

بررسی کارایی فرآیند ازن زنی کاتالیزوری با نانوذرات مغناطیسی TiO₂/Fe₃O₄ در حذف آنتی بیوتیک سفنازید از محیط‌های آبی

مجتبی یگانه بادی^۱، علی اسرافیلی^۲، حسن پاسالاری^۳، سودا فلاح جوکندان^۴، مهدی فرزادکیا^{۵*}

^۱ دانشجوی دکتری مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

^۲ دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

^۳ دانشجوی دکتری مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

^۴ دانشجوی دکتری مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی، تهران، ایران

^۵ استاد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۸/۲/۱۸؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۸/۶/۹

چکیده

سابقه و هدف: حضور پساب های حاوی ترکیبات آنتی بیوتیکی مانند پساب صنعت داروسازی یکی از مشکلات در رابطه با آلودگی محیط زیست می باشد. برخی از ترکیبات دارویی مورد استفاده در درمان انسان ها به طور کامل در تصفیه خانه های فاضلاب شهری حذف نمی شوند. بنابراین به عنوان آلاینده به آب های پذیرنده تخلیه شده و موجب بروز مشکلات زیست محیطی می گردند. هدف از این مطالعه استفاده از TiO₂ به عنوان کاتالیست در فرایند ازن زنی کاتالیزوری غیرهمگن در یک راکتور Semi batch جهت حذف آنتی بیوتیک سفنازید از فاضلاب سنتتیک می باشد.

مواد و روش ها: این مطالعه از نوع بنیادی - کاربردی می باشد که در مقیاس پایلوت انجام گردید. روش سل ژل به منظور سنتز نانو ذرات دی اکسید تیتانیوم مغناطیسی شده مورد استفاده قرار گرفت و از آنالیز های SEM، XRD و EDX جهت بررسی خصوصیات کاتالیست استفاده گردید. اثر متغیرها شامل pH، دوز کاتالیست، زمان واکنش، غلظت آلاینده بر عملکرد فرایند مورد بررسی قرار گرفت. غلظت باقیمانده سفنازید توسط دستگاه HPLC تعیین گردید.

یافته ها: یافته ها نشان می دهد که بیشترین کارایی حذف سفنازید در شرایط قلیایی رخ می دهد و رابطه مستقیمی بین راندمان حذف و pH برقرار است، دوز کاتالیست ۲ گرم بر لیتر به عنوان شرایط بهینه به دست آمد و با افزایش زمان تماس و کاهش غلظت سفنازید راندمان حذف افزایش یافت. نتایج نشان داد که حذف سفنازید به وسیله این فرآیند از مدل درجه اول تبعیت می نماید.

نتیجه گیری: نتایج نشان داد که فرآیند ازن زنی کاتالیزوری با نانوذرات دی اکسید تیتانیوم مغناطیسی شده برای حذف سفنازید از محیط های آبی، بازده بالایی دارد. فرایند ازن زنی کاتالیزوری را می توان به عنوان روشی موثر در حذف سفنازید در نظر گرفت.

کلمات کلیدی: سفنازید، ازن زنی، نانوذرات دی اکسید تیتانیوم مغناطیسی

مقدمه

حضور پساب‌های حاوی ترکیبات آنتی بیوتیکی مانند پساب صنعت داروسازی یکی از مشکلات در رابطه با آلودگی محیط زیست است. افزایش مصرف آنتی بیوتیک‌ها برای انسان و دام باعث حضور این آلاینده در منابع آبی شده است.^۱ آنتی بیوتیک‌ها از عوامل شیمی درمانی هستند که باعث جلوگیری از رشد یا نابودی میکروارگانیسم‌هایی مانند باکتری‌ها، قارچ‌ها، پروتوزئورها و غیره می‌شود.^۲ فاضلاب‌های شهری، فاضلاب‌های صنعتی مرتبط با صنعت ساخت آنتی بیوتیک مانند داروسازی، زائدات حیوانی و شیرابه مواد زائد جامد از منابعی هستند که باعث آزاد شدن آنتی بیوتیک‌ها به محیط می‌شوند.^۳ تاکنون مطالعات بسیاری در خصوص حضور آنتی بیوتیک‌ها در محیط زیست انجام شده است. در بسیاری از تحقیقات انجام گرفته حضور Tetracycline's، Sulfonamides و Macrolides در رسوبات گزارش شده است که پساب‌های بیمارستانی و فاضلاب‌های شهری به ترتیب بیشترین و کمترین غلظت را دارا بودند.^۴ سفنازید از سفالوسپورین‌های نسل سوم است که علیه باکتری‌های گرم منفی به‌ویژه گونه‌های پseudomonas مؤثر است. سفالوسپورین در دسته آنتی بیوتیک‌های β -lactam قرار دارند که به علت آنتی باکتریال و توانایی قوی ضد باکتری در طیف وسیعی مورد استفاده قرار می‌گیرد و تولید و مصرف سفالوسپورین‌ها بسیار زیاد است. در اروپا، دومین نوع داروهای ضد ویروسی، سفالوسپورین‌ها می‌باشند.^{۵،۶} سفنازید، نسل سوم خانواده سفالوسپورین می‌باشد، که به طور گسترده‌ای برای درمان سردردها، عفونت دستگاه تنفسی و عفونت سیستم ادراری استفاده می‌شود، که غلظت آن در آب‌های سطحی، پساب ثانویه و آب‌های زیرزمینی، از حدود ۵ نانوگرم در لیتر تا ۱۰ میلی گرم بر لیتر گزارش شده است.^{۷-۹}

مطالعات نشان می‌دهند که برخی از ترکیبات دارویی مورد

استفاده در درمان انسان‌ها به طور کامل در تصفیه خانه‌های فاضلاب شهری حذف نمی‌شوند. بنابراین به عنوان آلاینده به آب‌های پذیرنده تخلیه شده و موجب بروز مشکلات زیست محیطی می‌گردند.^{۱۰} در صورتی که آنتی بیوتیک‌ها حذف نگردند به محیط زیست وارد گردیده و اثرات زیان باری بر روی ارگانیسم‌های خاکی و آبرزی ایجاد می‌کنند و هم چنین ممکن است با ورود به آب آشامیدنی به بدن انسان‌ها نیز راه یافته و با ایجاد اثرات جانبی، ایجاد واکنش‌های آلرژیک و ... بر سلامت انسان‌ها تاثیر گذارند. با توجه به این که آنتی بیوتیک‌ها بر اساس تاثیر میکروارگانیسم‌ها طراحی می‌گردند، می‌توانند ارگانیسم‌هایی مانند باکتری‌ها، قارچ‌ها و جلبک‌های ریز را نیز تحت تاثیر قرار دهند.^۴ جدول شماره ۱ ساختار و ویژگی‌های سفنازید را نشان می‌دهد.

از روش‌های گوناگونی مانند استفاده از پرتو گاما^{۱۱}، جذب سطحی، تجزیه نوری، تجزیه بیولوژیکی^{۱۲}، کوآگولاسیون و سانتریفوژ^{۱۳}، اکسیداسیون شیمیایی توسط نمک‌های آهن، ازن زنی، ازن زنی کاتالیزوری، ازن زنی فتوکاتالیزوری، $\text{O}_3/\text{H}_2\text{O}_2$ ، فرایندهای فتوفتوتون، فتوفتوتون خورشیدی، فتوکاتالیست با TiO_2 ، فوتولیز UV و $\text{UV}/\text{H}_2\text{O}_2$ ^{۱۴} جهت حذف انواع آنتی بیوتیک‌ها از محیط‌های آبی پیشنهاد شده است. فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته یکی از تکنولوژی‌های رایج برای حذف اکثر آلاینده‌ها می‌باشد که دارای مزایایی همچون سادگی، هزینه پایین و راندمان بالا است.^{۱۵،۱۶} این فرایند ها همچنین می‌توانند ترکیبات آلی را به طور کامل به آب و دی اکسید کربن تثبیت کنند^{۱۷}. تا کنون از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته گوناگونی جهت تصفیه آب و فاضلاب گسترش یافته است که اکثر آن‌ها به استفاده از ازن به عنوان اکسیدان اصلی استوار می‌باشند. اخیرا توجهات زیادی به سوی بررسی فرایند ازن ازنی کاتالیزوری به عنوان یک سیستم جدید اکسیداسیون پیشرفته جلب شده است^{۱۸} که افزودن کاتالیست به فرایند ازن زنی باعث افزایش میزان

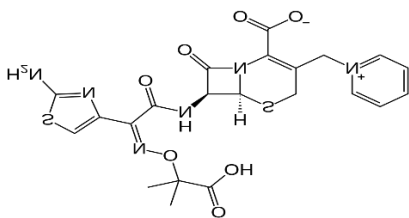
همکاران در سال ۱۳۹۷ کارایی فرآیند ازن زنی فرایند ازن زنی کاتالیزوری با نانوذرات آهن دوپ شده با سیلیس و تیتانیوم دی اکسید در حذف مترونیدازول مورد مطالعه قرار دادند. در این مطالعه پارامترهای زمان، pH، غلظت مترونیدازول و دوز کاتالیست مورد بررسی قرار گرفت. نتایج به دست آمده در این مطالعه، pH=10 دوز کاتالیست ۳ گرم بر لیتر به عنوان شرایط بهینه به دست آمد و با افزایش زمان تماس و کاهش غلظت مترونیدازول راندمان حذف افزایش یافت^{۲۰}.

