیده شد. در داخل این راکتور از یک همزن مغناطیسی برای اختلاط کامل نمونه جهت پرتو تابشی استفاده شد.

روش انجام آزمایش

این تحقیق مطالعه ای تجربی است که در سیستم ناپیوسته و در مقیاس آزمایشگاهی بر روی محلول های سنتتیک انجام شد. پودر سفالکسین یک آبه از شرکت داروسازی لقمان تهیه شد. برای انجام مطالعه ابتدا محلول مادر سفالکسین ۱۰۰۰



شکل ۱: شماتیکی از راکتور مورد استفاده در این مطالعه

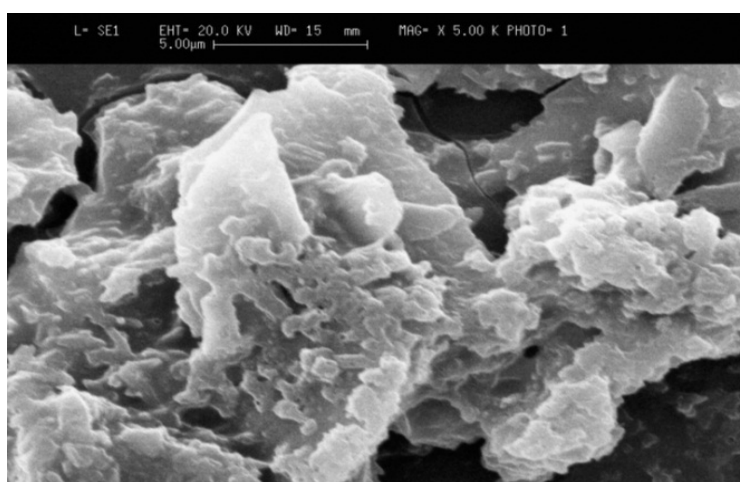
کالیبراسیون با ضریب همبستگی ۰/۹۹۹۷ تعیین مقدار شدند.

یافته‌ها

برای بررسی ساختار بلوری و فازی و تعیین اندازه و شکل نانو ذره اکسید روی از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و میکروسکوپ الکترونی گذاره (TEM) استفاده شده است. شکل ۲ تصویر SEM و شکل ۳ تصویر TEM نانو ذرات اکسید روی مورد استفاده در این تحقیق را نشان می‌دهد. نتایج نشان داد که ذرات اکسید روی دارای قطر 60 نانومتر و ذرات مورد استفاده در اندازه نانو و به شکل کریستالی هستند. نتایج طیف FTIR در محدوده 450-4000 cm^{-1} برای تشخیص گروه‌های فعال سطحی بر روی نانوذرات اکسید روی قبل و بعد از فرایند حذف فتوکاتالیستی استفاده شد. نتایج طیف FTIR قبل از فرایند حذف سفالکسین در شکل ۳ پیک‌هایی را در ناحیه طول موج 620، 1103، 1451، 1637، 3416، 3466 و 519 نشان می‌دهد. تغییراتی در طیف FTIR بعد از فرایند حذف فتوکاتالیستی سفالکسین ایجاد شده است که تغییرات ایجاد شده بیانگر جذب سفالکسین و واکنش آن با نانوذرات اکسید روی می‌باشد.

برای حذف نانوذره‌ها، نمونه‌ها با دور rpm10000 به مدت ۵ دقیقه سانتریفیوژ و بعد با استفاده از صافی‌های $0.22\mu\text{m}$ صاف سازی شدند و سفالکسین باقی مانده در محلول با استفاده از کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا اندازه گیری شد. برای اطمینان از درستی آزمایشها تمام آزمایشها با دو بار تکرار انجام پذیرفت و نتیجه‌ها با نرم افزار Excel آنالیز شد.

آنالیز: نانو ذرات اکسید روی با استفاده از عصاره پونه سنتز شده و اندازه ذرات، مورفولوژی و ترکیبات ساختاری نانو ذره با استفاده از SEM، TEM، FTIR تعیین شد. جهت رسم منحنی کالیبراسیون، غلظت‌های مختلفی از سفالکسین تهیه و به دستگاه کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا (HPLC: High performance liquid chromatography) با مشخصات زیر تزریق گردید. مشخصات کروماتوگراف مورد استفاده عبارت از: مدل (CECIL, England, CE4100)، ستون HICHROM (HI-5C18-4371) و با مشخصات (150mm×4.6mm id.)، فاز متحرک ۶۰ درصد آب مقطر و ۴۰ درصد متانول، زمان ماند 6۶ دقیقه، میزان جریان فاز متحرک 1 ml/min، دکتور UV-visible با طول موج ۲۶۳ nm و میزان تزریق سفالکسین 25 μl بود. غلظت نمونه‌ها با استفاده از منحنی

