DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412 Published by Vesnu Publications

بررسی حذف فتوکاتالیستی آموکسی‌سیلین از محیط آبی با استفاده از Bi_2O_3-TiO_2

علی اسرافیلی[۱]، مریم سلیمی[۲]، احمد جنیدی جعفری[۳]، روشنک رضایی کلانتری[۳]

مقاله پژوهشی

چکیده

مقدمه: ورود پیوسته آنتی‌بیوتیک‌ها از جمله آموکسی‌سیلین به محیط زیست، باعث ایجاد مخاطرات بهداشتی بالقوه به ویژه ایجاد مقاومت در میکروارگانیسم‌های بیماری‌زا خواهد شد. در سال‌های اخیر، تلاش‌های فروانی توسط محققان برای توسعه روش‌هایی که منجر به تخریب آنتی‌بیوتیک‌ها شود، صورت گرفته است که از آن جمله می‌توان به فرایندهای فتوکاتالیستی بر پایه TiO_2 اشاره نمود. پژوهش حاضر با هدف بررسی کارایی کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2 در حذف آموکسی‌سیلین از محیط‌های آبی انجام گردید.

روش‌ها: در این مطالعه بنیادی- کاربردی، ابتدا کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2 به روش هیدروترمال سنتز شد. جهت تعیین مشخصات نانوکامپوزیت، از آزمایش‌های میکروسکوپ الکترونی روبشی (Scanning electron microscope یا SEM)، طیف‌سنجی پراش انرژی پرتوی X (Energy-dispersive X-ray spectroscopy یا EDX) و طیف‌سنجی بازتابشی انتشاری (Diffuse reflectance spectroscopy یا DRS) استفاده گردید. سپس تأثیر شاخص‌هایی مانند مقدار بیسموت در ترکیب Bi_2O_3-TiO_2، مقدار pH (۳ تا ۱۱)، غلظت اولیه آموکسی‌سیلین (۱۰، ۱۵ و ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر) و میزان معدنی‌سازی مورد بررسی قرار گرفت.

یافته‌ها: کاتالیست BT5، راندمان تخریب فتوکاتالیستی بیشتری را برای آموکسی‌سیلین نشان داد. میزان pH و غلظت آموکسی‌سیلین بهینه در این فرایند به ترتیب ۱۱ و ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر تعیین گردید. حداکثر کارایی فرایند در شرایط بهینه پس از زمان تماس ۱۲۰ دقیقه، ۸۵ درصد به دست آمد.

نتیجه‌گیری: فرایند فتوکاتالیستی بر پایه کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2 نسبت به TiO_2، روش مؤثری جهت حذف آموکسی‌سیلین از محیط آبی می‌باشد ($P < ۰/۰۵$) و کاربرد Bi_2O_3 به طور مؤثری فعالیت فتوکاتالیستی TiO_2 را در نور مرئی افزایش می‌دهد.

واژه‌های کلیدی: آموکسی‌سیلین، فرایند فتوکاتالیستی، دی‌اکسید تیتانیوم، بیسموت، نور مرئی

ارجاع: اسرافیلی علی، سلیمی مریم، جنیدی جعفری احمد، رضایی کلانتری روشنک. **بررسی حذف فتوکاتالیستی آموکسی‌سیلین از محیط آبی با استفاده از Bi_2O_3-TiO_2.** مجله تحقیقات نظام سلامت ۱۳۹۷؛ ۱۴ (۳): ۳۷۶-۳۶۹

دریافت مقاله: ۱۳۹۷/۱/۳۰ پذیرش مقاله: ۱۳۹۷/۵/۲ تاریخ چاپ: ۱۳۹۷/۷/۱۵

مقدمه

بر اساس برآوردهای صورت گرفته، هم‌اکنون میلیون‌ها نفر در سراسر جهان فاقد دسترسی به منابع آب سالم و بهداشتی هستند. در نتیجه، می‌توان گفت که تأمین آب آشامیدنی سالم و بهداشتی، یکی از بزرگ‌ترین چالش‌های قرن اخیر محسوب می‌شود (۱). از جمله مهم‌ترین عوامل ایجادکننده بحران کمبود آب در جهان می‌توان به رشد جمعیت، کاهش دسترسی به منابع آب، گسترش صنایع، تغییرات آب و هوایی، کاهش میزان بارش و آلودگی منابع آبی مانند رودخانه‌ها، دریاچه‌ها و منابع آب زیرزمینی توسط تخلیه پساب‌های آلوده شهری و صنعتی اشاره کرد (۲). توزیع نامتوازن منابع آب شیرین قابل دسترس مورد نیاز جمعیت جهان، موجب شده است که در برخی از مناطق کره زمین مانند منطقه خاورمیانه و مناطق شمال آفریقا، سهم آب مورد نیاز بیش از منابع آب در دسترس باشد. این مناطق خشک‌ترین مناطق کره زمین می‌باشند و تنها ۱ درصد از منابع آب شیرین جهان در این مناطق قرار دارد (۳). بنابراین، حذف آلاینده‌های مختلف از محیط‌های آبی و حفاظت از منابع آب موجود به عنوان سرمایه ارزشمندی جهت حفظ حیات انسان‌ها و در مجموع، حفظ حیات کره زمین، از اهمیت فوق‌العاده‌ای برخوردار است.