اکسیدهای فلزی زمین نیز که دارای خاصیت قلیایی بوده و در اندازه نانو می باشند به دلیل خاصیت جذب تخریبی، واکنش پذیری بالای سطح، ظرفیت جذب بالا^{۱۸}، سهولت و هزینه پایین تولید از مواد معدنی که به وفور یافت می شوند^{۱۸}. هدف از این مطالعه استفاده از نانوذرات مغناطیسی TiO₂/Fe₃O₄ به عنوان کاتالیست در فرایند ازن زنی کاتالیزوری در یک راکتور Semi batch جهت حذف آنتی بیوتیک سفنازید از فاضلاب سنتتیک می باشد تا در صورت دسترسی به نتایج قابل قبول بتوان از این روش در تصفیه فاضلاب صنایع داروسازی، بیمارستان‌ها، محل‌های پرورش ماهیان، پرورش ماهی‌ها و هر جای دیگری که لازم باشد استفاده نمود.

اکسیداسیون، کاهش مدت زمان لازم، کاهش تولید محصولات فرعی و سمی، افزایش قابلیت استفاده به عنوان یک پیش تصفیه ارزان جهت قابل تصفیه نمودن فاضلاب در روش‌های موجود قبلی که دیگر پاسخگو نبودند و در نتیجه کاهش هزینه تصفیه می گردد. بایستی توجه نمود که فرایند ازن زنی کاتالیزوری می تواند به دو صورت همگن (هموژن) و غیرهمگن (هتروژن) مورد استفاده قرار گیرد^{۱۹،۱۶}. که در هر دو روش مولکول‌های آلی توسط اکسیداسیون مستقیم توسط مولکول‌های ازن و/یا اکسیداسیون غیر مستقیم توسط رادیکال‌ها معدنی سازی می شوند^{۲۰}. در فرایند ازن زنی کاتالیستی از اکسیدهای فلزی (MnO₂, TiO₂, Al₂O₃ و...)، فلزات یا اکسیدهای فلزی تقویت شده (Cu/Al₂O₃, Cu/TiO₂, Ru/CeO₂, Co/SiO₂, TiO₂/Al₂O₃, Fe₂O₃/Al₂O₃, CoOx/Al₂O₃, MnOx/ZrO₂ و برخی از مواد متخلخل (کربن فعال گرانولی، زئولیت، سرامیک لانه زنبوری و غیره) استفاده می شود^{۲۱}.

در مطالعه‌ای که Qi L و همکارانش در سال ۲۰۱۴ با عنوان " اکسیداسیون و تجزیه ۴-کلروفلن توسط فرایند ازن زنی کاتالیزوری با MnOx / γ-Al₂O₃/ TiO₂ به عنوان کاتالیزور در محلول آبی " انجام دادند نشان داد ۴-کلروفلن تقریباً در ۳۰ دقیقه تجزیه شد و میزان معدنی سازی آن بیشتر از ۹۴/۱٪ در زمان ۱۰۰ دقیق به دست آمد^{۲۲}. دهقانی فرد و

جدول ۱: مشخصات سفنازید^{۲۳}

Ceftazed	Molecular
C ₂₂ H ₂₂ N ₆ O ₇ S ₂	Chemical Formula
	Chemical Structure
۵۷۴	Molecular Weight
۸/۱	pKa

مواد و روش‌ها

مواد و تجهیزات

از مواد شیمیایی شرکت مرک با خلوص بالا جهت انجام آزمایشات استفاده گردید. در این تحقیق، یک دستگاه راکتور با حجم ۱۰۰۰ میلی لیتر از جنس شیشه مقاوم به ماده شیمیایی استفاده گردید. دستگاه ازن ژنراتور مدل Danali ساخت کشور ایران و با ظرفیت اسمی ۶ گرم در ساعت برای انجام ازن زنی استفاده گردید. از دستگاه HPLC مدل Agilent 1260، مجهز به دتکتور (UV/VIS model 4200) ساخت کشور آمریکا با ستون C_{18} و در طول موج ۲۵۴ نانومتر با فاز متحرک استونیتریل و پتاسیم دی هیدروژن فسفات ۰/۰۲ مولار، به منظور تعیین غلظت‌های باقی مانده سفنازید استفاده گردید. برای تعیین pH محلول‌ها از pH متر مدل HACH-HQ-USA استفاده شد.

سنتز کاتالیست

نانوذرات دی اکسید تیتانیوم مغناطیسی شده معمولاً با روش Sol - gel^{۲۴} و یا هیدروترمال (Hydrothermal)^{۱۸} تولید می شوند که در این پژوهش از روش سل - ژل استفاده خواهد شد.^{۱۸} ابتدا نانو مگنت به روش هم‌رسوبی به کمک ماده اولیه آهن دو Fe(II) و آهن سه Fe(III) ساخته شده و ابعاد و خصوصیات پارامغناطیسی آن مورد مطالعه قرار می گیرد. بعد از این مرحله با استفاده از فرآیند شیمیایی سل ژل لایه ای از TiO_2 به عنوان روکش روی نانو ذرات مغناطیسی سنتز شده کشیده می شود. بعد از آماده کردن جاذب مطالعات تعیین خصوصیات روی آن انجام می گیرد. برای ساختن نانوذرات مگنتیک (Fe_3O_4) با استفاده از روش هم‌رسوبی ابتدا $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ۱۱/۶۸ گرم از $\text{FeCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ۴/۳۱ گرم از $\text{FeCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ به مدت ۳۰ دقیقه در ۲۰۰ میلی لیتر آب مقطر حل می شوند و در دمای ۸۵ درجه سانتی گراد به شدت هم زده و با گاز

نیتروژن حباب دهی می شوند که علت این کار جلوگیری از اکسیداسیون مگنتیک است.^{۱۸} سپس ۲۰ میلی لیتر از محلول آمونیاک با نسبت $W/V = 30\%$ به صورت قطره ای به محلول اضافه می شود تا زمانی که رنگ محلول از نارنجی به سیاه تغییر یابد و pH محلول تا ۸ افزایش می یابد. محصول نهایی مگنتیک سیاه رنگ است.^{۱۸} سپس ۳ گرم دی اکسید تیتانیوم را به نانوذره مغناطیسی Fe_3O_4 که در مرحله قبل سنتز شده بود اضافه می کنیم و با همزن عمل اختلاط را انجام داده، پس از واکنش به مدت ۲ ساعت با سرعت همزن ۲۵۰-۴۵۰ دور در دقیقه، فوتوکاتالیست مغناطیسی شده را به طور مداوم با آب و الکل شستشو داده شد تا ناخالصی‌های باقی مانده بر نانو کاتالیست حذف شود و سپس در دمای ۷۰ درجه سلسیوس خشک گردید. با استفاده از عکس اسکن میکروسکوپی الکترونی (SEM) و روش پراش اشعه ایکس (XRD) مورفولوژی و الگوی نانوذرات ساخته شده مورد بررسی قرار گرفت.