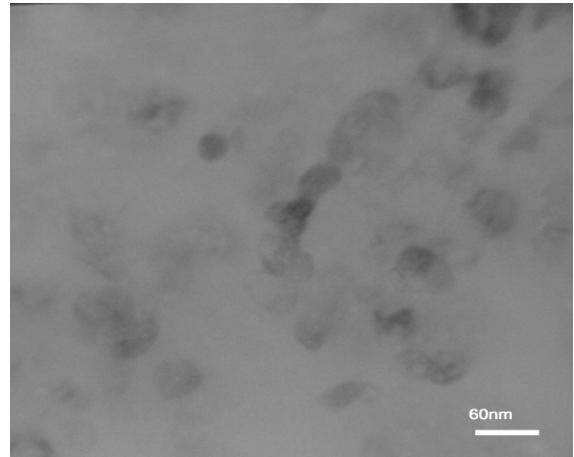


شکل ۲: تصویر SEM نانوذرات اکسید روی مورد استفاده در این تحقیق (قبل از فرایند)

توان لامپ ۶ وات و ۱۲ وات در نمودار ۱ نشان داده شده است. همچنان که نمودار نشان می‌دهد بیشترین کارایی حذف در $\text{pH}=3$ برای توان ۶ وات ۵۸/۳۱ درصد و برای توان ۱۲ وات ۸۳/۴۴ درصد می‌باشد که با افزایش pH راندمان کاهش می‌یابد و به ترتیب به ۵۲/۵۸ درصد و ۷۲/۵۴ درصد در $\text{pH}=11$ می‌رسد.

تأثیر غلظت نانوذره ZnO

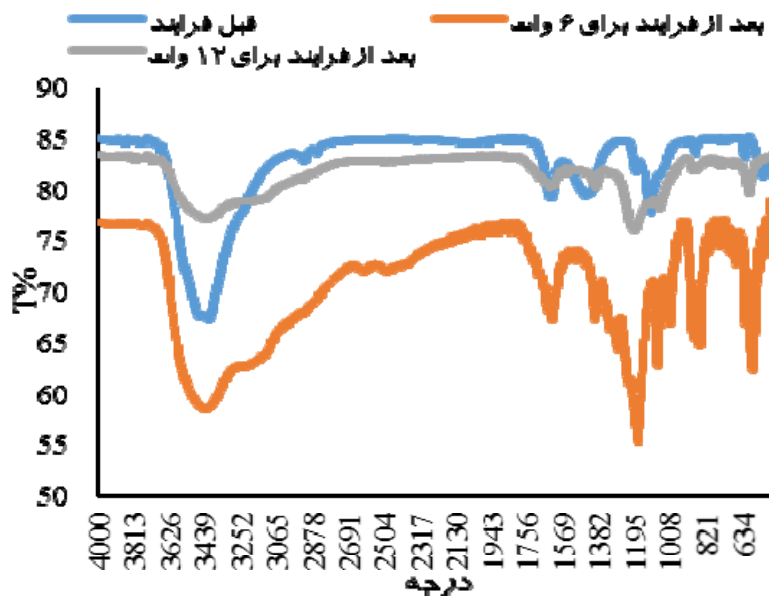
شکل ۲ تأثیر غلظت‌های مختلف کاتالیست ZnO را بر کارایی حذف سفالکسین در $\text{pH}=3$ و غلظت ۵۰ میلی‌گرم در لیتر از سفالکسین و در زمان پرتو تابی ۱۵ دقیقه برای توان ۶ وات و ۱۲ وات نشان می‌دهد. همانطوری که در این شکل ملاحظه می‌شود با افزایش دز نانوذرات اکسیدروی تا ۰/۱ g/l راندمان حذف آنتی بیوتیک سفالکسین افزایش یافت و در دزهای بالاتر، راندمان کاهش یافت.



