وزارت بهداشت، درمان و آموزش پزشکی

دانشگاه علوم پزشکی اردبیل
دانشکده بهداشت

پایان‌نامه جهت اخذ مدرک کارشناسی ارشد در رشته مهندسی بهداشت محیط

عنوان:

بررسی کارایی حذف آموکسی سیلین از محلول های آبی با استفاده از فرآیند $US/PS/CuOFe_3O_4$

اساتید راهنما:

دکتر یوسف پورعشق
دکتر مرتضی عالیقدری

اساتید مشاور:

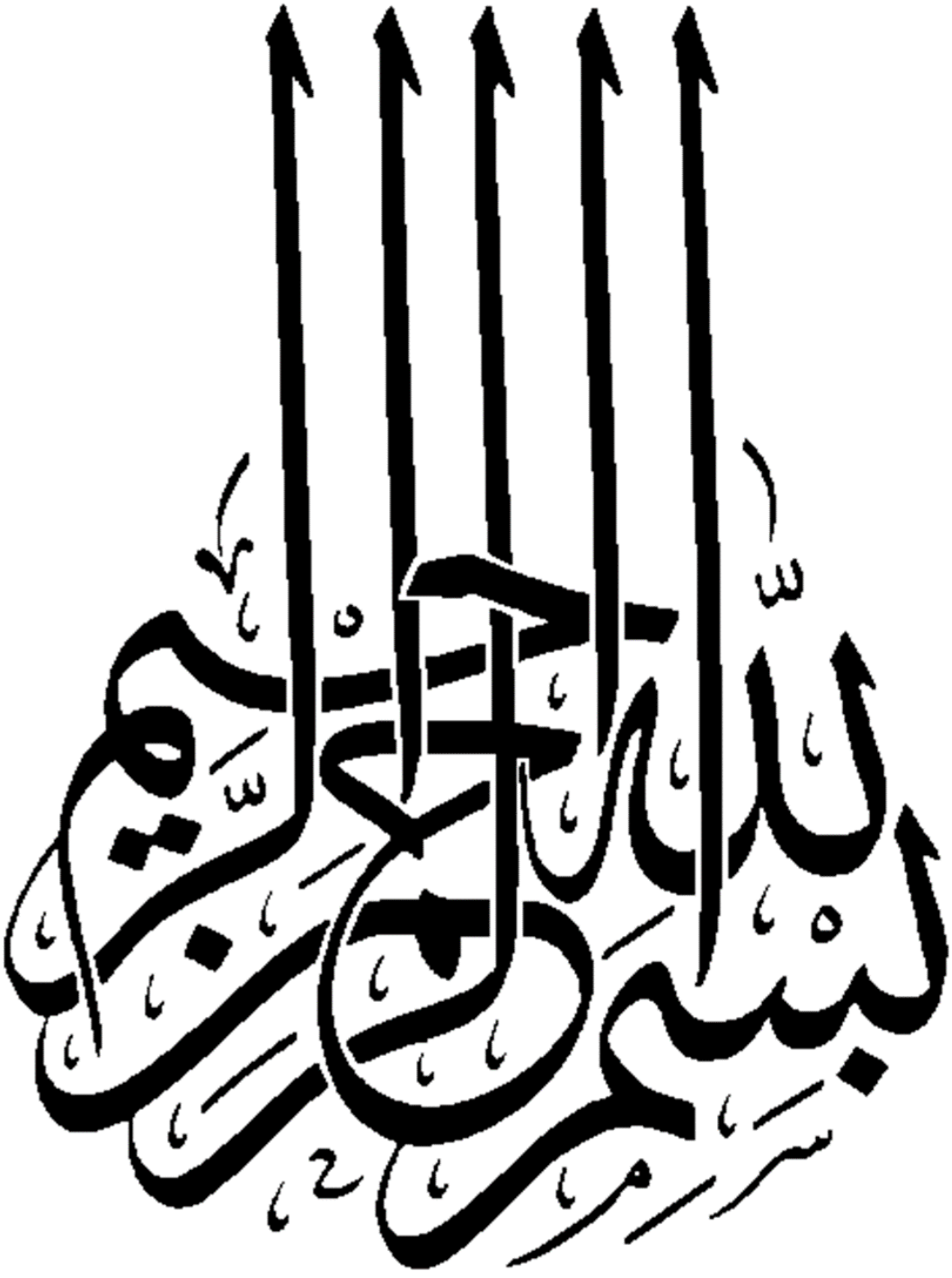
دکتر مهدی فضل زاده
دکتر سعید پرستار

محقق و نگارنده:

سید بهزاد نظری خانقاه

تابستان ۱۴۰۱

شماره پایان‌نامه: ۳۳


بسم الله الرحمن الرحيم

اظهارنامه اصالت پایان‌نامه

اینجانب سید بهزاد نظری خانقاه دانشجوی کارشناسی ارشد رشته مهندسی بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی اردبیل نویسنده پایان‌نامه «بررسی کارایی حذف آموکسی سیلین از محلول های آبی با استفاده از فرآیند $US/PS/CuOFe_3O_4$» تحت راهنمایی دکتر یوسف پورعشق و دکتر مرتضی عالیقدری متعهد می‌شوم:

تحقیقات در این پایان‌نامه توسط اینجانب انجام‌شده و از صحت و اصالت برخوردار است .

در استفاده از نتایج پژوهش‌های محققان دیگر به مرجع مورداستفاده استناد کرده‌ام .

مطالب مندرج در پایان‌نامه تاکنون توسط خود یا فرد دیگری برای دریافت هیچ نوع مدرک یا امتیازی ارائه نگردیده است .

در تمامی مراحل انجام این پایان‌نامه اصل رازداری و اصول اخلاق پژوهشی را رعایت نموده‌ام.

تاریخ امضای دانشجو

اظهار نامه مربوط به انتشار مقاله

کلیه حقوق معنوی این اثر متعلق به دانشگاه علوم پزشکی اردبیل است. مقالات مستخرج با نام دانشگاه علوم پزشکی اردبیل و یا Ardabil University of Medical Science به چاپ خواهد رسید.

متعهد می‌گردم حقوق معنوی تمام افرادی که در به دست آوردن نتایج اصلی پایان‌نامه تأثیرگذار بوده‌اند را در مقالات مستخرج از پایان‌نامه رعایت نمایم و در تمامی آن‌ها نام استاد راهنما به عنوان نویسنده مسئول و نیز نام استاد(ان) مشاور و نشانی الکترونیکی دانشگاهی آنان را قید نمایم

تاریخ امضای دانشجو

تقدیم به پدر و مادر عزیزتر از جانم:

پروردگارا نه می‌توانم موهایشان را که در راه عزت من سفید شد، سیاه کنم و نه برای دست‌های پینه بسته‌شان که ثمره تلاش برای افتخار من است، مرهمی دارم. پس توفیقم ده که هرلحظه شکرگزارشان باشم و ثانیه‌های عمرم را در عصای دست بودنشان بگذرانم.

تقدیم به همسر عزیزم، بهار کوچولوم و خواهران عزیزم:

که وجودشان شادی بخش و صفایشان، مایه آرامش من بودند.

که همواره در طول تحصیل متحمل زحماتم بودند و تکیه گاه من در مواجهه با مشکلات و وجودشان مایه دلگرمی من می‌باشد.

تقدیر و سپاس

با سپاس از پروردگار جهانیان که قدرت آموختن را به بشر ارزانی کرد. اینک که این پژوهش به پایان رسیده است بر خود تکلیف میدانم از اساتید گرامی که با گشاده‌دستی از محضرشان کسب فیض نمودم قدردانی و تشکر کنم و برایشان توفیق روزافزون از محضر خالق یکتا خواهان باشم.

مراتب قدردانی خود را از اساتید راهنمای ارجمندم جناب آقای دکتر یوسف پورعشق و دکتر مرتضی عالیقدری که در اجرای این پروژه، دلسوزانه و با صبر و حوصله بسیار راهنمای بنده چه ازنظر علمی و چه ازنظر اخلاقی بودند تقدیم می‌نمایم و افتخار شاگردی این اساتید، فرصتی ارزشمند برای من بوده است.

از اساتید مشاور محترم، جناب آقای دکتر مهدی فضل زاده و جناب آقای دکتر سعید پرستار که در انجام مراحل مختلف تحقیق مساعدت‌های بی‌شماری را مبذول فرمودند و نظرات سازنده‌ای را در اختیار این‌جانب نهادند،کمال تشکر را دارم.