استفاده بی‌رویه از آنتی‌بیوتیک‌ها و تخلیه آن‌ها به محیط، منجر به افزایش نگرانی در ارتباط با سلامت انسان و اکوسیستم در سراسر جهان شده است. ترکیبات آنتی‌بیوتیک پس از مصرف، در بدن انسان متابولیزه و قسمتی از آن بدون تغییر از بدن دفع می‌گردد. همچنین، متابولیت‌ها و محصولات حاصل از تجزیه آن‌ها بعد از دفع از بدن انسان، وارد سیستم‌های جمع‌آوری پساب و سپس تصفیه‌خانه‌های فاضلاب می‌شود (۴). از جمله مشکلات بهداشتی وجود آنتی‌بیوتیک‌ها مانند آموکسی‌سیلین در محیط زیست به ویژه در منابع تأمین‌کننده آب، ایجاد مقاومت آنتی‌بیوتیکی در گونه‌های مهم باکتری‌های بیماری‌زا و سایر موجودات زنده دریافت‌کننده آن است. در این راستا، طی سال‌های اخیر، دبیر کل سازمان بهداشت جهانی (World Health Organization یا WHO)، با هشدارهای پیاپی، مقاومت آنتی‌بیوتیکی را یک بحران جهانی معرفی کرده است (۵). همچنین، بر اساس گزارش‌های دولت انگلستان، بدون انجام اقدامات جدی در

۱- دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران
۲- دانشجوی دکتری، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران
۳- استاد، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران
نویسنده مسؤول: مریم سلیمی Email: m_salimi97@yahoo.com

[Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.3.15.9]
[DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412]

برابر بحران مقاومت آنتی‌بیوتیکی، دولت‌ها متحمل هزینه‌های بسیار زیادی جهت جبران خسارت حاصل از آن تا سال ۲۰۵۰ خواهند شد (۶).

چالش اصلی فرایندهای تصفیه متداول فاضلاب، عدم کارایی مناسب جهت حذف ترکیبات دارویی است. در نتیجه، این آلاینده‌ها وارد آب‌های دریافت‌کننده پساب تصفیه‌خانه مانند رودخانه‌ها، دریاچه‌ها و آب‌های زیرزمینی به ویژه در کاربردهای استفاده مجدد از پساب می‌شود و موجب آلودگی آن‌ها خواهد گردید (۷). از معایب اصلی فرایندهای تصفیه بر پایه فرایندهای انتقال جرم از جمله کربن فعال و اسمز معکوس جهت حذف آلاینده‌های آلی مختلف به ویژه آنتی‌بیوتیک، عدم تخریب آلاینده می‌باشد (۸). در مقابل، فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته (Advanced oxidation process یا AOP) معرفی شده است که راندمان بسیار بالایی در تخریب آلاینده‌های مقاوم موجود در پساب به علت تولید رادیکال‌های مختلف از جمله هیدروکسل، سوپراکسید و حفره دارد (۹).

از میان فرایندهای AOP در سال‌های اخیر، فرایند فتوکاتالیستی بر پایه دی‌اکسید تیتانیوم (TiO_2) به علت هزینه پایین، عدم سمیت و توانایی تخریب آلاینده، بسیار مورد توجه قرار گرفته است (۱۰). در این زمینه، فرزادکیا و همکاران به بررسی حذف فتوکاتالیستی مترونیدازول با استفاده از نانوذات TiO_2 فعال شده در نور فرابنفش (Ultraviolet یا UV) پرداختند (۱۱). در طی فرایند فتوکاتالیستی TiO_2، فوتون‌ها طیف نور UV را جذب می‌کنند و رادیکال‌های مختلفی را که توانایی اکسیداسیون بسیار بالایی دارد، تولید می‌نمایند. هنگامی که TiO_2 فوتون انرژی برابر یا بیشتر از باند گپ خود (۳/۲ ولت الکترون) دریافت می‌کند، یک الکترون (e^-) از باند ظرفیت به باند هدایت منتقل می‌شود که در نتیجه این انتقال الکترون، یک حفره (h^+) یا فضای خالی در باند ظرفیت ایجاد می‌شود. با جداسازی بار الکتریکی، e^- و h^+ بر روی سطح کاتالیست منتقل می‌گردد و در واکنش‌های اکسیداسیون و احیای بعدی شرکت خواهد کرد. h^+ که بار مثبت دارد، از طریق اکسید کردن آلاینده‌های آلی و یا آب، قادر به تولید رادیکال هیدروکسیل می‌باشد. همچنین، الکترون توسط اکسیژن (O_2) به دام انداخته می‌شود و در نتیجه، رادیکال سوپراکسید (O_2^-) تولید می‌گردد (۱۲). با این وجود، استفاده از TiO_2 دارای محدودیت‌هایی است که از آن جمله می‌توان به بالا بودن انرژی باند گپ آن اشاره کرد که فعالیت فتوکاتالیستی آن را در نور مرئی محدود می‌سازد. در نتیجه، TiO_2 برای فعال شدن و تولید رادیکال‌های مختلف، به طول‌موج‌های کمتر از ۴۰۰ نانومتر نیازمند است، اما تنها ۵ درصد از نور خورشید که به زمین می‌رسد در این ناحیه قرار دارد (۱۳).