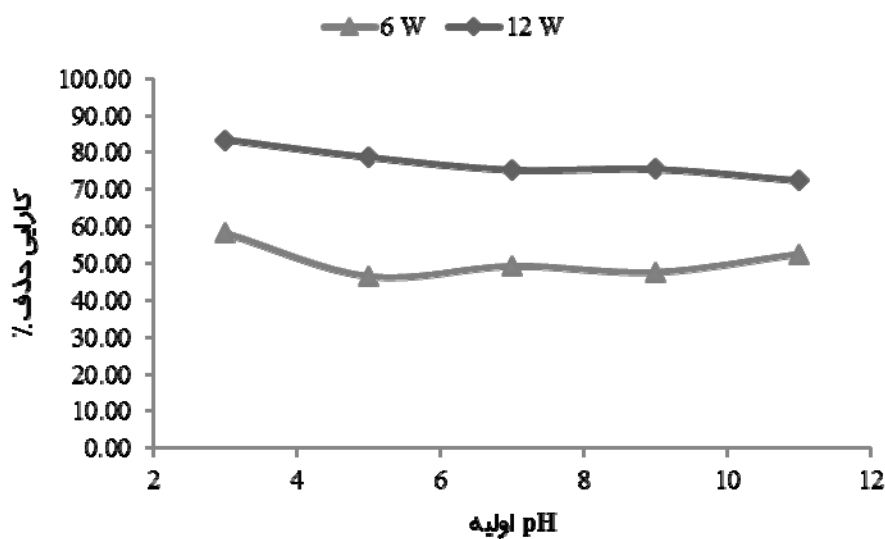
شکل ۳: تصویر TEM نانوذرات اکسیدروی مورد استفاده در این تحقیق

بررسی تأثیر pH

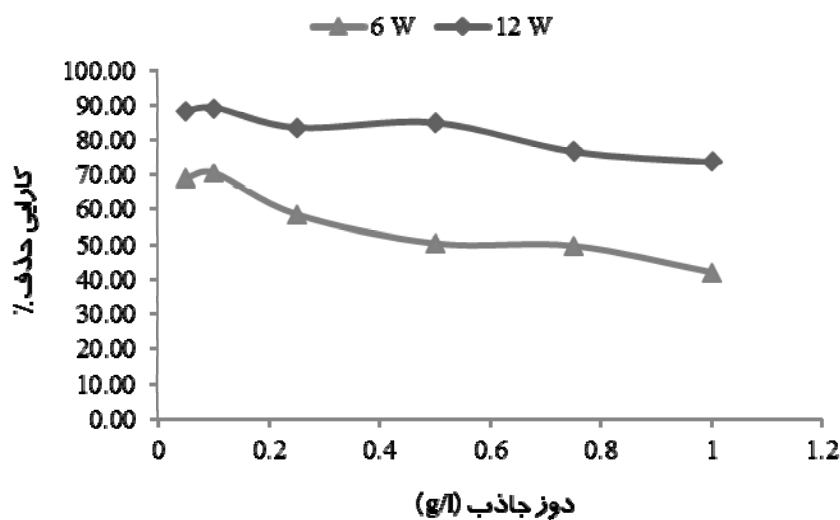
ابتدا فرایند جذب سفالکسین بدون تابش اشعه فرابنفش بررسی گردید و پس از به تعادل رسیدن جذب کارایی فرایند فتوکاتالیستی با اعمال اثر تابش اشعه فرابنفش بررسی شد. تأثیر pH در حذف سفالکسین با غلظت اولیه ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر، زمان تماس ۱۵ دقیقه، دوز نانوذره ۰/۲۵ گرم بر لیتر و



شکل ۴: تصویر FTIR نانوذره قبل از فرایند و بعد از فرایند برای توان 6 وات و 12 وات



نمودار ۱: تأثیر pH در حذف سفالکسین برای توان 6 وات و 12 وات (غلظت اولیه 50 میلی‌گرم بر لیتر، زمان تماس 15 دقیقه، دوز نانوذره 0.25 گرم بر لیتر)



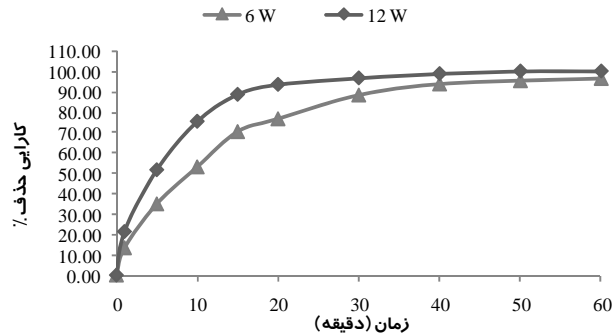
نمودار ۲: تأثیر دوز نانوذره در حذف سفالکسین برای توان 6 وات و 12 وات (pH=3، غلظت اولیه 50 میلی‌گرم بر لیتر و زمان تماس 15 دقیقه)