از اساتید محترم آقایان دکتر صادقی، دکتر مختاری، دکتر وثوقی و نیز از سایر اساتید و کارشناسان بزرگوار گروه مهندسی بهداشت محیط و حرفه ای و عمومی که همواره مرا در طول دوران تحصیل یاری نمودند بی نهایت قدردانم.

بررسی کارایی حذف آموکسی سیلین از محلول های آبی با استفاده از فرآیند $US/PS/CuO@Fe_3O_4$

چکیده

زمینه و هدف: آنتی‌بیوتیک‌ها از نظر مصرف، وسعت جهانی داشته و پس از استفاده به طرق مختلف وارد منابع آبی می‌شوند. در سال‌های اخیر، نگرانی‌های جهانی در مورد تأثیر بالقوه باقیمانده‌های آنتی‌بیوتیک بر محیط‌زیست افزایش‌یافته است. حضور این ترکیبات در محیط نگرانی‌هایی در مورد سمیت برای موجودات آبزی و همچنین ظهور باکتری‌های مقاوم به آنتی‌بیوتیک را ایجاد کرده است. بنابراین تلاش های زیادی جهت حذف این آلاینده‌ها توسط محققین مختلف انجام گرفته است. ازاین‌رو هدف این پژوهش، بررسی کارایی حذف آموکسی سیلین از محلول های آبی با استفاده از فرآیند $US/PS/CuO@Fe_3O_4$ بود.

مواد و روش‌ها: این مطالعه به‌صورت تجربی و در مقیاس آزمایشگاهی در سیستم بسته انجام گرفت. ساختار و مرفولوژی $CuO@Fe_3O_4$ با استفاده از تکنیک‌های BET،VSM، XRD، FE-SEM و FTIR بررسی شد. آزمایش‌ها بر اساس طرح آماری باکس بنکن با پنج پارامتر ورودی از قبیل زمان واکنش، pH، غلظت پرسولفات، مقدار $CuO@Fe_3O_4$ و غلظت اولیه آموکسی سیلین در سه سطح مورد ارزیابی قرار گرفت. سینتیک فرآیند در غلظت‌های مختلف برای ارزیابی فرآیند اکسیداسیون مورد بررسی قرار گرفت.

یافته‌ها: آنالیزهای BET، VSM، XRD، FE-SEM و FTIR ماهیت و ساختار $CuO@Fe_3O_4$ را تائید کردند. با توجه به تجزیه و تحلیل واریانس (ANOVA) و مدل درجه دوم پیشنهادی، pH و غلظت آنتی بیوتیک به عنوان مهم‌ترین پارامترها در کارایی فرآیند اکسیداسیون شناخته شدند. همچنین نتایج نشان داد که با افزایش مقدار $CuO@Fe_3O_4$ و زمان تماس، بازده حذف آموکسی سیلین افزایش یافته و با افزایش غلظت اولیه آموکسی سیلین و pH کاهش می‌یابد. در شرایط بهینه پارامترهای مورد بررسی شامل pH=۳/۳، زمان تماس ۶۰ دقیقه، غلظت اولیه آموکسی سیلین ۱۳mg/L، مقدار پرسولفات ۰/۶۷ و مقدار $CuO@Fe_3O_4$ برابر با ۰/۷ گرم در لیتر بالاترین کارایی بدست آمد.

نتیجه‌گیری: براساس نتایج بدست آمده فرآیند مورد بررسی را می‌توان به عنوان روشی مناسب برای از بین بردن ترکیبات آلی مقاوم از جمله آنتی بیوتیک‌ها استفاده کرد. با توجه به تجزیه و تحلیل واریانس (ANOVA) و مدل درجه دوم پیشنهادی، مقدار $CuO@Fe_3O_4$ و زمان تماس به عنوان مهمترین پارامتر مثبت و pH و غلظت آموکسی سیلین ، به عنوان مهمترین پارامتر منفی در کارایی فرآیند اکسیداسیون آموکسی سیلین شناخته می شوند. همچنین نتایج نشان داد که با افزایش مقدار $CuO@Fe_3O_4$ و زمان تماس، بازده حذف آموکسی سیلین افزایش یافته و با افزایش غلظت اولیه آموکسی سیلین و pH کاهش می یابد. تخریب آموکسی سیلین از نوع سینتیک شبه مرتبه اول است. نتایج این تحقیق نشان داد که فرآیند $US/PS/CuO@Fe_3O_4$ قابلیت خوبی در حذف آموکسی سیلین از محلول‌های آبی دارد و می‌توان به عنوان یک گزینه مناسب جهت حذف این آلاینده به آن توجه کرد.

