



وزارت بهداشت، درمان و آموزش پزشکی
دانشگاه علوم پزشکی اردبیل
دانشکده بهداشت

پایان نامه جهت اخذ مدرک کارشناسی ارشد در رشته مهندسی بهداشت محیط

عنوان:

کاربرد نانوکامپوزیت $GO-Fe_3O_4$ به همراه اولتراسونیک در حذف سفیکسیم از محلول های آبی:
مطالعه ایزوترم و سینتیک

استاد راهنما:

دکتر مهدی وثوقی

استاد مشاور:

دکتر سید احمد مختاری

نگارنده:

فرزاد مهدویان

تابستان ۱۴۰۰

شماره پایان نامه: ۳۲

بِسْمِ اللَّهِ الرَّحْمَنِ الرَّحِيمِ

پایان نامه

جهت اخذ مدرک کارشناسی ارشد در رشته مهندسی بهداشت محیط

عنوان: کاربرد نانوکامپوزیت $GO-Fe_3O_4$ به همراه اولتراسونیک در حذف سفیکسیم از محلول های آبی: مطالعه ایزوترم و سینتیک

محل انجام پژوهش: آزمایشگاه شیمی

نگارنده: فرزاد مهدویان

استاد راهنما: دکتر مهدی وثوقی

استاد مشاور: دکتر سید احمد مختاری

شماره پایان نامه: ۳۲

تاریخ تصویب پایان نامه: ۱۳۹۸/۱۰/۱۵

تاریخ دفاع پایان نامه: ۱۴۰۰/۰۶/۲۹

هزینه این پایان نامه از محل اعتبار طرح تحقیقاتی مصوب شماره ۱۰۰۲۵۳۴ تأمین شده است و کلیه حقوق این پایان نامه برای معاونت پژوهشی دانشگاه علوم پزشکی اردبیل محفوظ است.

اظهار نامه اصالت پایان نامه

اینجانب فرزاد مهدویان دانشجوی کارشناسی ارشد رشته مهندسی بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی اردبیل نویسنده پایان نامه « کاربرد نانوکامپوزیت $GO-Fe_3O_4$ به همراه اولتراسونیک در حذف سفیکسیم از محلول های آبی: مطالعه ایزوترم و سینتیک » تحت راهنمایی دکتر مهدوی وثوقی متعهد میشوم:

تحقیقات در این پایان نامه توسط اینجانب انجام شده و از صحت و اصالت برخوردار است .

در استفاده از نتایج پژوهش های محققان دیگر به مرجع مورد استفاده استناد کرده ام .

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

در تمامی مراحل انجام این پایان نامه اصل رازداری و اصول اخلاق پژوهشی را رعایت نموده ام.

امضای دانشجو

تاریخ

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 می گردم حقوق معنوی تمام افرادی که در بدست آوردن نتایج اصلی پایان نامه تاثیر گذار بوده اند را در مقالات مستخرج از پایان نامه رعایت نمایم و در تمامی آن ها نام استاد راهنما به عنوان نویسنده مسئول و نیز نام استاد مشاور و نشانی الکترونیکی دانشگاهی آنان را قید نمایم

امضای دانشجو

تاریخ

تقدیم به خدایی که آفرید... .

جهان را، انسان را، عقل را، علم را،

معرفت را، عشق را... .

تقدیم به پدرم:

به او که نمی دانم از بزرگی اش بگویم یا مردانگی، سخاوت، سکوت، مهربانی و... .

پدرم راه تمام زندگیست... .

تقدیم به مادر دلسوز و مهربانم:

به او که آفتاب مهرش در آستانه قلبم، همچنان پابرجاست و هرگز غروب نخواهد کرد... .

به خودم تبریک می گویم که تو را دارم و دنیا با همه بزرگیش مثل تو را ندارد... .

تقدیم به همسر عزیزم و دخترم ترنم

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

تقدیر و سپاس

از جناب آقای دکتر مهدی وثوقی استاد راهنمایم

که در طی کردن این مسیر گام به گام دلسوزانه و با صبر و حوصله همراه بوده اند و بدون راهنمایی‌ها و کمک‌هایشان انجام این کار از عهده اینجانب خارج بود تشکر می‌نمایم.