اثر زمان تماس

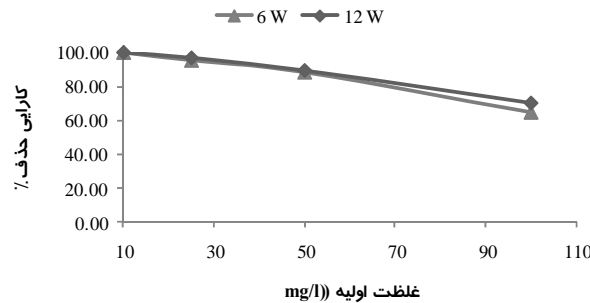
اثر زمان تماس در شکل ۳ نشان داده شده است. همان طور که در این شکل ملاحظه می‌گردد با افزایش زمان تماس درصد حذف سفالکسین افزایش یافته است به طوری که به

عنوان نمونه برای توان 6 وات کارایی حذف از ۵۳ درصد در زمان ۱۰ دقیقه به ۹۶ درصد در زمان ۶۰ دقیقه و برای توان ۱۲ وات کارایی حذف از ۷۵ درصد در زمان ۱۰ دقیقه به ۱۰۰ درصد در زمان ۶۰ دقیقه رسیده است.

شهین ادهمی و همکاران



نمودار ۳: تأثیر زمان تماس در حذف سفالکسین برای توان 6 وات و 12 وات (pH=3, دوز نانو ذره برابر 0.1 گرم در لیتر و غلظت اولیه 50 میلی‌گرم بر لیتر)



نمودار ۴: تأثیر غلظت اولیه سفالکسین برای توان 6 وات و 12 وات (pH=3, دوز نانو ذره برابر 0.1 گرم در لیتر و زمان تماس 15 دقیقه برای توان 12 وات و زمان تماس 30 دقیقه برای توان 6 وات)

بحث

با توجه به تصویر SEM نانو ذرات استفاده شده دارای تخلخل مطلوب بوده و دارای ابعاد کمتر از ۶۰ نانومتر می‌باشند. جایگاه $CM^{-1}3466$ و 3416 مربوط به ارتعاشات کششی O-H باند هیدروژن می‌باشد^{۲۱} و پیک ۱۶۳۷ و ۶۲۰ به ترتیب مربوط به ارتعاشات کششی و خمشی Zn-O می‌باشد^{۲۲} و پیک مشاهده شده در جایگاه ۱۴۵۱ ممکن است در نتیجه ارتعاش خمشی C-OH با کمک ارتعاش کششی متقارن O-C-O گروه کربوکسیلات و پیک ۱۱۰۳ مربوط به ارتعاشات کششی C-C و C-O حلقه پیران و ارتعاش کششی C-N آمین‌ها باشد.^{۲۳} هم چنین پیک مشاهده شده در جایگاه ۵۱۹ مربوط به C-Br می‌باشد.^{۲۴} با توجه به شکل ۴، بعد از

بررسی غلظت‌های مختلف سفالکسین

پس از تعیین مقادیر بهینه پارامترهای مورد بررسی در این تحقیق (pH=3, ZnO=0.1g/l, time=30min) برای توان ۶ وات و (pH=3, ZnO=0.1g/l, time=15min) برای توان ۱۲ وات) کارایی فرایند در حذف غلظت‌های مختلف آنتی بیوتیک سفالکسین (10,25,50,100) مورد بررسی قرار گرفت. همچنانکه مشاهده می‌شود با افزایش غلظت اولیه سفالکسین درصد حذف آن کاهش می‌یابد. به طوری که بیشترین راندمان حذف در غلظت اولیه ۱۰ میلی گرم بر لیتر برای توان ۶ وات در زمان ۳۰ دقیقه، ۹۹/۹۸ درصد و برای توان ۱۲ وات در زمان ۱۵ دقیقه، ۹۹/۷ درصد می‌باشد.

گزارش نمودند.^{۳۱} در ابتدا افزایش دز نانوذره منجر به افزایش راندمان حذف سفالکسین شد اما در ادامه با افزایش این مقدار راندمان حذف کاهش یافت به همین منظور مقدار بهینه معادل ۰/۱ گرم در لیتر انتخاب شد. علل این پدیده به افزایش کدورت محلول، کاهش میزان نفوذ پرتو UV، افزایش مسیر طی شده توسط فوتون‌های نوری و کاهش سطح کل قابل تحریک به علت چسبیدن الاینده بر سطح کاتالیست مرتبط دانست.^{۳۲} Emad S. Elmolla و همکارانش در تحقیقی که جهت تجزیه فتوکاتالیستی آموکسی سیلین، آمپی سیلین و کلوکساسیلین انجام دادند، مشاهده کردند که افزایش غلظت ZnO بالاتر از 0.5 g/L موجب بهبود قابل توجهی در تجزیه آنتی بیوتیک‌ها نشد^{۳۳} که با نتایج مطالعه ما مطابقت دارد.