در سال‌های اخیر تلاش‌های زیادی جهت افزایش پاسخ TiO_2 به نور مرئی صورت گرفته است که می‌توان دوپه کردن TiO_2 با فلزات نجیب، فلزات واسطه و همچنین، با عناصری از جمله بیسموت (Bi) را نام برد (۱۵، ۱۴). در مقایسه با دی‌اکسید تیتانیوم، اکسید بیسموت (Bi_2O_3) یک نیمه رسانا با باند گپ کوتاه است (۲/۸ ولت الکترون) که فعالیت فتوکاتالیستی آن را جهت تخریب آلاینده‌ها در نور مرئی امکان‌پذیر می‌سازد (۱۶). با این وجود، به علت این که الکترون‌های باند هدایت پتانسیل لازم جهت به دام‌اندازی مولکول‌های اکسیژن سطحی را ندارند (۰/۳۳- الکترون ولت/ الکترود هیدروژن نرمال = O_2/O_2)، ترکیب مجدد جفت الکترون– حفره (e^-/h^+) در آن به سرعت انجام می‌شود و در نهایت، کارایی فتوکاتالیستی آن کاهش می‌یابد (۱۷).

در سال‌های اخیر توجه زیادی به کاربرد همزمان چند کاتالیست به منظور افزایش فعالیت فتوکاتالیستی از طریق جلوگیری از ترکیب مجدد جفت الکترون– حفره (e^-/h^+) و افزایش طول عمر حامل‌های بار (e^- و h^+) معطوف شده است (۱۸). در مطالعه حاضر، کارایی حذف فتوکاتالیستی آنتی‌بیوتیک آموکسی‌سیلین با استفاده از کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2 سنتز شده به روش هیدروترمال مورد بررسی قرار گرفت و جهت تعیین مشخصات ساختار مذکور، از آنالیزهای میکروسکوپ الکترونی روبشی (Scanning electron microscope یا SEM)، طیف‌سنجی پراش انرژی پرتوی X (Energy-dispersive X-ray spectroscopy یا EDX) و طیف‌سنجی بازتابشی انتشاری (Diffuse reflectance spectroscopy یا DRS) استفاده گردید. تأثیر شاخص‌هایی مانند مقدار Bi_2O_3 در ترکیب کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2، pH، غلظت اولیه آموکسی‌سیلین(۱۰ تا ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر) و میزان معدنی‌سازی نیز بررسی گردید.

روش‌ها

کلیه مواد شیمیایی مورد استفاده در این آزمایش از شرکت Merck (آلمان) تهیه شد و تمام آن‌ها با خلوص بالا مورد استفاده قرار گرفت.

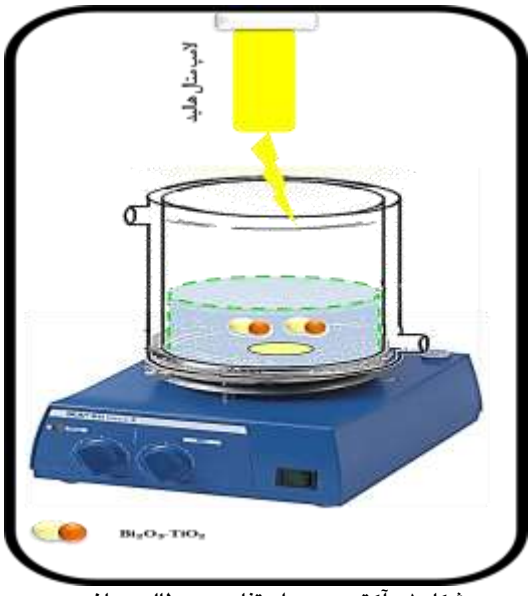
سنتز کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2: به منظور آماده‌سازی کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2، از روش Yang و همکاران استفاده گردید (۱۹). ابتدا مقدار معینی از نیترات بیسموت ($Bi(NO_3)_5.5H_2O$)، ۱۰ میلی‌لیتر آب دیونیزه و ۲ میلی‌لیتر اسید نیتریک ۶۷ درصد با ۴۰ میلی‌لیتر اتانول جهت تهیه محلول الف ترکیب گردید. هم‌زمان، ۱۰ میلی‌لیتر تیتانیوم بوتوکساید و ۱۰ میلی‌لیتر اتانول با استفاده از همزن مغناطیسی در دمای اتاق به منظور تهیه محلول ب مخلوط شد. در مرحله بعد، محلول ب به محلول الف تحت شرایط اختلاط شدید با همزن مغناطیسی اضافه گردید. مخلوط به دست آمده به مدت ۱۲ ساعت در اتوکلاو ۱۰۰ میلی‌لیتر از جنس استیل ضد زنگ در دمای ۱۴۰ درجه سانتی‌گراد حرارت داده شد. پس از خنک کردن در دمای اتاق، کاتالیست تهیه شده به وسیله فیلتراسیون جمع‌آوری گردید و چندین بار با آب دیونیزه شسته شد. سپس به مدت ۱۲ ساعت در دمای ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد خشک گردید و به مدت ۲ ساعت در کوره با دمای ۵۰۰ درجه سانتی‌گراد قرار گرفت. جهت مقایسه، TiO_2 در شرایط مشابه بدون افزودن نیترات بیسموت و Bi_2O_3 نیز بدون افزودن تیتانیوم بوتوکساید تهیه گردید. همچنین، سایر کاتالیست‌های سنتز شده بر حسب درصد مولی Bi_2O_3 به TiO_2 نامگذاری گردید (BT1، BT2 و BT5). در نهایت، خصوصیات کاتالیست سنتز شده با آنالیزهای SEM، DRS و EDX مورد بررسی قرار گرفت.