با تقدیر و تشکر شایسته از استاد مشاور فرهیخته جناب آقای دکتر احمد مختاری که با نکته‌های دلاویز و گفته‌های بلند، صحیفه‌های سخن را علم پرور نمود و همواره راهنما و راه‌گشای نگارنده در اتمام و اکمال پایان نامه بوده است.

از اساتید محترم آقایان دکتر عالیقدری، دکتر صادقی، دکتر پورعشق، دکتر پرستار و از سایر اساتید و کارشناسان بزرگوار گروه مهندسی بهداشت محیط که همواره مرا در طول دوران تحصیل یاری نمودند بی‌نهایت قدردانم.

کاربرد نانوکامپوزیت $\text{GO-Fe}_3\text{O}_4$ به همراه اولتراسونیک در حذف سفیکسیم از محلول های آبی: مطالعه ایزوترم و سینتیک

چکیده

زمینه و هدف: آنتی بیوتیک ها از جمله سفیکسیم مواد دارویی هستند که به طور گسترده ای در پزشکی و دامپزشکی مورد استفاده قرار گرفته و از مسیرهای مختلفی مانند رواناب کشاورزی، تخلیه مستقیم از تصفیه خانه های فاضلاب شهری، مواد دفعی انسانی، دفع مستقیم زائدات پزشکی، دامپزشکی، صنعتی و غیره وارد محیط های آبی می شوند.

مواد و روش ها: این مطالعه با هدف بررسی قابلیت کاربرد نانوکامپوزیت $\text{GO-Fe}_3\text{O}_4$ به همراه اولتراسونیک در حذف سفیکسیم از محلول های آبی به روش سطح پاسخ به صورت تجربی و در مقیاس آزمایشگاهی صورت گرفت و تاثیر پارامترهای عملیاتی مهم از جمله pH محلول، غلظت نانوکامپوزیت، غلظت اولیه سفیکسیم و زمان واکنش در سه سطح (+1، 0 و -1) و با شدت ثابت امواج فراصوت به میزان 37 kHz مورد بررسی قرار گرفت. ساختار جاذب و مرفولوژی آن ها توسط تکنیک های FTIR، SEM، XRD، BET و VSM مورد بررسی قرار گرفت. ایزوترم (لانگمیر و فروندلیچ) و سینتیک جذب در غلظت های مختلف برای ارزیابی فرایند مورد بررسی قرار گرفت. بهینه سازی و آنالیز نتایج توسط نرم افزارهای 10 Design expert و Statgraphics انجام و باقی مانده سفیکسیم با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج 288 نانومتر مورد اندازه گیری قرار گرفت.

یافته ها: نتایج نشان داد که مدل درجه دوم برای داده ها مناسب بوده ($P_{\text{value}} < 0.0001$) و مدل پیشنهادی (Quadratic) با میزان بالای ضریب همبستگی ($R^2 = 0.9824$) و ($R^2_{\text{Adj}} = 0.9670$) تایید شد. در شرایط بهینه حاصل برای فرایند (pH = 3، نانوکامپوزیت 1g/L، غلظت اولیه سفیکسیم 10mg/L و زمان واکنش 90min) کارایی حذف مشاهده شده در حدود 100 درصد به دست آمد.

نتیجه گیری: مدل پیشنهادی ارائه شده توسط نرم افزار نشان داد که حذف سفیکسیم تحت تاثیر پارامترهای مختلفی از جمله غلظت نانوکامپوزیت، pH محلول، زمان واکنش و غلظت اولیه سفیکسیم است. این عوامل به علت افزایش تولید رادیکال های هیدروکسیل، ایجاد سطح مناسب جاذب و همچنین زمان مناسب واکنش با آلاینده، در افزایش کارایی فرایند موثر هستند. با توجه به نتایج حاصل، فرایند $\text{GO-Fe}_3\text{O}_4$ به همراه اولتراسونیک در تجزیه آنتی بیوتیک سفیکسیم و طرح باکس بنکن به عنوان یک ابزار مناسب برای بهینه سازی شرایط فرایند در حذف سفیکسیم تایید شد.