در این تحقیق با افزایش زمان تماس راندمان حذف افزایش یافت با این حال راندمان حذف در ۱۵ دقیقه ابتدای فرایند، بیشترین افزایش را داشته و با گذشت زمان، روند افزایشی راندمان حذف سفالکسین کاهش می‌یابد. این امر را می‌توان به دلیل تجزیه سریع الاینده سفالکسین در ۱۵ دقیقه ابتدای فرایند توسط رادیکال‌های آزاد تولید شده ناشی از برانگیختگی الکترونی نانوذرات اکسید روی دانست. با افزایش زمان ماند اگرچه روند برانگیختگی نانوذرات اکسید روی و تولید رادیکال‌های آزاد هیدروکسیل کاهش نیافته، اما به دلیل تشکیل ترکیبات آلی واسط ناشی از تجزیه الاینده سفالکسین، مقداری از رادیکال‌های هیدروکسیل تولید شده، صرف تجزیه این ترکیبات شده و در نتیجه از میزان حذف الاینده سفالکسین کاسته می‌شود.^{۳۴} این نتایج با تحقیقات سایر محققین نیز همخوانی دارد.^{۳۵ و ۳۶}

نتایج نشان داد که راندمان حذف با افزایش غلظت سفالکسین کاهش می‌یابد. کاهش میزان حذف در اثر افزایش غلظت سفالکسین را می‌توان این گونه توجیه کرد که نظر به اینکه در تمامی غلظت‌ها مقدار اکسید روی، زمان تماس و pH یکسان بوده در نتیجه مقدار رادیکال‌های تولید شده نیز در هر ۴ غلظت یکسان می‌باشد. بنابراین حذف سفالکسین در

فرایند حذف سفالکسین درصد عبور کاهش یافته، که نشان می‌دهد گروه‌های عاملی OH و کربوکسیل نقش مهمی در حذف سفالکسین دارند. در طیف ۶ وات بعد از فرایند، پیک ۳۴۶۶ و ۳۴۱۶ به ۳۴۲۸، پیک ۱۶۳۷ به ۱۶۲۴، پیک ۱۱۰۳ به پیک‌هایی در ناحیه ۱۲۸۳، ۱۱۷۸ و ۱۰۶۹ و ۱۰۰۶ و پیک ۶۲۰ به ۶۱۳ و جایگاه ۵۱۹ به ۵۷۶ تغییر یافته‌اند و پیک جدیدی در ناحیه ۸۸۴ و ۸۵۱ ایجاد شده که مربوط به ارتعاش خمشی C-H آروماتیک‌ها می‌باشد. هم چنین در طیف ۱۲ وات بعد از فرایند، پیک ۳۴۶۶ به ۳۴۳۶، پیک ۱۴۵۱ به ۱۳۹۹، پیک ۱۱۰۳ به ۱۱۹۶، پیک ۵۱۹ به ۵۹۸ تغییر یافته‌اند و پیک ۶۲۰ حذف گردیده است.^{۳۴}

pH از مهمترین پارامترهای موثر بر راندمان حذف الاینده‌ها در تصفیه فاضلاب می‌باشد که بر ظرفیت جذب و تجزیه ترکیبات هدف، توزیع بار الکتریکی بر سطح فتوکاتالیست‌ها و پتانسیل اکسیداسیون باند ظرفیت تأثیر می‌گذارد. همچنین مطالعات قبلی نشان داده‌اند که pH نقش مهمی را در تجزیه و حذف آنتی بیوتیک‌ها ایفا می‌کند.^{۳۵-۳۷} علت تجزیه سفالکسین در pH پایین می‌تواند حضور بیشتر یونهای H⁺ در محیط اسیدی باشد که منجر به تشکیل رادیکال‌های H⁺ می‌شود و نیز از طریق اکسیژن‌های موجود در محلول، رادیکال‌های HO₂ را تشکیل می‌دهد که در نهایت تبدیل به رادیکال‌های OH می‌شوند.^{۳۸} از طرف دیگر هیدراکسیل به تنهایی باعث بالا رفتن سرعت واکنش نمی‌شود، این رادیکال‌های آزاد هستند که سرعت واکنش را جابجا می‌کنند و با توجه به اینکه در محیط اسیدی رادیکال آزاد H⁺ تولید می‌شود، بنابراین در محیط اسیدی راندمان حذف بالا است.^{۳۹} در مطالعه‌ای که Benhebal و همکاران جهت تجزیه فتوکاتالیستی فنل و بنزویک اسید انجام دادند میزان تجزیه را در pH اسیدی (2.5) مطلوب گزارش نمودند.^{۳۰} در مطالعه‌ای دیگر Jing Miao و همکاران اثر Ph بر تجزیه فتوکاتالیستی مردانت بلک ۱۱ با استفاده از فرایند UV/ZnO بررسی کردند و بیشترین میزان تجزیه را در PH قلیایی