تعیین خصوصیات کاتالیست سنتز شده: در پژوهش حاضر، مورفولوژی کاتالیست‌های سنتز شده با استفاده از SEM و نوع و درصد عناصر تشکیل دهنده با کمک آنالیز EDX بررسی گردید. از DRS نوع Ultraviolet-Visible (UV–Vis) جهت تعیین دامنه پاسخ کاتالیست‌های سنتز شده به نور Vis و UV با استفاده از $BaSO_4$ به عنوان مرجع استفاده شد.

مشخصات راکتور: راکتور مورد استفاده در تحقیق حاضر از دو قسمت تشکیل شده است. محفظه واکنش با حجم مفید ۴۰۰ میلی‌لیتر که تمام مراحل فرایند فتوکاتالیستی در آن انجام می‌شود و محفظه ثانویه که محفظه اصلی را در برمی‌گرفت و دارای حجم مفید حدود ۶۰۰ میلی‌لیتر بود که هدف از آن، ثابت نگهداشتن دما در محفظه واکنش می‌باشد و آب در آن به طور مداوم جریان داشت. نور مرئی از طریق لامپ هالوژن‌دار تأمین گردید. اختلاط در راکتور با

[Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.3.15.9]
[DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412]

استفاده از همزن مغناطیسی و مگنت صورت گرفت. نمونه‌برداری در زمان‌های مختلف انجام و روند حذف آموکسی‌سیلین در این راکتور بررسی شد. راکتور ساخته شده و مورد استفاده در مطالعه در شکل ۱ نشان داده شده است.



شکل ۱. راکتور مورد استفاده در مطالعه حاضر

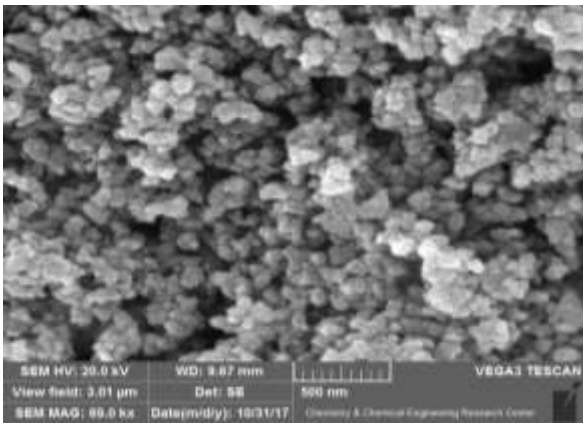
آزمایش‌های فتوکاتالیستی: آزمایش تجزیه فتوکاتالیستی در ادامه آمده است. ۰/۵ گرم در لیتر کاتالیست به محلول حاوی ۱۵ میلی‌گرم بر لیتر آموکسی‌سیلین اضافه گردید و سوسپانسیون تهیه شده برای دستیابی به تعادل جذب- واجذب، قبل از قرار گرفتن تحت تابش نور مرئی، به مدت ۳۰ دقیقه در تاریکی تحت اختلاط مغناطیسی قرار گرفت. هوا به طور مداوم با سرعت ۲ لیتر در دقیقه وارد راکتور شد. زمان تماس در این فرایند، ۱۲۰ دقیقه بود. قبل از روشن کردن لامپ متال هالید، غلظت سوسپانسیون متعادل شده مورد آنالیز قرار گرفت و مقدار آن به عنوان غلظت اولیه متعادل شده تعیین گردید. سوسپانسیون آبی (۵ میلی‌لیتر) به صورت دوره‌ای جمع‌آوری و در نهایت، نمونه با استفاده از دستگاه کروماتوگرافی مایع با عملکرد بالا (High-performance liquid chromatography یا HPLC) قرائت شد. لازم به ذکر است که پس از انتخاب کاتالیست بهینه، pH محلول و غلظت آنتی‌بیوتیک نیز بهینه گردید.