واژگان کلیدی: سفیکسیم، گرافن اکسید- نانوذرات Fe_3O_4 - اولتراسونیک، سطح - پاسخ

فهرست مطالب

صفحه	عنوان
	« فصل اول »
۱	کلیات و پیشینه تحقیق
۲	۱-۱. مقدمه
۳	۱-۲. بیان مسئله
۶	۳-۱. کیفیت آب و آلودگی آن
۶	۱-۳-۱. انواع آلاینده‌های آب
۶	۱-۳-۱-۱. آلاینده‌های متداول
۷	۱-۳-۱-۲. آلاینده‌های نوظهور در فاضلاب
۱۰	۲-۳-۱. ترکیبات دارویی
۱۱	۳-۳-۱. آنتی بیوتیک‌ها و خواص آن‌ها:
۱۲	۴-۳-۱. مکانیسم اثر آنتی بیوتیک‌ها (۶۱)
۱۲	۵-۳-۱. میزان مصرفی آنتی بیوتیک در جهان و ایران:
۱۲	۶-۳-۱. منابع ورود آنتی بیوتیک‌ها به آب
۱۳	۷-۳-۱. اثرات آنتی بیوتیک‌ها بر محیط‌زیست و انسان
۱۳	۱-۴. آنتی بیوتیک‌ها:
۱۴	۱-۵. سفالوسپورین‌ها
۱۴	۱-۶. آنتی بیوتیک سفیکسیم
۱۵	۱-۶-۱. ساختار شیمیایی سفیکسیم
۱۵	۱-۷. روش‌های حذف آنتی بیوتیک‌ها
۱۵	۱-۷-۱. روشهای بیولوژیکی
۱۶	۲-۷-۱. فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته
۱۷	۳-۷-۱. روشهای فیزیکی-شیمیایی از جمله جذب سطحی و فرآیندهای غشایی
۱۷	۱-۳-۷-۱. فرآیندهای غشایی
۱۸	۲-۳-۷-۱. جذب سطحی
۱۸	۴-۷-۱. مکانیسم‌های فرایند جذب
۱۹	۱-۸. عوامل مؤثر بر تعادل جذب

- ۱۹-۸-۱. خصوصیات جاذب ۱۹
- ۲۰-۸-۱. خصوصیات ماده جذب‌شونده: ۲۰
- ۲۰-۸-۱. pH ۲۰
- ۲۰-۸-۱. دما ۲۰
- ۲۰-۸-۱. سرعت به هم زدن ۲۰
- ۲۱-۸-۱. زمان تماس ۲۱
- ۲۱-۸-۱. سطح جاذب ۲۱
- ۲۱-۹. تعادل و ایزوترم جذب ۲۱
- ۲۲-۹-۱. مدل ایزوترم لانگمویر ۲۲
- ۲۳-۹-۱. مدل ایزوترم فروندلیچ ۲۳
- ۲۳-۱۰. سینتیک جذب و مدلسازی آن ۲۳
- ۲۳-۱۰-۱. سینتیک شبه درجه اول ۲۳
- ۲۴-۱۰-۱. سینتیک شبه درجه دوم ۲۴
- ۲۴-۱۱. استفاده از مدل آماری ۲۴
- ۲۴-۱۱-۱. طرح آزمایش ۲۴
- ۲۵-۱۱-۱. مدل آماری رویه پاسخ (RSM) ۲۵
- ۲۶-۱۱-۱. بهینه سازی فرایند ۲۶
- ۲۷-۱۲. بررسی متون ۲۷
- ۲۷-۱۲-۱. مبانی نظری ۲۷
- ۲۷-۱۲-۱. مطالعات جهان ۲۷
- ۳۰-۱۲-۱. مطالعات انجام گرفته در ایران ۳۰
- ۳۲-۱۳. اهداف و فرضیات ۳۲
- ۳۲-۱۳-۱. هدف کلی ۳۲
- ۳۲-۱۳-۱. اهداف ویژه: ۳۲
- ۳۲-۱۳-۱. اهداف کاربردی: ۳۲
- ۳۲-۱۳-۱. فرضیات یا سؤالات تحقیق: ۳۲