فتوکاتالیستی UV/ZnO در حذف آنتی بیوتیک سفالکسین با استفاده از لامپ‌های UV با شدت پایین از محلول‌های آبی کارایی بسیار بالایی دارد و می‌تواند به عنوان روشی کارآمد برای حذف سفالکسین مورد استفاده قرار گیرد.

تشکر و قدردانی

این پژوهش حاصل پایان‌نامه دوره کارشناسی ارشد رشته مهندسی بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی و خدمات بهداشتی درمانی اردبیل می‌باشد. بدین وسیله از شورای پژوهش و پایان‌نامه دانشگاه علوم پزشکی اردبیل به دلیل حمایت مالی از این تحقیق کمال تقدیر و تشکر و قدردانی را داریم.

نمونه‌های با غلظت کمتر بیشتر خواهد بود. دلیل دوم برای توجیه این پدیده این است که با افزایش غلظت سفالکسین، پرتو تابیده شده به وسیله مولکول‌های سفالکسین جذب می‌شود و به سطح کلیه ذرات کاتالیست نمی‌رسد و در نتیجه عدم تحریک همه ذرات کاتالیست، مقدار تجزیه تا میزان قابل توجهی کاهش می‌یابد.^{۳۷} در مطالعه‌ای که توسط Z.Jia و همکارانش انجام گرفت، با افزایش غلظت اولیه برلیانت یلو، میزان حذف کاهش یافت^{۳۸} که با نتایج مطالعه ما همخوانی دارد.

نتیجه‌گیری

نتایج این مطالعه نشان داد که استفاده از فرایند

References

- Miao M-S, Liu Q, Shu L, Wang Z, Liu Y-Z, Kong Q. Removal of cephalixin from effluent by activated carbon prepared from alligator weed: Kinetics, isotherms, and thermodynamic analyses. *Proc. Safe. Env. Prot.* 2016;104:481-9.
- Samarghandi MR, Al-Musawi TJ, Mohseni-Bandpi A, Zarabi M. Adsorption of cephalixin from aqueous solution using natural zeolite and zeolite coated with manganese oxide nanoparticles. *J. Molec. Liqs.* 2015;211:431-41.
- Ahmed MJ, Theydan SK. Adsorption of cephalixin onto activated carbons from Albizia lebeck seed pods by microwave-induced KOH and K₂CO₃ activations. *Chem eng j.* 2012;211:200-7.
- Pouretedal H, Sadegh N. Effective removal of Amoxicillin, Cephalixin, Tetracycline and Penicillin G from aqueous solutions using activated carbon nanoparticles prepared from vine wood. *J Water Proc Eng.* 2014;1:64-73.
- Estrada AL, Li Y-Y, Wang A. Biodegradability enhancement of wastewater containing cefalexin by means of the electro-Fenton oxidation process. *J. haz. mat.* 2012;227:41-8.
- Heberer T. Occurrence, fate, and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data. *Toxico let.* 2002;131(1):5-17.
- Ajoudanian N, Nezamzadeh-Ejhih A. Enhanced photocatalytic activity of nickel oxide supported on clinoptilolite nanoparticles for the photodegradation of aqueous cephalixin. *Mater Sci in Semiconduc Proc.* 2015;36:162-9.
- Nazari G, Abolghasemi H, Esmaeili M. Batch adsorption of cephalixin antibiotic from aqueous solution by walnut shell-based activated carbon. *J Taiwan Inst Chem Eng.* 2016;58:357-65.
- Vilt ME, Ho WW. In situ removal of Cephalixin by supported liquid membrane with strip dispersion. *J membr Sci.* 2011;367(1):71-7.
- Beltran A, Fontanals N, Marcé RM, Cormack PA, Borrull F. Molecularly imprinted solid-phase extraction of cephalixin from water-based matrices. *J sep sci.* 2009;32(19):3319-26.
- Saravanane R, Murthy D, Krishnaiah K. Bioaugmentation and treatment of cephalixin drug-based pharmaceutical effluent in an upflow anaerobic fluidized bed system. *Bioreso Tech.* 2001;76(3):279-81.
- Zazouli M, Ulbricht M, Nasser S, Susanto H. Effect of hydrophilic and hydrophobic organic matter on amoxicillin and cephalixin residuals rejection from water by nanofiltration. *Ir J Env Hea Sci & Eng.* 2010;7(1):15.
- Guo W, Wang H, Shi Y, Zhang G. Sonochemical degradation of the antibiotic cephalixin in aqueous solution. *Water Sa.* 2010;36(5):651-4.
- Schroën C, Nierstrasz V, Bosma R, Kemperman G, Strubel M, Ooijkaas L, et al. In situ product removal during enzymatic cephalixin synthesis by complexation. *Enz & micro tech.* 2002;31(3):264-73.
- Bhatnagar A, Kumar E, Sillanpää M. Nitrate removal from water by nano-alumina: Characterization and sorption studies. *Chem Eng J.* 2010;163(3):317-23.