داده‌های به دست آمده با استفاده از آزمون Independent t مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت.

روش آنالیز نمونه‌ها: جهت اندازه‌گیری غلظت آنتی‌بیوتیک در پژوهش حاضر، از دستگاه HPLC (مدل CE4100، شرکت Cecil، انگلستان) دارای ستون Hichrom (مدل HI-5C18-4371، شرکت Hichrom، آلمان) با طول ۲۰۰ میلی‌متر، عرض ۴/۶ میلی‌متر و قطر ۵ میکرومتر و مجهز به آشکارساز UV-Vis (مدل CE4200، شرکت Cecil، انگلستان) در طول موج ۲۳۰ نانومتر استفاده شد. فاز متحرک A (بافر فسفات پتاسیم ۰/۰۲۵ مولار) و B (متانول) با نسبت حجمی ۶۰:۴۰ و دبی دستگاه ۱ میلی‌لیتر در دقیقه و دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد تنظیم گردید. حجم تزریق نمونه، ۲۰ میکرولیتر بود.

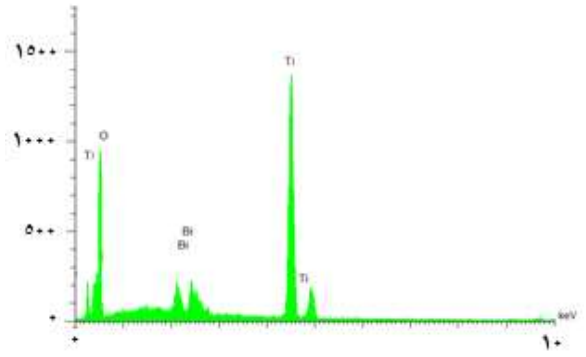
یافته‌ها

خصوصیات نانوکامپوزیت سنتز شده Bi_2O_3-TiO_2: اسکن SEM برای بررسی مورفولوژی کاتالیست سنتز شده Bi_2O_3-TiO_2 مورد استفاده قرار گرفت. توزیع Bi_2O_3 بر روی TiO_2 در شکل ۲ نشان داده شده است.



شکل ۲. نمای Scanning electron microscope (SEM) از کاتالیست BT5 با بزرگنمایی ۵۰۰ نانومتر

جهت بررسی بیشتر و به منظور بررسی نوع و درصد عناصر تشکیل دهنده، آنالیز EDX نیز بر روی کاتالیست سنتز شده انجام گرفت. شکل ۳ نشان می‌دهد که کاتالیست سنتز شده BT5 مورد بررسی از عناصر Bi، O و Ti تشکیل شده است.



شکل ۳. نمای آنالیز Energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDX) از کاتالیست BT5 با مقدار بیسموت ۵ درصد وزنی

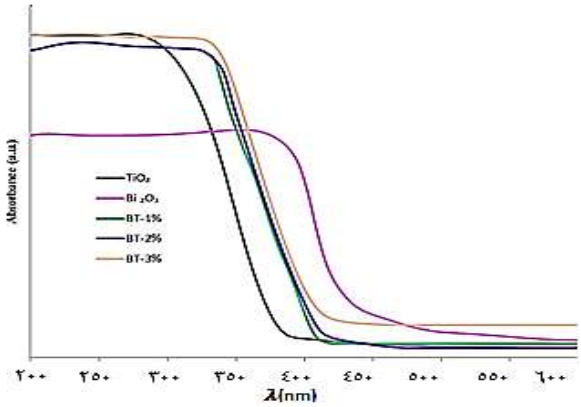
DRS/از نوع UV–Vis: DRS از نوع UV–Vis حاصل از TiO_2 خالص، BT یک درصد، BT دو درصد و BT5 در شکل ۴ نشان داده شده است. بر اساس شکل ۴، جذب TiO_2 در ناحیه نور مرئی قابل اغماض می‌باشد. همچنین، تمام کاتالیست‌های سنتز شده Bi_2O_3-TiO_2 پاسخ اپتیکی واضحی را در ناحیه نور مرئی نشان دادند. افزایش مقدار Bi_2O_3، تأثیر قابل توجهی بر جذب نور مرئی داشت و باعث تغییر در منحنی DRS به سمت ناحیه نور مرئی شد.

[Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.3.15.9]
[DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412]

انرژی باند گپ (E_{bg}) کاتالیست‌های مورد بررسی با استفاده از رابطه ۱ محاسبه گردید (۲۰).

$$E_{bg} = ۱۲۴۰/\lambda_{max} \quad \text{رابطه ۱}$$

انرژی باند گپ کاتالیست‌های TiO_2 خالص، BT1، BT2 و BT5 به ترتیب ۳/۲۰، ۲/۸۰، ۲/۹۸، ۲/۹۴، و ۲/۸۹ الکترون ولت به دست آمد. یافته‌های حاصل از تحقیق حاضر مشخص نمود که با افزایش مقدار Bi_2O_3، انرژی باند گپ در کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2 کاهش و فعالیت فتوکاتالیستی افزایش یافت.