فصل دوم

مواد و روشها.....	۳۳
۲-۱. مقدمه	۳۴
۲-۲. طرح کلی تحقیق	۳۴
۱-۲-۲. بررسی منابع علمی و تدوین متغیرها	۳۴
۲-۲-۲. جامعه مورد مطالعه، نمونه‌گیری و حجم نمونه	۳۴
۳-۲-۲. روش گردآوری اطلاعات	۳۵
۲-۳. مشخصات سیستم‌های آزمایشی مورداستفاده در این پژوهش	۳۶
۲-۴. داروی آنتی‌بیوتیک سفکسیم	۳۶
۲-۵. روش انجام آزمایشات	۳۷
۱-۵-۲. مواد و معرف‌های مورد نیاز	۳۷
۲-۵-۲. تهیه گرافن اکساید	۳۷
۳-۵-۲. سنتز نانو ذرات Fe_3O_4	۳۷
۴-۵-۲. بار گذاری نانوذرات Fe_3O_4 بر روی گرافن اکساید	۳۷
۵-۵-۲. آماده‌سازی نمونه	۳۸
۶-۲. تعیین مشخصات جاذب مورداستفاده	۳۹
۲-۶-۱. آنالیز طیف FTIR	۳۹
۲-۶-۲. آنالیز SEM	۳۹
۲-۶-۳. آنالیز VSM	۳۹
۲-۶-۴. آنالیز XRD	۳۹
۲-۶-۵. آنالیز BET	۴۰
۲-۷. متغیرهای پژوهش	۴۰
۲-۸. آزمایشات مربوط به فرایند جذب	۴۰
۱-۸-۲. اندازه‌گیری غلظت سفکسیم	۴۰
۲-۸-۲. رسم منحنی کالیبراسیون دستگاه اسپکتروفتومتر	۴۲
۳-۸-۲. روش تجزیه و تحلیل داده‌ها	۴۲
۴-۸-۲. تعیین مدل‌های سینتیک و ایزوترم جذب	۴۳

فصل سوم

۴۵	یافته‌ها
۴۶	۳-۱. مقدمه
۴۶	۳-۲. مشخصات جاذب
۴۶	۳-۲-۱. نتایج آنالیز FTIR
۴۷	۳-۲-۲. نتایج آنالیز SEM
۴۸	۳-۲-۳. نتایج آنالیز XRD
۴۹	۳-۲-۴. نتایج آنالیز BET
۵۰	۳-۲-۵. نتایج آنالیز VSM
۵۲	۳-۲-۶. تجزیه و تحلیل آماری Box-Benken
۵۷	۳-۴. تأثیر pH اولیه محلول بر کارایی فرایند جذب
۵۷	۳-۵. تأثیر مقدار جاذب بر میزان جذب سفکسیم
۵۷	۳-۶. تأثیر غلظت اولیه سفکسیم بر کارایی جذب
۵۸	۳-۷. بررسی سینتیک واکنش حذف سفکسیم
۶۰	۳-۸. بررسی ایزوترم واکنش حذف سفکسیم

فصل چهارم

۶۲	بحث و نتیجه‌گیری
۶۳	۴-۱. بررسی خصوصیات فیزیکی و شیمیایی جاذب
۶۵	۴-۳. اثر pH محلول و مکانیسم جذب
۶۶	۴-۴. تأثیر مقدار نانوکامپوزیت $GO-Fe_3O_4$
۶۷	۴-۵. تأثیر غلظت اولیه بر راندمان حذف
۶۸	۴-۶. سینتیک در مطالعه جذب
۶۹	۴-۷. ایزوترم و مکانیسم جذب
۶۹	۴-۸. نتیجه‌گیری
۷۰	۴-۹. پیشنهادات
۷۱	فهرست منابع و مأخذ