روش انجام کار

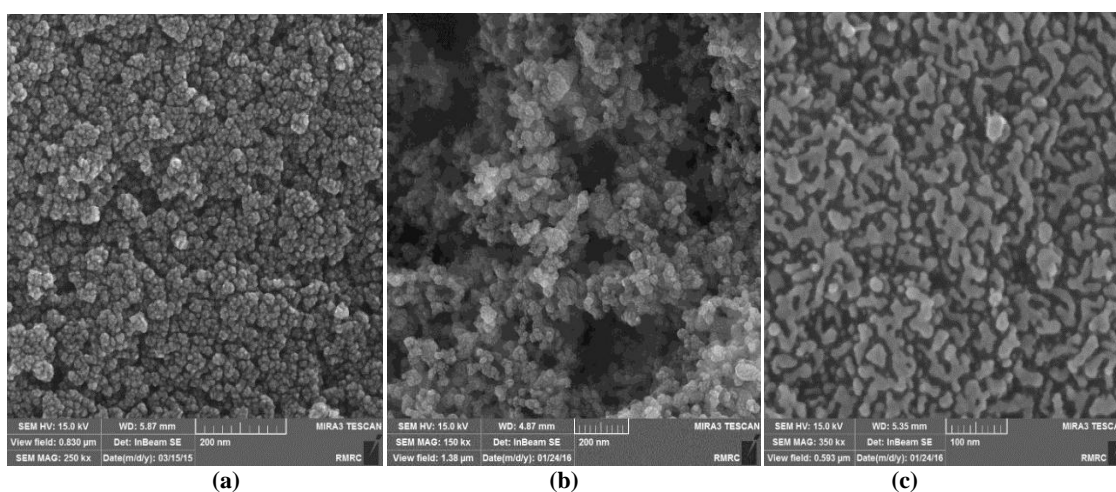
این مطالعه از نوع بنیادی - کاربردی می باشد که در مقیاس پایلوت انجام گردید. با استفاده از مواد و تجهیزات مربوطه و با تغییر pH (۱۱-۳)، غلظت کاتالیست (۲-۰/۱ گرم در لیتر)، دوز ازن (۲۲-۰/۱-۰ گرم بر ساعت) و غلظت سفنازید (۵۰-۱۰ میلی گرم بر لیتر)، نمونه‌های لازم در فواصل زمانی مشخص برداشت شد. جمع‌آوری کاتالیست از نمونه‌ها توسط آهنربا انجام گرفت و سپس نمونه‌ها با دستگاه HPLC آنالیز شدند. اندازه‌گیری TOC توسط آنالیز کتنده کل کربن آلی (Shimsduz, TOC-VCSH) انجام گرفت. برای تعیین کاهش راندمان به واسطه حضور عوامل به دام انداز رادیکال تروت بوتانول، گاز نیتروژن و اگزالات آمونیوم استفاده شد. جهت بررسی سنتیک واکنش از مدل‌های درجه صفر، درجه

یک و درجه دو استفاده گردید. به منظور تعیین تطبیق بهترین مدل با داده‌های حاصل، از ضریب رگرسیون همبستگی (R^2) استفاده شد. به این معنی که بالاترین ضریب رگرسیون نشان‌دهنده بهترین مدل می‌باشد^{۲۵}.

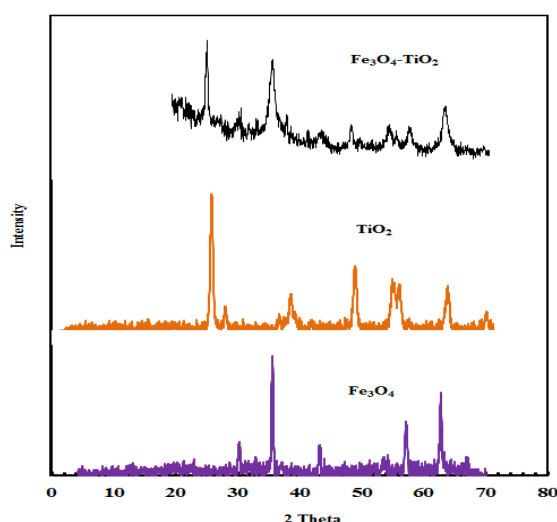
یافته‌ها

تعیین مشخصات کاتالیست

پس از سنتز کاتالیست دی‌اکسید تیتانیوم مغناطیسی شده،

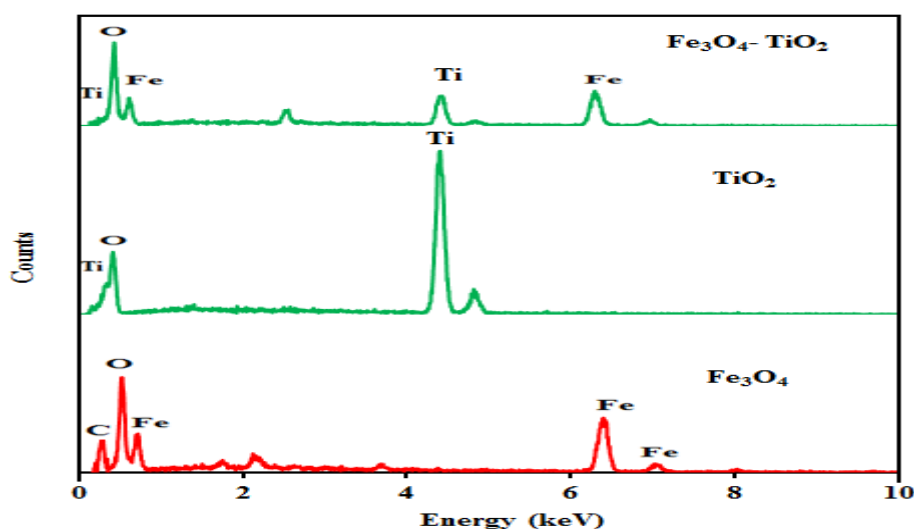


شکل ۱: SEM image of samples : (a) Fe_3O_4 , (b) TiO_2 and (c) $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-TiO}_2$ nanocomposite



شکل ۲: الگوی طیف XRD کاتالیست

بررسی کارایی فرآیند ازن زنی کاتالیزوری با نانوذرات مغناطیسی $\text{TiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4$ در حذف آنتی بیوتیک سفنازید از محیط‌های آبی



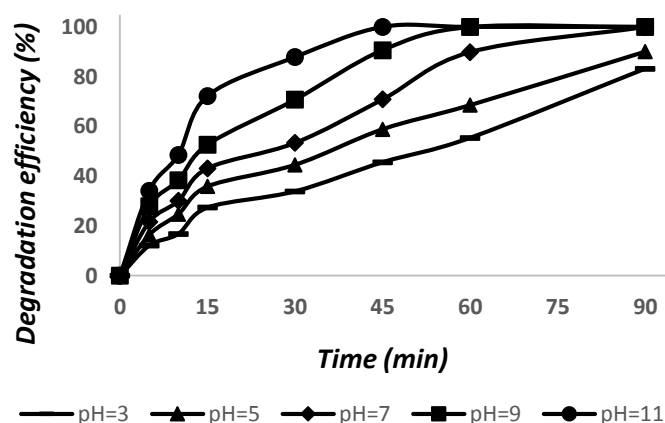
شکل ۳: تصویر اسپکتروم آزمایش EDX

نانوذره به کار رفته است.^{۲۶}

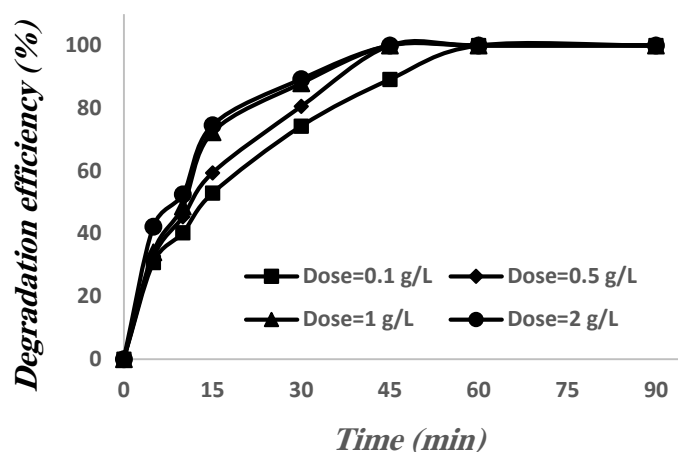
بررسی تأثیر pH بر کارایی حذف سفنازید

تغییرات راندمان حذف سفنازید به عنوان تابعی از pH محلول در نمودار ۱ آورده شده است که طبق این نمودار با افزایش pH راندمان حذف سفنازید نیز افزایش می‌یابد به نحوی که در محیط‌های قلیایی (pH=۱۱) بیشترین راندمان حذف را دارد.