16. Saeedi S, Godini H, Kamarehie B, Zare S, Rashidipoor M, Ebrahimi Z, et al. Investigation of Experimental Factors in Photocatalytic Degradation of Phenol from Aqueous Solution by UV/ZnO. *Env Health Eng.* 2016;3(3):220-7.
17. Mansoury M, Godini H, Shams Khorramabadi G. Photocatalytic removal of natural organic matter from aqueous solutions using zinc oxide nanoparticles immobilized on glass. *Ir J of Hea and Env.* 2015;8(2):181-90.
18. Parastar S, Poureshg Y, Nasserri S, Vosoughi M, Golestanifar H, Hemmati S, et al. Photocatalytic removal of nitrate from aqueous solutions by ZnO/UV process. *J. Health.* 2012;3(3):54-61.
19. Hayat K, Gondal M, Khaled MM, Ahmed S. Effect of operational key parameters on photocatalytic degradation of phenol using nano nickel oxide synthesized by sol-gel method. *J Molec Cata A: Chemical.* 2011;336(1):64-71.
20. Fazlzadeh M, Khosravi R, Zarei A. Green synthesis of zinc oxide nanoparticles using Peganum harmala seed extract, and loaded on Peganum harmala seed powdered activated carbon as new adsorbent for removal of Cr (VI) from aqueous solution. *Ecol Eng.* 2017;103:180-90.
21. Gómez-Ordóñez E, Rupérez P. FTIR-ATR spectroscopy as a tool for polysaccharide identification in edible brown and red seaweeds. *Food Hydrocol.* 2011;25(6):1514-20.
22. Kumar H, Rani R. Structural and optical characterization of ZnO nanoparticles synthesized by microemulsion route. *Int Let of Chem, Phys and Astro.* 2013;14:26--36.
23. Leal D, Matsuhiro B, Rossi M, Caruso F. FT-IR spectra of alginic acid block fractions in three species of brown seaweeds. *Carbohydr research.* 2008;343(2):308-16.
24. Pandimurugan R, Thambidurai S. Novel seaweed capped ZnO nanoparticles for effective dye photodegradation and antibacterial activity. *Adva Pow Tech.* 2016;27(4):1062-72.
25. Wang N, Li X, Wang Y, Quan X, Chen G. Evaluation of bias potential enhanced photocatalytic degradation of 4-chlorophenol with TiO₂ nanotube fabricated by anodic oxidation method. *Chem Eng J.* 2009;146(1):30-5.
26. Ahmed S, Rasul M, Brown R, Hashib M. Influence of parameters on the heterogeneous photocatalytic degradation of pesticides and phenolic contaminants in wastewater: a short review. *J Env Manag.* 2011;92(3):311-30.
27. Daghrrir R, Drogui P, El Khakani MA. Photoelectrocatalytic oxidation of chlortetracycline using Ti/TiO₂ photo-anode with simultaneous H₂O₂ production. *Electrochimica acta.* 2013;87:18-31.
28. Yang S, Fu H, Sun C, Gao Z. Rapid photocatalytic destruction of pentachlorophenol in F-Si-comodified TiO₂ suspensions under microwave irradiation. *J haz mat.* 2009;161(2):1281-7.
29. Yu C-H, Wu C-H, Ho T-H, Hong PA. Decolorization of CI Reactive Black 5 in UV/TiO₂, UV/oxidant and UV/TiO₂/oxidant systems: a comparative study. *Chem Eng J.* 2010;158(3):578-83.
30. Benhebal H, Chaib M, Salmon T, Geens J, Leonard A, Lambert SD, et al. Photocatalytic degradation of phenol and benzoic acid using zinc oxide powders prepared by the sol-gel process. *Alex Eng J.* 2013;52(3):517-23.
31. Miao J, Jia Z, Lu H-B, Habibi D, Zhang L-C. Heterogeneous photocatalytic degradation of mordant black 11 with ZnO nanoparticles under UV-Vis light. *J Taiw Ins of Che Eng.* 2014;45(4):1636-41.
32. Tu Y, Xiong Y, Tian S, Kong L, Descorme C. Catalytic wet air oxidation of 2-chlorophenol over sewage sludge-derived carbon-based catalysts. *J haz mat.* 2014;276:88-96.
33. Elmolla ES, Chaudhuri M. Degradation of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution by the UV/ZnO photocatalytic process. *J haz mat.* 2010;173(1):445-9.
34. Jonidi Jafari A, Rezae Kalantari R, Gholami M, Esrafil A. Photocatalytic removal of aniline from synthetic wastewater using ZnO nanoparticle under ultraviolet irradiation. *Ir J of Heal and Env* 2012;5(2):167-78.
35. Laohaprapanon S, Matahum J, Tayo L, You S-J. Photodegradation of reactive black 5 in a ZnO/UV slurry membrane reactor. *J Taiw Ins of Chem Eng.* 2015;49:136-41.
36. Dimitrakopoulou D, Rethemiotaki I, Frontistis Z, Xekoukoulotakis NP, Venieri D, Mantzavinos D. Degradation, mineralization and antibiotic inactivation of amoxicillin by UV-A/TiO₂ photocatalysis. *J env manag.* 2012;98:168-74.
37. Safari G, Hoseini M, Kamali H, Moradirad R, Mahvi A. Photocatalytic Degradation of Tetracycline Antibiotic from Aqueous Solutions Using UV/TiO₂ and UV/H₂O₂/TiO₂. *J Health.* 2014;5(3):203-2013.
38. Jia Z, Miao J, Lu H-B, Habibi D, Zhang W, Zhang L. Photocatalytic degradation and absorption kinetics of cibacron brilliant yellow 3G-P by nanosized ZnO catalyst under simulated solar light. *J Taiw Ins Chem Eng.* 2016;60:267-74.