لیست علائم اختصاری

توضیحات	علامت اختصاری	ردیف
Cefixime	CEX	۱
Osmosis Reverse	RO	۲
Nanofiltration	NF	
Ultrafiltration	UF	
Chemical oxygen demand	COD	۳
Hydraulic retention time	HRT	۴
Hydroxyl ions	OH⁻	۵
Advanced Oxidation Processes	AOP_s	۶
Powdered Activated carbon	PAC	۷
Granular Activated carbon	GAC	۸
Sulfuric Acid	H₂SO₄	۹
potential of Hydrogen	pH	۱۰
pH point of zero charge	pH_{zpc}	۱۱
Initial Concentration of CEX	C_o	۱۲
Concentration of CEX at reaction time	C_t	۱۳
Fourier Transform Infrared Spectroscopy	FTIR	۱۴
Acid dissociation constant	pK_a	۱۵
Scanning Electron Microscopy	SEM	۱۶

فهرست جداول

عنوان	صفحه
جدول ۱-۱. مشخصات سفکسیم.....	۱۵
جدول ۱-۲. اطلاعات مربوط به سطوح و دامنه ی متغیر های مورد مطالعه.....	۳۵
جدول ۲-۲. دستگاه های مورد استفاده در تحقیق.....	۳۶
جدول ۳-۲. خصوصیات ماده دارویی سفکسیم.....	۳۶
جدول ۴-۲. متغیرهای اندازه گیری شده.....	۴۰
جدول ۵-۲. مدل های سینتیک و ایزوترم جذب مورد مطالعه.....	۴۳
جدول ۶-۲. پارامترهای موجود در مدلها.....	۴۴
جدول ۱-۳. مساحت سطح (SBET)، کل حجم منافذ (VP) و میانگین عرض منافذ (L).....	۵۰
جدول ۲-۳. آنالیز واریانس پارامترهای عملیاتی در حذف سفکسیم.....	۵۳
جدول ۳-۳. مقادیر بهینه پارامترهای موثر در فرآیند حذف سفکسیم.....	۵۶
جدول ۴-۳. پارامترهای سینتیکی شبه درجه اول و شبه درجه دوم برای جذب سفکسیم.....	۵۹
جدول ۵-۳. پارامترهای مربوط به ایزوترمهای جذب سطحی سفکسیم بر روی جاذب.....	۶۱

فهرست اشکال

عنوان	صفحه
شکل ۱-۱. شمایی از چرخه حضور آلاینده‌های دارویی در محیط‌های آبی	۱۰
شکل ۲-۱. حلقه بتالاکتام	۱۴
شکل ۳-۱. مراحل جذب سطحی در سطوح جاذب	۱۹
شکل ۱-۲. شماتیک راکتور مورد استفاده	۳۵
شکل ۲-۲. دستگاه اسپکتروفتومتری	۴۱
شکل ۱-۳. تصاویر میکروسکوپ الکترونی رویی (SEM)	۴۸
شکل ۲-۳. آنالیز VSM برای نانوذرات Fe_3O_4 و کامپوزیت $Fe_3O_4@GO$	۵۱
شکل ۳-۳. ترسیم توزیعی داده‌های آزمایش شده در مقابل مقادیر پیش بینی شده توسط مدل	۵۵
شکل ۴-۳. تاثیر پارامترهای اولیه در نظر گرفته شده و نقاط بهینه آنها	۵۵
شکل ۵-۳. نمودار پارتو برای بررسی میزان و نحوه اثر فاکتورها بر راندمان حذف (R)	۵۶
شکل ۶-۳. کارایی حذف سفیکسیم به عنوان تابعی از pH (a)، تابعی از غلظت نانوکامپوزیت (b)، تابعی از زمان واکنش و غلظت اولیه سفیکسیم (c)	۵۸

فهرست نمودار

عنوان	صفحه
نمودار ۱-۲. منحنی کالیبراسیون دستگاه اسپکتروفتومتر جهت سنجش سفیکسیم	۴۲
نمودار ۱-۳. طیف‌سنجی FTIR کامپوزیت $Fe_3O_4@GO$	۴۶
نمودار ۲-۳: الگوی پراش پرتو ایکس از گرافن اکسید (GO)، نانوذرات Fe_3O_4 ، کامپوزیت $Fe_3O_4@GO$	۴۹
نمودار ۴-۳. بررسی تطابق مدل لانگمویر (الف) و مدل فروندلیچ (ب)	۶۱