بر اساس عکس اسکن میکروسکوپی الکترونی تهیه شده (SEM)، نانوذرات کروی مگنتیت و به صورت متوسط دارای قطر 70 nm بوده شکل می‌باشند (شکل ۱). سطح زیر نانوذره نشان می‌دهد که پوشش نانوذرات مغناطیسی از شمار زیادی از نانو ذرات TiO_2 تشکیل شده است که در خلل و فرج نانوذره وجود دارند. تصویر EDX نانوذرات مغناطیسی حاکی از تأیید وجود عناصر Fe و O ، Ti در ساختار نانو ذرات می‌باشد. در تصویر XRD، پیک‌های پراش، نشان‌دهنده‌ی فاز مگنتیت (Fe_3O_4) و لایه TiO_2 می‌باشد که به عنوان پوشش



نمودار ۱: تأثیر pH اولیه محلول بر راندمان فرایند (۱۰ میلی گرم در لیتر سفنازید، ۱ گرم در لیتر کاتالیزت، دوز ازن ۲۲/۰ گرم بر ساعت).



نمودار ۲: تاثیر دوز کاتالیز بر راندمان حذف (۱۰ میلی گرم در لیتر سفتازید، pH برابر با ۱۱ و دوز ازن زن ۰/۲۲ گرم بر ساعت).

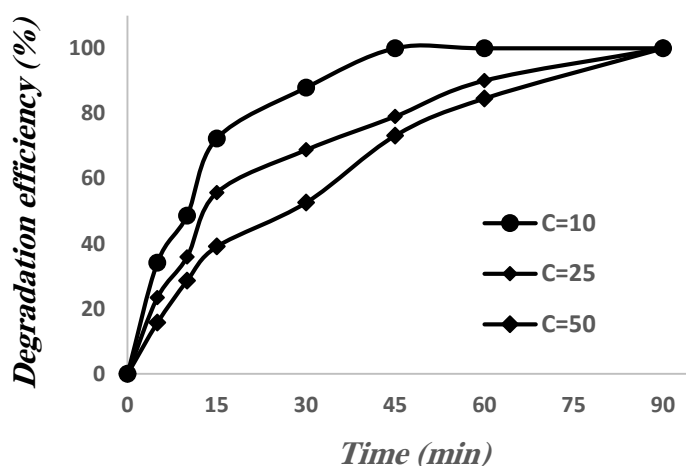
بررسی تأثیر دوز کاتالیز بر کارایی حذف

سفتازید در فرایند ازن زنی کاتالیزوری

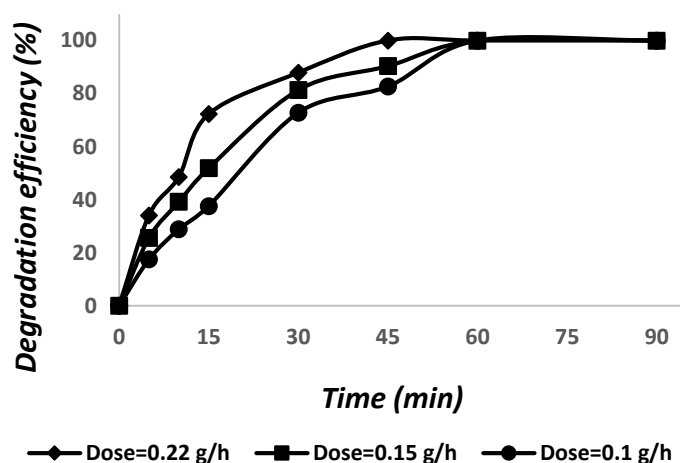
نتایج حاصل از تأثیر مقدار کاتالیز بر فرایند ازن زنی کاتالیزوری در نمودار ۲ آمده است. این نتایج نشان می‌دهد که بیشترین کارایی حذف سفتازید، با افزایش میزان کاتالیز تا ۲ گرم در لیتر حاصل شده است. همچنین با استفاده از این نتایج مقدار بهینه کاتالیز برابر با ۲ گرم در لیتر تعیین گردید.

بررسی تأثیر غلظت اولیه سفتازید بر کارایی حذف آن در فرایند ازن زنی کاتالیزوری

نتایج حاصل از تأثیر غلظت اولیه سفتازید بر روی کارایی فرایند ازن زنی کاتالیزوری نشان می‌دهد که با افزایش غلظت اولیه سفتازید از ۱۰ به ۵۰ میلی گرم در لیتر، کارایی فرایند کاهش می‌یابد (نمودار ۳).



نمودار ۳: تأثیر غلظت اولیه سفتازید بر راندمان (pH=۱۱، دوز کاتالیز ۲ gr/L و دوز ازن زن ۰/۲۲ گرم بر ساعت)



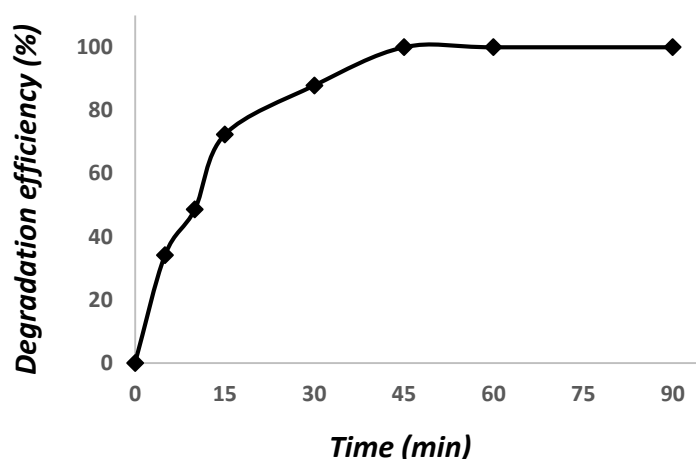
نمودار ۴: تأثیر دوز ازن بر راندمان (pH=۱۱، ۱۰ میلی گرم در لیتر سفنازید)

بررسی تأثیر دوز ازن بر کارایی حذف سفنازید در فرایند ازن زنی کاتالیزوری

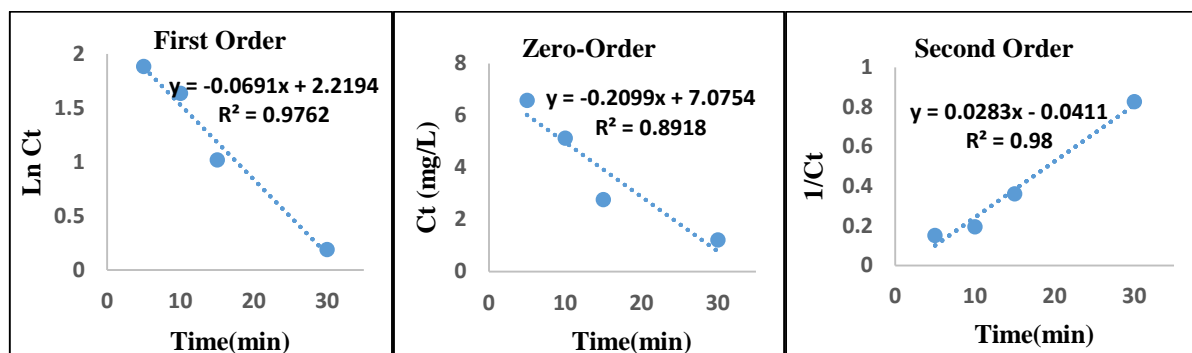
تأثیر دوز ازن در شرایط بهینه بر روی راندمان فرایند مورد بررسی قرار گرفت. در این مطالعه بازه زمانی انتخاب شده ۵ تا ۹۰ دقیقه بود که نتایج آن در نمودار ۵ نشان داده شده است. با توجه به نتایج با افزایش دوز ازن، راندمان حذف سفنازید نیز افزایش می‌یابد.