Photocatalytic Removal of Cephalexin by UV/ZnO Process from Aqueous Solutions

Shahin Adhami¹, Mahdi Fazlzadeh², Sadegh Hazrati²

1. Student of MSc, *Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Ardabil University of Medical Sciences, Ardabil, Iran*
2. *Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Ardabil University of Medical Sciences, Ardabil, Iran*

* E-mail: sadegh_hazrati@yahoo.com

Received: 24 Aug. 2017 ; Accepted: 25 Dec. 2017

ABSTRACT

Background and Objectives: Conventional wastewater treatment plants are not able to remove effective drugs, such as antibiotics, so eliminating remaining antibiotics from the environment is important. The purpose of this study was to evaluate the efficacy of UV / ZnO photocatalytic process in removing antibiotic cephalexin from aqueous solutions.

Materials and Methods: This is an experimental-applied study that was performed on a batch scale in a laboratory scale. The variables studied in this study included the initial pH of the solution (11, 9, 7, 5, 3), the dose of nanoparticles (1, 75/0, 0.5, 0.25, 0.1, 0.05 grams per liter), Reaction time (60-50-40-30-20-15-55 minutes) and initial concentration of pollutant (100, 50, 25, 10 mg / l) were investigated. Measurement of cephalexin in samples was performed using HPLC apparatus.

Results: The results showed that by decreasing pH and reducing the initial concentration of cephalexin and increasing contact time, process efficiency increased. But with increasing nanoparticle dosages up to 0.1 grams per liter, the process efficiency increases and more than this amount is reduced.

Conclusion: The results of this study showed that the use of UV / ZnO photocatalytic process in removing humic acid from aqueous solutions can be used as an effective method for cephalexin from aqueous solutions.

Keywords: Cephalexin, Photocatalytic, Zinc oxide, Ultraviolet ray