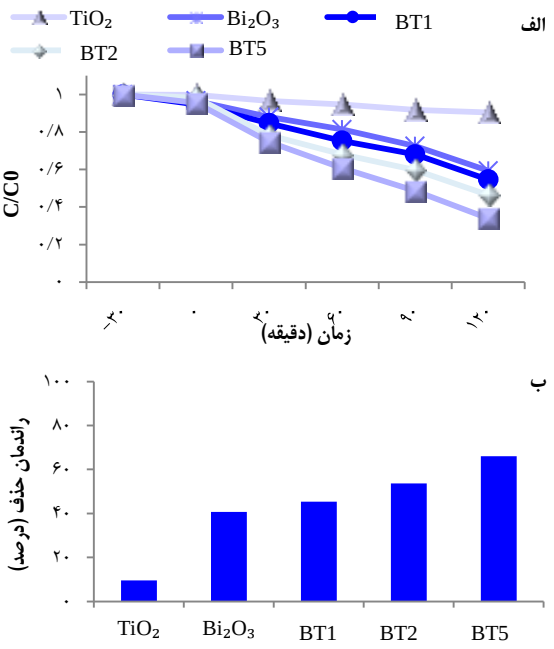
شکل ۴. طیف‌سنجی Diffuse reflectance spectroscopy (DRS) از نوع Ultraviolet-Visible (UV–Vis)

بررسی تأثیر کاتالیست‌های سنتز شده در حذف آموکسی‌سیلین:

به منظور بررسی تأثیر کاتالیست‌های سنتز شده بر راندمان حذف آموکسی‌سیلین تحت تابش نور مرئی، فعالیت فتوکاتالیستی TiO_2، Bi_2O_3، BT1، BT2 و BT5 در pH = ۷ و غلظت آموکسی‌سیلین ۱۵ میلی‌گرم بر لیتر و مقدار کاتالیست ۰/۵ میلی‌گرم بر لیتر مورد ارزیابی قرار گرفت (شکل ۵، قسمت‌های الف و ب). این یافته‌ها نشان داد که بیشترین کارایی حذف آموکسی‌سیلین در زمان تماس ۱۲۰ دقیقه به میزان ۶۶ درصد توسط کاتالیست BT5 حاصل گردید. در نتیجه، مقدار بهینه Bi_2O_3 در کاتالیست‌های سنتز شده، ۵ درصد می‌باشد و بر اساس این نتایج، کاتالیست BT5 به عنوان کاتالیست بهینه انتخاب گردید و در مراحل بعدی آزمایش‌ها مورد استفاده قرار گرفت.

بررسی تأثیر pH بر کارایی حذف آموکسی‌سیلین:

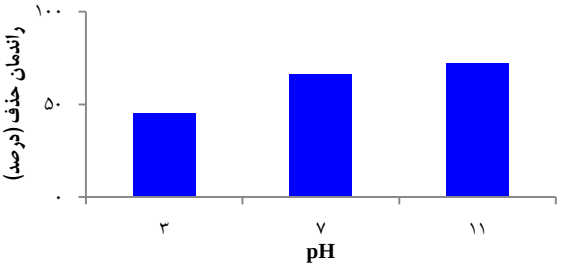
در مطالعه حاضر به منظور بررسی تأثیر pH بر کارایی فرایند فتوکاتالیستی جهت حذف آموکسی‌سیلین، pH در دامنه ۳، ۷ و ۱۱ در غلظت اولیه ۱۵ میلی‌گرم بر لیتر آموکسی‌سیلین و در حضور کاتالیست BT5 موردبررسی قرار گرفت. تغییرات راندمان حذف آموکسی‌سیلین به‌عنوان تابعی از pH محلول در شکل ۶ نشان داده شده است. بر اساس یافته‌های به دست آمده، بیشترین راندمان حذف آموکسی‌سیلین در pH = ۱۱ حاصل گردید. با توجه به نتایج به دست آمده در pH = ۱۱ و پس از زمان تماس ۱۲۰ دقیقه، راندمان حذف آموکسی‌سیلین به ۷۲/۱۲ درصد رسید.