تأثیر زمان تماس بر کارایی حذف سفنازید در فرایند ازن زنی کاتالیزوری

تأثیر زمان واکنش نیز به عنوان یک پارامتر مهم، در شرایط بهینه بر روی راندمان فرایند ازن زنی کاتالیزوری مورد بررسی قرار گرفت. در این مطالعه بازه زمانی انتخاب شده ۵ تا ۹۰ دقیقه بود که نتایج آن در نمودار ۵ نشان داده شده است. با توجه به نتایج با افزایش زمان ماند، راندمان حذف سفنازید نیز افزایش می‌یابد.



نمودار ۵: تأثیر زمان واکنش بر روی راندمان حذف (۱۰ میلی گرم در لیتر سفنازید، pH=۱۱، دوز کاتالیست ۲ g/L و دوز ازن ۲۲۰ گرم بر ساعت).



نمودار ۶: مدل‌های سینتیکی در فرایند ازن زنی کاتالیزوری (غلظت سفتازید ۱۰ mg/l، pH=۱۱ اولیه، دوز کاتالیست ۲ g/L، دوز ازن ۰/۲۲ گرم بر ساعت)

بررسی سینتیک تجزیه سفتازید در فرایند ازن زنی کاتالیزوری

مدل‌های سینتیکی شامل درجه صفر، درجه اول، درجه دوم بررسی شد که نتیجه حاصل از آن در نمودار ۶ ارائه شده است. سینتیک تجزیه سفتازید با ضریب رگرسیون ۰/۹۷۶۲ از سینتیک درجه یک پیروی می‌کند.

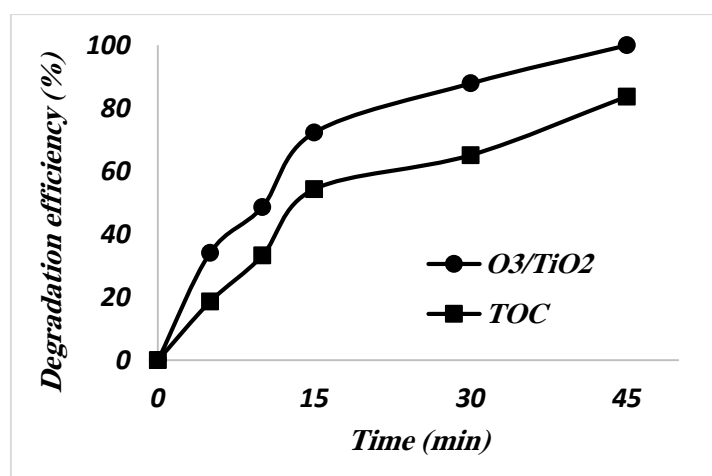
بررسی میزان TOC

میزان حذف TOC فرایند ازن زنی کاتالیزوری در زمان‌های ۱۰، ۱۵ و ۳۰ دقیقه مورد سنجش قرار گرفت. نتایج حاصل از آن در نمودار ۷ نشان داده شده است. میزان TOC

در شرایط بهینه بعد از گذشت ۳۰ دقیقه از زمان واکنش ۶۵/۱ درصد کاهش می‌یابد.

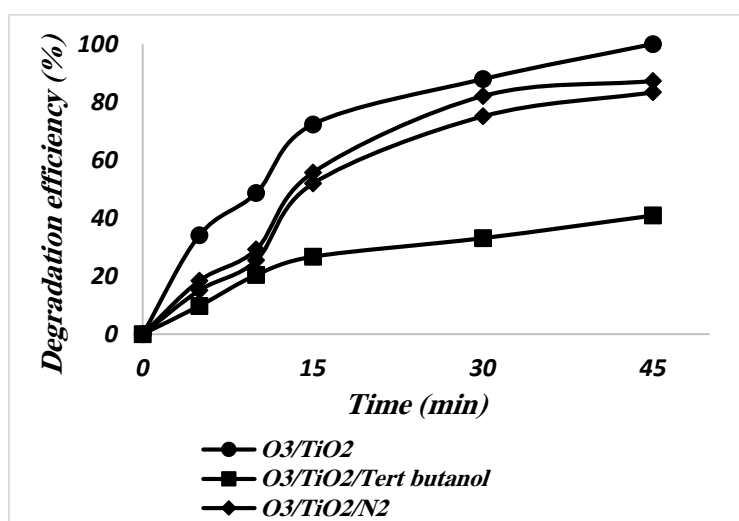
بررسی تأثیر بدام انداز رادیکال بر کارایی حذف سفتازید در فرایند ازن زنی کاتالیزوری

برای تشخیص تولید رادیکال‌های آزاد در فرایند ازن زنی کاتالیزوری از بدام انداز رادیکال از تری‌بوتانول، گاز نیتروژن و اکزالات آمونیوم استفاده شد. نتایج بررسی تأثیر بدام انداز رادیکال در نمودار ۸ آورده شده است. ملاحظه گردید که کاهش راندمان حذف سفتازید در فرایند ازن زنی کاتالیزوری با تری‌بوتانول، گاز نیتروژن و اکزالات آمونیوم، پس از پایان واکنش به ترتیب ۴۰/۹، ۸۳/۴ و ۹۰/۱ درصد می‌باشد.



نمودار ۷: میزان حذف TOC (غلظت سفتازید ۱۰ mg/l، pH=۱۱ اولیه، دوز کاتالیست ۲ g/L، دوز ازن ۰/۲۲ گرم بر ساعت)

بررسی کارایی فرآیند ازن زنی کاتالیزوری با نانوذرات مغناطیسی $\text{TiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4$ در حذف آنتی بیوتیک سفنازید از محیط‌های آبی



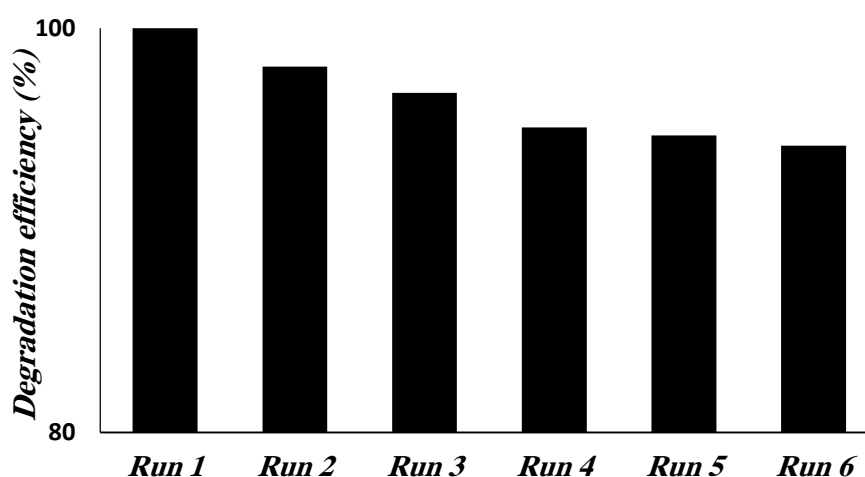
نمودار ۸: بررسی تأثیر بدام انداز رادیکال بر راندمان حذف سفنازید در فرایند ازن زنی کاتالیزوری (غلظت سفنازید 10 mg/l ، $\text{pH}=11$ اولیه، دوز کاتالیست 2 g/L ، دوز ازن 0.22 گرم بر ساعت)

شده، خشک شده و دوباره در فرایند ازن زنی کاتالیزوری استفاده گردیدند. همانطور که در نمودار ۹ ملاحظه می گردد نانوذرات مغناطیسی دی اکسید تیتانیوم بعد از ۵ بار استفاده در فرآیند $6/2$ درصد از کارایی آن کاسته می شود و می تواند دوباره مورد استفاده قرار گیرد.