واژگان کلیدی: آموکسی سیلین، اولتراسونیک، اکسیداسیون، اکسید مس، نانوذره، پرسولفات

فهرست

عنوان **صفحه**

فصل اول: کلیات

۱-۲. بیان مسئله ۳
۱-۳. آنتی‌بیوتیک ها ۸
۱-۴. طبقه‌بندی آنتی‌بیوتیک‌ها ۹
۱-۵. آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط زیست ۱۰
۱-۶. آنتی‌بیوتیک آموکسی سیلین ۱۳
۱-۷. روش های حذف و تصفیه آنتی‌بیوتیک‌ها از منابع آبی ۱۴
۱-۸. روشهای سنتز نانو ذرات ۲۰
۱-۹. طرح آزمایش و تجزیه تحلیل نتایج ۲۳
۱-۱۰. سینتیک اکسیداسیون و مدلسازی آن ۲۵
۱-۱۱. بررسی متون ۲۶
۱-۱۲. اهداف و فرضیات ۳۲

فصل دوم: مواد و روش ها

۲-۱. مقدمه ۳۵
۲-۲. طرح کلی تحقیق ۳۵
۲-۳. مشخصات تجهیزات آزمایشی مورداستفاده در این پژوهش ۳۶
۲-۴. آموکسی سیلین ۳۷
۲-۵. روش انجام آزمایشات ۳۷

فصل سوم: یافته ها

۳-۱. مقدمه ۴۷
۳-۲. مشخصات نانوذره ۴۷
۳-۳. تحلیل و بررسی طرح باکس بنکن ۵۲
۳-۴. برازش مدل چند جمله ای درجه دوم و آنالیزهای آماری ۵۴
۳-۵. بررسی دقت و اعتبار مدل پیشنهادی ۵۷
۳-۶. بهنه سازی فرآیند ۵۷
۳-۷. تعیین تاثیر pH ۵۸
۳-۸. تعیین تاثیر غلظت ۵۸
۳-۹. تعیین تاثیر مقدار CuO/Fe_3O_4 ..... ۵۹
۳-۱۰. تعیین تاثیر زمان ۵۹
۳-۱۱. تعیین تاثیر پرسولفات ۶۰
۳-۱۲. بررسی سینتیک فرآیند ۶۱
۳-۱۳. مقایسه کارایی در فرآیند اکسیداسیون بصورت مجزا ۶۳
۳-۱۴. آنالیز COD و TOC ۶۳
۳-۱۵. پساب شبه واقعی ۶۴

فصل چهار: بحث و نتیجه گیری

۴-۱. بررسی خصوصیات فیزیکی و شیمیایی $CuO-Fe_3O_4$ ۶۶
۴-۲. برازش مدل چند جمله ای درجه دوم و آنالیزهای آماری ۶۷
۴-۳. بررسی دقت و اعتبار مدل پیشنهادی ۶۸

۴-۴. تعیین تاثیر pH ۶۹
۴-۵. تعیین تاثیر پرسولفات ۷۰
۴-۶. تعیین تاثیر زمان ۷۱
۴-۷. تعیین تاثیر غلظت ۷۲
۴-۸. بررسی سینتیک فرآیند ۷۳
۴-۹. هم افزایی اکسیداسیون در فرآیند بصورت مجزا ۷۳
۴-۱۰. آنالیز COD و TOC ۷۴
۴-۱۱. پساب شبه واقعی ۷۴
۴-۱۲. نتیجه‌گیری ۷۵
۴-۱۳. پیشنهادها ۷۵
فهرست منابع و مأخذ ۷۶