شکل ۵. تأثیر کاتالیست های سنتز شده TiO_2، Bi_2O_3، BT1، BT2 و BT5 بر کارایی فرایند حذف آموکسی‌سیلین در نور مرئی (الف) و تأثیر کاتالیست‌های سنتز شده TiO_2، Bi_2O_3، BT1، BT2 و BT5 بر راندمان حذف آموکسی‌سیلین در نور مرئی (pH = ۷، غلظت آموکسی‌سیلین ۱۵ میلی‌گرم بر لیتر و دوز کاتالیست ۰/۵ گرم بر لیتر)

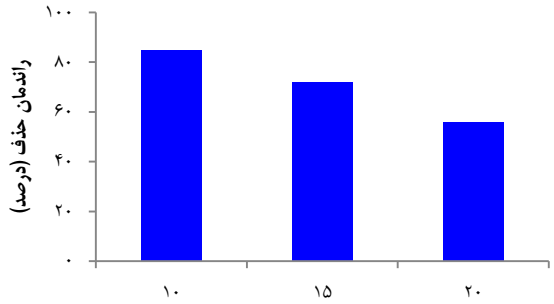
بررسی تأثیر غلظت اولیه آموکسی‌سیلین بر کارایی حذف آن:

تغییر کارایی حذف با تغییر در غلظت آموکسی‌سیلین (۱۰، ۱۵ و ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر) در pH بهینه ۱۱ و در حضور کاتالیست BT5 با زمان تماس ۱۲۰ دقیقه مورد بررسی قرار گرفت. شکل ۷ یافته‌های حاصل از تأثیر غلظت اولیه آموکسی‌سیلین بر کارایی کاتالیست در حذف آموکسی‌سیلین را نشان می‌دهد. بر این اساس، بیشترین میزان حذف آموکسی‌سیلین در غلظت ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر حاصل گردید.



شکل ۶. تجزیه آموکسی‌سیلین در pHهای اولیه مختلف (۳، ۷ و ۱۱) در فرایند حذف فتوکاتالیستی در نور مرئی (غلظت آموکسی‌سیلین ۱۵ میلی‌گرم بر لیتر، زمان تماس ۱۲۰ دقیقه و در حضور کاتالیست BT5)

[Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.3.15.9]
[DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412]
http://hsr.mui.ac.ir



شکل ۷. تأثیر غلظت اولیه آموکسی‌سیلین بر راندمان حذف آن در نور مرئی (pH = ۱۱، زمان تماس ۱۲۰ دقیقه و در حضور کاتالیست BT5)

بررسی میزان معدنی‌سازی آموکسی‌سیلین: میزان حذف Total organic carbon (TOC) تحت شرایط بهینه فرایند فتوکاتالیستی بعد از گذشت ۱۲۰ دقیقه از زمان واکنش مورد سنجش قرار گرفت. مقدار TOC در ورودی رآکتور ۱۰ میلی‌گرم بر لیتر آموکسی‌سیلین و در تماس با کاتالیست BT5، از ۱۸۶ به ۷۸ میلی‌گرم بر لیتر رسید که نشان دهنده ۵۸/۰۶ درصد معدنی‌سازی می‌باشد.

بحث

خصوصیات نانوکامپوزیت سنتز شده Bi_2O_3-TiO_2: در مطالعه حاضر، از SEM برای تشخیص مورفولوژی و از EDX جهت شناسایی عناصر استفاده گردید. همچنین، خصوصیت نوری کاتالیست سنتز شده با استفاده از تکنیک DRS از نوع UV-Vis مورد بررسی قرار گرفت. بر اساس نتایج به دست آمده از SEM در شکل ۲، نانوذرات Bi_2O_3 به طور یکنواخت بر روی سطح TiO_2 توزیع شده است. همچنین، با توجه به نتایج آنالیز EDX ترکیب عنصری نانوکامپوزیت سنتز شده تخمین زده شد که عبارت از ۶۲/۲۴ درصد تیتانیوم، ۱۴/۳۱درصد بیسموت و ۲۳/۴۵ درصد اکسیژن (بر حسب درصد وزنی) می‌باشد (شکل ۳). نتایج آنالیز DRS با استفاده از اسپکتروفتومتر Shimadzu UV-2550 در طول موج ۲۰۰ تا ۶۰۰ نانومتر (شکل ۴) نشان داد که TiO_2 با انرژی باند گپ ۳/۲ الکترون ولت، جذب قابل توجهی در ناحیه نور مرئی از خود نشان نمی‌دهد. در مقایسه با TiO_2، در کاتالیست سنتز شده Bi_2O_3–TiO_2، جذب نور در طول موج‌های بالاتر از ۴۰۰ نانومتر افزایش می‌یابد. در نتیجه، فوتون با انرژی کمتری برای انجام واکنش فتوکاتالیستی نیاز است و کارایی استفاده از نور مرئی را برای تجزیه فتوکاتالیستی افزایش می‌دهد.