بررسی قابلیت استفاده مجدد کاتالیست در

فرایند O_3/TiO_2

جهت استفاده از کاتالیست در مقیاس واقعی باید در استفاده های مکرر از آن خاصیت کاتالیستی خود را حفظ کرده و قابلیت بازیافت داشته باشد. به این منظور بعد از پایان فرایند ازن زنی کاتالیزوری، نانو ذرات با استفاده از آهنربا جمع آوری



نمودار ۹: بررسی قابلیت استفاده مجدد کاتالیست کاتالیزوری (غلظت سفنازید 10 mg/l ، $\text{pH}=11$ اولیه، دوز کاتالیست 2 g/L ، دوز ازن 0.22 گرم بر ساعت)

بحث

یکی از متغیرهای مهم در فرایند های اکسیداسیون پیشرفته pH می‌باشد. ازن از طریق مستقیم و غیرمستقیم با مواد آلی وارد واکنش می‌شود. در واکنش مستقیم، ازن مولکولی بر گروه‌های عاملی خاصی از آلاینده‌ها تأثیر می‌گذارد درحالی‌که در روش واکنش غیرمستقیم، ازن تجزیه‌شده و از طریق واکنش‌هایی به اکسیدکننده‌های قوی مانند رادیکال هیدروکسیل تبدیل شده که دارای پتانسیل اکسیدکنندگی بسیار بالاتری نسبت به مولکول ازن می‌باشد؛ بنابراین با افزایش pH در فرایند ازن زنی تولیدشده و راندمان حذف را افزایش می‌دهند.^{۲۷، ۲۸} طبق نمودارها در فرایند ازن زنی کاتالیزوری بیشترین راندمان حذف سفتازید را در pH اولیه برابر با ۱۱ دارند. این پدیده می‌تواند به علت ویژگی‌های سطح کاتالیست باشد. در فرایند ازن زنی کاتالیزوری، تغییرات pH می‌تواند باعث تغییر در مقدار یون‌های محلول و ویژگی‌های سطحی کاتالیست گردد و همچنین pH می‌تواند به طور مستقیم بر شکل مولکول‌های آلاینده تأثیر گذارد.^{۲۹، ۳۰} در pH قلیایی رادیکال های هیدروکسیل بیشتری تولید می‌گردد که راندمان حذف آلاینده را افزایش می‌دهد.^{۳۱} یون هیدروکسید (OH) در واکنش های اکسیداسیون نقش آغازگر واکنش زنجیره‌ای تجزیه ازن و تولید رادیکال هیدروکسیل را ایفا می‌کند که در شرایط قلیایی نسبت به شرایط اسیدی رادیکال هیدروکسیل بیشتری تولید می‌گردد. در مطالعه‌ای با عنوان ازن زنی کاتالیزوری کاتکول با استفاده از $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2@\text{TiO}_2$ حداکثر میزان حذف کاتکول در فاضلاب نیز، در pH قلیایی گزارش شده است.^{۳۲} دهقانی و همکارانش نیز بیان کردند که سرعت حذف مترونیدازول توسط ازن زنی کاتالیزوری با افزایش pH افزایش یافته است.^{۲۰}

همان‌طور که در نتایج اشاره شد با افزایش دوز کاتالیزور راندمان حذف افزایش می‌یابد. بیشترین میزان حذف سفتازید در دوز کاتالیست ۳ گرم در لیتر می‌باشد. با افزایش دوز

کاتالیست مساحت سطحی را افزایش داده و همچنین سایت‌های فعال که منجر به افزایش جذب ازن در سطح می‌شود را افزایش داده که نتیجه ی آن افزایش واکنش‌های سطحی و تولید رادیکال هیدروکسیل را در فرایند ازن زنی کاتالیزوری منجر می‌گردد که نتیجه‌ی آن افزایش راندمان تجزیه می‌باشد.^{۳۳} دلیل احتمالی دیگری که می‌تواند صورت پذیرد این است که با افزایش دوز کاتالیزور، سرعت تجزیه ازن به گونه‌های رادیکال هیدروکسیل نیز افزایش می‌یابد.^{۳۴} در مطالعه‌ای که لیلی و همکاران با موضوع تجزیه فورفورال توسط فرایند ازن زنی کاتالیزوری و همچنین در مطالعه Ye و همکاران بر روی تجزیه فتوکاتالیستی ۴-کلرونیتروبنزن توسط فرایند $\text{TiO}_2/\text{UV}/\text{O}_3$ دوز انجام دادند به این نتیجه رسیدند که، با افزایش دوز کاتالیست راندمان حذف افزایش می‌یابد.^{۳۵}

زمان واکنش به‌عنوان زمان موردنیاز برای رسیدن به اهداف مورد نظر در یک فرایند تصفیه، یکی از متغیرهای مهم به‌منظور طراحی و راهبری یک فرایند اکسیداسیون محسوب می‌شود.^{۳۷} طبق نتایج بدست آمده، با افزایش زمان تماس راندمان حذف سفتازید نیز افزایش می‌یابد. با افزایش زمان، تولید رادیکال های مختلف ازجمله رادیکال اکسیژن و هیدروکسیل ناشی از نانو ذرات افزایش یابد که باعث می‌شود مولکول ازن با قدرت و سرعت بیشتری تجزیه گردد. در مطالعه‌ای که توسط عبدلی و همکاران بر روی حذف مترونیدازول با فرایند فتواکسیداسیون پیشرفته، انجام گرفت مشاهده کردند که با افزایش زمان راندمان حذف زیاد می‌شود به طوری‌که راندمان حذف از ۳۰/۹ درصد در زمان ۵ دقیقه به ۶۴/۴ درصد در زمان ۳۰ دقیقه رسیده و بعد از ۶۰ دقیقه راندمان به ۷۱/۳ درصد رسیده است.^{۳۴} در مطالعه‌ای که توسط عرب زاده و همکاران بر روی حذف سفتریاکسون با فرایند ازن زنی کاتالیزوری با نودرات اکسید منیزیم، انجام گرفت نتایج نشان داد که با افزایش زمان تماس، راندمان

حذف افزایش می یابد^{۳۸}.

فاضلاب های صنایع داروسازی اغلب دارای غلظت های مختلفی از آنتی بیوتیک ها می باشند. با این وجود اکثر فرایندهای ازن زنی کاتالیزوری غلظت معینی از آلاینده را مورد بررسی قرار می دهند. از این رو بررسی راندمان حذف سفنازید به عنوان تابعی از غلظت اولیه آنتی بیوتیک بسیار مهم می باشد. طبق نتایج حاصله، راندمان حذف سفنازید با افزایش غلظت اولیه آنتی بیوتیک کاهش می یابد. در شرایطی که پارامترها ثابت می باشد، مقدار مشخصی رادیکال در محیط تولید می شود. این مقدار رادیکال تولیدی قادر به جذب و حذف مقدار مشخصی از مولکول های ماده آلی می باشد. بنابراین در صورت افزایش غلظت اولیه ماده آلی، مقدار رادیکال های موجود در محیط برای حذف مولکول های اضافی کافی نمی باشد. بنابراین چنین می توان بیان کرد که با افزایش غلظت اولیه ماده آلی، تمامی رادیکال های موجود در اکسیداسیون مواد آلی مصرف شده و در نتیجه بازده حذف ماده آلی کاهش می یابد^{۳۹}. همچنین سطح بالای کاتالیست در مقابل غلظت اندک آلاینده از عوامل جذب و سپس حذف مؤثر آلاینده با تشکیل رادیکال های فعال در فرایند ازن زنی کاتالیزوری می باشد^{۴۰}. یافته های مشابه در مطالعه Hai Chen و همکاران با موضوع ازن زنی کاتالیزوری سولفامتوکسازول با استفاده از نانو $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Co}_3\text{O}_4$ گزارش شده است^{۴۱}.