لیست علائم اختصاری

ردیف	علامت اختصاری	توضیحات
۱	**EC**	Electrocoagulation
۲	**EO**	Electrooxidation
۳	**OH^-**	Hydroxyl ions
۴	**AOP_S**	Advanced Oxidation Processes
۵	**H_2SO_4**	Sulfuric Acid
۶	**pH**	Potential of Hydrogen
۷	**BDD**	Boron-doped diamond
۸	**C_o**	Initial Concentration of Furfural
۹	**C_t**	Concentration of Furfural at reaction time
۱۰	**FTIR**	Fourier Transform Infrared Spectroscopy
۱۱	**BET**	Brunauer-Emmett-Teller
۱۲	**RSM**	Response Surface Methodology
۱۳	**FE-SEM**	Field Emission Scanning Electron Microscopy
۱۴	**CCD**	Central Composite Design
۱۵	**TOC**	Total organic carbon
۱۶	**LC - MS**	Liquid chromatographymass spectrometry
۱۷	**COD**	Chemical Oxygen Demand
۱۸	**AOS**	Average Oxidation State
۱۹	**VSM**	Vibrating Sample Magnetometer
۲۰	**XRD**	X – ray Diffraction

فهرست جداول

عنوان **صفحه**

جدول۱-۲خصوصیات فیزیکی وشیمیایی اموکسی سیلین ۱۳
جدول ۲-۲ مواد مصرفی و دستگاههای مورد استفاده در تحقیق.....۳۵
جدول ۳-۲مشخصات فیزیکو شیمیایی آموکسی سیلین ۳۶
جدول ۴-۲ متغییر های مورد بررسی در این پژوهش ۴۰
جدول ۵-۲ عوامل تجربی و سطح آن ها ۴۴
جدول ۶-۲ مساحت سطح ویژه وحجم منافذ کل با استفاده از آنالیز (بی .ای .تی)..... .....۴۸.
جدول ۷-۲ طراحی آزمایش برای سه سطح وپنج فاکتور ۵۳-۵۲
جدول ۸-۲: آنالیز واریانس پارامترهای عملیاتی در اکسیداسیون آموکسی سیلین ۵۵
جدول ۹-۲: شرایط بهینه متغییرهای مورد مطالعه ۵۸

فهرست اشکال و نمودار

عنوان **صفحه**

شکل ۱-۱: ساختار شیمیایی آموکسی سیلین ۴
شکل ۲-۱: مسیرهای احتمالی ورود ترکیبات مختلف دارویی به آب‌های سطحی، آشامیدنی و زیرزمینی (۴۲). ۱۳
شکل ۳-۱: دستگاه اسپکتروفتومتری ۴۲
نمودار ۱-۳. منحنی کالیبراسیون دستگاه اسپکتروفتومتر جهت سنجش آموکسی سیلین ۴۳
نمودار ۲-۳: الگوی FTIR مربوط به CuO/Fe_3O_4 ..... ۴۷
شکل۴-۱: الگوی FE-SEM مربوط به CuO (a)، Fe3O4 (b)، CuO/Fe3O4 (c) ۴۸
شکل ۵-۱: آنالیز BET برای CuO/Fe_3O_4 و CuO..... ۵۰
شکل ۶-۱: الگوی VSM مربوط به Fe_3O_4 و CuO/Fe_3O_4 ..... ۵۱
شکل ۷-۱: آنالیز XRD کامپوزیت $CuO\text{-}Fe_3O_4$ و Fe_3O_4..... ۵۲
شکل ۸-۱: تاثیر اولیه پارامترهای در نظر گرفته شده ۵۶
شکل ۹-۱: نمودار پارتو از تاثیر های اصلی به دست آمده از آزمایش های غربالگری ۵۶
نمودار ۳-۳: برازش داده های تجربی در مقابل داده های پیش بینی شده ۵۷
نمودار ۴-۳: احتمال نرمال..... ۵۷
شکل ۱۰-۱:کارایی اکسیداسیون آموکسی سیلین به عنوان تابعی از غلظت و pH فرایند..... ۵۹
شکل ۱۱-۱: کارایی اکسیداسیون آموکسی سیلین به عنوان تابعی از مقدار CuO/Fe_3O_4 و زمان واکنش ۶۰
شکل ۱۲-۱: کارایی اکسیداسیون آموکسی سیلین به عنوان تابعی از پرسولفات و مقدار CuO/Fe_3O_4 .....۶۱
نمودار ۵-۳: سینتیک واکنش ۶۲
نمودار ۶-۳: مقایسه کارایی حذف آموکسی سیلین در فرآیند به صورت مجزا (در شرایط بهینه) ۶۳