نتایج بررسی سینتیک تجزیه سفنازید در فرایندهای مورد مطالعه نشان داده شدند. ضرایب سینتیکی تجزیه سفنازید در فرآیندها در شرایط بهینه با واکنش درجه یک مطابقت زیادی دارد. همان طور که گفته شد ملاک انتخاب مناسب ترین و مطابق ترین مدل، ضریب رگرسیون خطی (R^2) در نظر گرفته شده است. در مطالعه دادبان و همکاران که به تجزیه و معدنی سازی فنل با استفاده از ازن زنی کاتالیزوری با استفاده از نانوذرات Fe_3O_4 تثبیت شده روی بستر کربن فعال پرداخته شده است، مشخص شد که واکنش تجزیه از نوع درجه یک پیروی

می کند^{۴۲}. مهم ترین مکانیسم در فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته، مانند فرایند ازن زنی و ازن زنی کاتالیزوری، تولید رادیکال های فعال هیدروکسیل با پتانسیل اکسیداسیون بالا می باشد^{۴۳، ۴۴}. از ترت بوتیل الکل (ترت بوتانول) و آمونیوم اگزالات و گاز نیتروژن جهت تشخیص تولید رادیکال هیدروکسیل در فرایند ازن زنی و تأثیر رادیکال خوارهای مختلف بر این فرایند استفاده گردید^{۴۵، ۴۶}. همان طور که در نتایج نشان داده شده است، کاهش راندمان حذف سفنازید در فرایند ازن زنی کاتالیزوری به وسیله ترت بوتانول، حاکی از این است که رادیکال های آزاد هیدروکسیل در این فرایند نقش مهمی در حذف دارند. در مطالعه ازن زنی کاتالیزوری کاتکول با استفاده از کمپوزیت MgO/GAC کاهش راندمان تجزیه کاتکول با ترت بوتانول ۲۰/۵ درصد گزارش شده است^{۴۶}. در فرایند ازن زنی کاتالیزوری، کاتالیست می تواند مشکلاتی از قبیل نشت آن ها به پساب تصفیه شده، تخریب ساختار کاتالیست و کاهش خاصیت کاتالیستی در استفاده های متوالی ایجاد کند. برای اینکه بتوان یک کاتالیست را در مقیاس واقعی استفاده کرد باید قابلیت استفاده مجدد یا فعال سازی دوباره را در فرایند داشته باشد. کاتالیست استفاده شده در این مطالعه، خاصیت کاتالیستی خود را پس از ۵ بار استفاده مجدد حفظ نموده است و تنها ۶/۲ درصد از راندمان حذف سفنازید در زمان استفاده ششم نسبت به اولین استفاده کم شده است. در مطالعه ازن زنی کاتالیزوری کاتکول با استفاده از $\text{Fe}_3\text{O}_4@\text{SiO}_2/\text{TiO}_2$ ، پس از ۷ بار استفاده مجدد از کاتالیست، راندمان حذف کاتکول تنها ۴ درصد کاهش یافت^{۳۲}.

نتیجه گیری

در این مطالعه، کارایی حذف سفنازید توسط فرآیند ازن زنی کاتالیزوری در شرایط آزمایشی گوناگون (اثرات تنظیم pH و دوز کاتالیست، غلظت آلاینده و زمان) مورد بررسی

و کارایی بالا می‌تواند روش مناسبی برای حذف سفنازید باشد

تشکر و قدردانی

بدینوسیله از حمایت‌های مالی و معنوی دانشگاه علوم پزشکی ایران برای انجام طرح تحقیقاتی کد ۲۷-۲۹۴۴۶-۰۳-۹۵ تشکر و قدردانی به عمل می‌آید.

قرار گرفت. نتایج آزمایشات حذف سفنازید توسط فرآیند ازن زنی کاتالیزوری نشان داد که با افزایش pH، دوز کاتالیزور، زمان تماس و کاهش غلظت آلاینده راندمان حذف سفنازید افزایش می‌یابد. در این بررسی حذف سفنازید توسط فرآیند فرآیند ازن زنی کاتالیزوری از سیستمیک درجه یک پیروی می‌کردند. با توجه به نتایج به دست آمده فرآیند ازن زنی کاتالیزوری با استفاده از نانو ذرات دی اکسید تیتانیوم به دلیل هزینه‌ی کم

References

1. Carrasquillo AJ, Bruland GL, MacKay AA, Vasudevan D. Sorption of ciprofloxacin and oxytetracycline zwitterions to soils and soil minerals: influence of compound structure. *Environ sci technol* 2008;42(20): 7634-42.
2. Ji Y, Ferronato C, Salvador A, et al. Degradation of ciprofloxacin and sulfamethoxazole by ferrous-activated persulfate: implications for remediation of groundwater contaminated by antibiotics. *Sci total environ* 2014;472: 800-8.
3. LaPara TM, Burch TR, McNamara PJ, et al. Tertiary-treated municipal wastewater is a significant point source of antibiotic resistance genes into Duluth-Superior Harbor. *Environ sci technol* 2011;45(22): 9543-9.
4. Joo SH, Cheng I. *Nanotechnology for environmental remediation. modern inorganic chemistry*: Springer, New York; 2006.
5. Estrada AL, Li Y-Y, Wang A. Biodegradability enhancement of wastewater containing cefalexin by means of the electro-Fenton oxidation process. *J hazard mater* 2012;227: 41-8.
6. Duan P, Yang X, Huang G, et al. La₂O₃-CuO₂/CNTs electrode with excellent electrocatalytic oxidation ability for ceftazidime removal from aqueous solution. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 2019;569: 119-28.
7. Thai PK, Binh VN, Nhung PH, et al. Occurrence of antibiotic residues and antibiotic-resistant bacteria in effluents of pharmaceutical manufacturers and other sources around Hanoi, Vietnam. *Sci total environ* 2018;645: 393-400.
8. Duan P, Hu X, Ji Z, et al. Enhanced oxidation potential of Ti/SnO₂-Cu electrode for electrochemical degradation of low-concentration ceftazidime in aqueous solution: Performance and degradation pathway. *Chemosphere* 2018;212: 594-603.
9. Haller L, Chen H, Ng C, et al. Occurrence and characteristics of extended-spectrum β -lactamase-and carbapenemase-producing bacteria from hospital effluents in Singapore. *Sci total environ* 2018;615: 1119-25.
10. Lindberg R, Jarnheimer P-Å, Olsen B, et al. Determination of antibiotic substances in hospital sewage water using solid phase extraction and liquid chromatography/mass spectrometry and group analogue internal standards. *Chemosphere* 2004;57(10): 1479-88.
11. Bendesky A, Menéndez D, Ostrosky-Wegman P. Is metronidazole carcinogenic? *Mutation Research/Reviews in Mutation Research* 2002;511(2): 133-44.
12. Fang Z, Chen J, Qiu X, et al. Effective removal of antibiotic metronidazole from water by nanoscale zero-valent iron particles. *Desalination* 2011;268(1-3): 60-7.
13. Huiyan W, Gaoke Z, Yuanyuan G. Photocatalytic Degradation of Metronidazole in Aqueous Solution by Niobate K₆Nb₁₀O₃₀ *journal of Natural Sciences* 2010;15: 4.
14. Gonçalves AG, Órfão JJ, Pereira MF. Catalytic ozonation of sulphamethoxazole in the presence of carbon materials: catalytic performance and reaction pathways. *J hazard mater* 2012 Nov 15;239:167-74..
15. Robinson T, McMullan G, Marchant R, Nigam P. Remediation of dyes in textile effluent: a critical review on current treatment technologies with a proposed alternative. *Bioresource technol* 2001;77(3): 247-55.
16. Hammad Khan M, Jung JY. Ozonation catalyzed by homogeneous and heterogeneous catalysts for degradation of DEHP in aqueous phase. *Chemosphere* 2008;72(4): 690-6.

17. Harrelkas F, Paulo A, Alves MM, et al. Photocatalytic and combined anaerobic-photocatalytic treatment of textile dyes. *Chemosphere* 2008;72(11): 1816-22.
18. Moussavi G, Mahmoudi M. Degradation and biodegradability improvement of the reactive red 198 azo dye using catalytic ozonation with MgO nanocrystals. *Chem eng j* 2009;152(1): 1-7.
19. Erol F, Özbelge TA. Catalytic ozonation with non-polar bonded alumina phases for treatment of aqueous dye solutions in a semi-batch reactor. *Chem Eng J* 2008;139(2): 272-83.
20. YeganeBadi M, Dehghanifard E. Study of the Efficiency of Non-Homogeneous Catalytic Ozonation Process using a Catalyst of Magnetic Nanoparticles of Iron Oxide Doped with Silica and Titanium Dioxide in Removal of Metronidazole from Synthetic Wastewater. *JEHE* 2018;5(4): 323-36.
21. Sui M, Xing S, Sheng L, et al. Heterogeneous catalytic ozonation of ciprofloxacin in water with carbon nanotube supported manganese oxides as catalyst. *J Hazard Mater* 2012;227-228(0): 227-36.
22. Qi L, Yao J, You H, et al. Oxidation products and degradation pathways of 4-chlorophenol by catalytic ozonation with $\text{MnO}_x/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ as catalyst in aqueous solution. *Environ Carcinog Rev, Part A* 2014;49(3): 327-37.
23. Alpatova A, Meshref M, McPhedran KN, El-Din MG. Composite polyvinylidene fluoride (PVDF) membrane impregnated with Fe_2O_3 nanoparticles and multiwalled carbon nanotubes for catalytic degradation of organic contaminants. *J Membrane Sci* 2015;490: 227-35.
24. Moussavi G, Mahmoudi M. Removal of azo and anthraquinone reactive dyes from industrial wastewaters using MgO nanoparticles. *J Hazard Mater* 2009;168(2-3): 806-12.
25. Yegane badi M, Esrafil A, Rezaei Kalantary3 R, et al. Removal of Diethyl phthalate from Aqueous Solution Using Persulfate-based (UV / $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_8$ / Fe^{2+}) Advanced Oxidation Process. *jmums* 2016;25(132): 122-35.
26. Wan H, Li J, Yu W, et al. Fabrication of a novel magnetic yolk-shell $\text{Fe}_3\text{O}_4@ \text{mTiO}_2 @ \text{mSiO}_2$ nanocomposite for selective enrichment of endogenous phosphopeptides from a complex sample. *RSC Advances* 2014;4(86): 45804-8.
27. Moussavi G, Alizadeh R. The integration of ozonation catalyzed with MgO nanocrystals and the biodegradation for the removal of phenol from saline wastewater. *Applied Catalysis B: Environmental* 2010;97(1): 160-7.
28. Hsu Y-C, Yang H-C, Liu J-W, Chen J-H. The ozonations of catechol and hydroquinone solutions using gas-inducing reactor. *J-Chinese Institute Of Env Eng* 2003;13(3): 151-8.
29. Rao Y-f, Luo H-j, Wei C-h, Luo L-f. Catalytic ozonation of phenol and oxalic acid with copper-loaded activated carbon. *Journal of Central South University of Technology* 2010;17: 300-6.
30. Esplugas S, Gimenez J, Contreras S, et al. Comparison of different advanced oxidation processes for phenol degradation. *Water Res* 2002;36(4): 1034-42.
31. Moussavi G, Khosravi R. Preparation and characterization of a biochar from pistachio hull biomass and its catalytic potential for ozonation of water recalcitrant contaminants. *Bioresource Technol* 2012;119: 66-71.
32. Kermani M, Farzadkia M, Esrafil A, et al. Removal of Catechol from Aqueous Solutions Using Catalytic Ozonation by Magnetic Nanoparticles of Iron Oxide Doped with Silica and Titanium Dioxide: A Kinetic Study. *Jmums* 2016;26(142): 139-54.
33. Valdes H, Murillo F, Manoli J, Zaror C. Heterogeneous catalytic ozonation of benzothiazole aqueous solution promoted by volcanic sand. *J Hazard Mater* 2008;153(3): 1036-42.
34. Abdoli A, Shokuhi R, Seid Ma, Asgari G. Survey of Catalytic O zonation Process with MgO-Modified Activated Carbon for the Removal of Metronidazole from Aqueous Solutions through a Fluidized Bed Reactor. 2016.
35. Leili M, Mousavi Sr, Nadafi K, Ghaffari M. The investigation of single ozonation process, catalytic ozonation process and single adsorption on activated carbon efficiencies for removal of furfural from aqueous solution. 2013.
36. Ye M, Chen Z, Liu X, et al. Ozone enhanced activity of aqueous titanium dioxide suspensions for photodegradation of 4-chloronitrobenzene. *J Hazard Mater* 2009;167(1-3): 1021-7.
37. Kermani M, Bahrami Asl F, Farzadkia M, et al. Degradation Efficiency And Kinetic Study Of Metronidazole By Catalytic Ozonation Process In Presence Of Mgo Nanoparticles. *Urmia Medical J* 2013;24(10): 839-50.

38. Arabzadeh H, Farzadkiya M, ESRAFILY A, et al. Efficiency of Catalytic Ozonation by MgO Nanoparticles to Remove Ceftriaxone from Aqueous Solution. 2018.
39. He K, Dong YM, Li Z, et al. Catalytic ozonation of phenol in water with natural brucite and magnesia. J Hazard Mater 2008;159(2-3): 587-92.
40. Martins RC, Quinta-Ferreira RM. Catalytic ozonation of phenolic acids over a Mn–Ce–O catalyst. Applied Catalysis B: Environmental 2009;90(1): 268-77.
41. Chen H, Wang J. Catalytic ozonation of sulfamethoxazole over Fe₃O₄/Co₃O₄ composites. Chemosphere 2019.
42. Shahamat YD, Farzadkia M, Nasser S, et al. Magnetic heterogeneous catalytic ozonation: a new removal method for phenol in industrial wastewater. J of Environmental Health Science and Engineering 2014;12(1): 1.
43. Qi F, Xu B, Chen Z, et al. Influence of aluminum oxides surface properties on catalyzed ozonation of 2, 4, 6-trichloroanisole. Sep Purif Technol 2009;66(2): 405-10.
44. Sánchez-Polo M, Rivera-Utrilla J. Ozonation of naphthalenetrisulphonic acid in the presence of activated carbons prepared from petroleum coke. Applied Catalysis B: Environmental 2006;67(1): 113-20.
45. Sui M, Xing S, Sheng L, et al. Heterogeneous catalytic ozonation of ciprofloxacin in water with carbon nanotube supported manganese oxides as catalyst. J Hazard Mater 2012;227: 227-36.
46. Moussavi G, Aghapour AA, Yaghmaeian K. The degradation and mineralization of catechol using ozonation catalyzed with MgO/GAC composite in a fluidized bed reactor. Chem Eng J 2014;249: 302-10.

Evaluation the Efficiency of Catalytic Ozonation by Magnetic Nanoparticles $\text{TiO}_2/\text{Fe}_3\text{O}_4$ in Removal of Ceftazide Antibiotic from Aqueous Solutions

Mojtaba Yegane Badi¹, Ali Esrafil², Hasan Pasalari³, Sevda Fallah Jokandan⁴, Mahdi Farzadkia⁵

1. PhD Student of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
2. Associate Professor, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
3. PhD Student of Environmental Health Engineering, School of Public Health and Safety, Shahid Beheshti University of Medical Sciences, Tehran, Iran
4. PhD Student of Environmental Health Engineering, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
5. Associate Professor, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran

* E-mail: mahdifarzadkia@gmail.com

Received: 8 May 2019 ; Accepted: 31 Aug. 2019

ABSTRACT

Background & aim: The discharge of pharmaceutical effluent containing antibiotics into water resources is a great of concern associated with environmental pollution. In addition, conventional treatment systems are not capable of eliminating these antibiotics which commonly used in dealing with treatment of humans. Furthermore, over-consuming of antibiotics over the past few decades has forced researchers to find new techniques in order to deal with this environmental issues of great concern. In the present work, TiO_2 was employed as a catalyst in the non-homogenous catalytic ozonation process for removal of Ceftazide antibiotics from synthetic sewage.

Materials and Methods: This fundamental-practical study was conducted in a pilot scale. The magnetic TiO_2 nano-sized particles were synthesized through a sol-gel method. The properties of magnetized titanium dioxide nanoparticles as catalyst were characterized using SEM, XRD and EDX. The effects of variables: pH, catalyst dose, reaction time, pollutant concentration on the performance of catalytic process were investigated. The residual concentration of Ceftazide was analyzed by a high performance liquid chromatography (HPLC).

Results: The findings of present study indicated that the high removal efficiency of Ceftazide occurs in alkaline conditions and a direct relation was observed between removal efficiency and pH. The catalyst dose of 2 g/l was determined as optimum dosage and the Ceftazide removal efficiency was improved by decreasing the initial concentration as time proceeded. The results showed that the removal of Ceftazide by this catalytic process are fitted with the first-order model.

Conclusion: The results show that the catalytic ozonation process with magnetized titanium dioxide nanoparticles has high efficiency for removal of Ceftazide from aqueous media. The catalytic ozonation process can be considered as an effective way to remove Ceftazide antibiotics from aqueous environment.

Keywords: Ceftazide, Ozonation, Magnetic Titanium dioxide Nanoparticles