بررسی تأثیر مقدار بیسموت دوپه شده بر کارایی حذف آموکسی‌سیلین: به منظور دستیابی به شرایط بهینه فرایند فتوکاتالیستی، اثر مقدار بیسموت دوپه شده بر TiO_2 در افزایش درصد حذف آموکسی‌سیلین تحت تابش نور مرئی مورد بررسی قرار گرفت. بر اساس شکل ۵ (قسمت‌های الف و ب)، فعالیت کاتالیست‌های سنتز شده بستگی به درصد Bi_2O_3 در ترکیب دارد و در این میان، کاتالیست BT5 فعالیت کاتالیستی بهتری را نشان داد. بر اساس نتایج مطالعه Su و همکاران، Bi_2O_3 در ساختار Bi_2O_3–TiO_2 نقش حساس‌کننده به نور را ایفا می‌کند و موجب افزایش پاسخ TiO_2 به نور مرئی می‌شود. در نتیجه، در حضور Bi_2O_3، کارایی حذف آلاینده آلی توسط TiO_2 در نور مرئی افزایش می‌یابد (۲۱). در پژوهش Sood و همکاران، تأثیر مثبت حضور بیسموت بر افزایش فعالیت فتوکاتالیستی TiO_2 در نور مرئی گزارش شده است (۲۲).

بررسی تأثیر pH بر کارایی حذف آموکسی‌سیلین: به منظور به حداکثر رساندن کارایی فرایند حذف فتوکاتالیستی، ارزیابی و بهینه‌سازی شاخص‌های تجربی ضروری است. برای تفسیر اثر pH اولیه بر فرایند فتوکاتالیستی، حذف آموکسی‌سیلین در pHهای مختلف توسط کاتالیست BT5 مورد بررسی قرار گرفت (شکل ۶). در این سری واکنش، pH محلول حاوی آنتی‌بیوتیک برابر با ۳، ۷ و ۱۱ انتخاب گردید و آزمایش‌ها در محلول آنتی‌بیوتیک با غلظت ۱۵ میلی‌گرم بر لیتر صورت گرفت. نتایج به دست آمده نشان داد که حذف آموکسی‌سیلین در pH = ۱۱ توسط کاتالیست BT5، بیشترین مقدار و در pH = ۷ کمترین مقدار می‌باشد. نقطه صفر بار کاتالیست Bi_2O_3–TiO_2، ۶/۸ (pH_{ZPC}=۶/۸) گزارش شد. بنابراین، سطح آن می‌تواند به ترتیب در پایین و بالای نقطه ایزوالکتریک مثبت یا منفی باشد (۲۳). این رفتار در جذب آموکسی‌سیلین بر روی سطح کاتالیست تأثیر می‌گذارد. بار آموکسی‌سیلین از بار مثبت در pH اسیدی تا بار منفی در pH قلیایی متغیر است (۲۴). بالا بودن درصد حذف آنتی‌بیوتیک به افزایش تولید رادیکال‌های فعال در pH بالا بر روی سطح کاتالیست و همچنین، هیدرولیز آموکسی‌سیلین به دلیل ناپایداری حلقه بتالاکتام در pH بالا نسبت داده شده که در مطالعات پیشین به تأیید رسیده است (۲۵). در این راستا، در مطالعه Elmolla و Chaudhuri، تأثیر مثبت pH بالا برافزایش حذف آموکسی‌سیلین به دلیل احتمال افزایش تولید گونه‌های رادیکالی گزارش شد (۲۶).

بررسی تأثیر غلظت اولیه آموکسی‌سیلین بر کارایی حذف آن: در پژوهش حاضر، کارایی حذف آموکسی‌سیلین در غلظت‌های ۱۰، ۱۵ و ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر توسط کاتالیست BT5 مورد بررسی قرار گرفت. بدین ترتیب، با افزایش غلظت آموکسی‌سیلین، درصد حذف آموکسی‌سیلین کاهش می‌یابد (شکل ۷). با افزایش غلظت آلاینده دارویی در محلول، فوتون‌های نوری بیشتری توسط ترکیبات دارویی جذب می‌شود و فوتون‌های نوری کمتری جذب سطح کاتالیست می‌گردد و در نتیجه، با تولید کمتر گونه‌های فعال رادیکالی، درصد حذف آلاینده کاهش خواهد یافت (۲۷).

بررسی میزان معدنی‌سازی آموکسی‌سیلین: به دلیل احتمال تشکیل محصولات میانی با سمیت بیشتر در کاربرد فرایندهای فتوکاتالیستی هتروژن، اندازه‌گیری TOC به عنوان شاخصی جهت تبدیل آلاینده به محصولات نهایی بی‌خطر آب و دی‌اکسید کربن، اهمیت فراوانی دارد (۲۸). بر اساس یافته‌های حاصل از اندازه‌گیری TOC، پس از گذشت ۱۲۰ دقیقه از شروع واکنش، TOC به میزان ۵۸/۰۶ درصد حذف گردید. مطابق با نتایج تحقیق Elmolla و Chaudhuri، روند معدنی‌سازی آموکسی‌سیلین شامل باز شدن حلقه بتالاکتام و سپس با ادامه مدت زمان تماس با نور، واکنش‌هایی برای معدنی‌سازی کامل با تشکیل دی‌اکسید کربن و آب صورت می‌گیرد (۲۶).

[Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.3.15.9]
[DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412]

نتیجه‌گیری

در مجموع، سنتز کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2 به روش هیدروترمال انجام شد و فعالیت فتوکاتالیستی کاتالیست سنتز شده با تجزیه آموکسی‌سیلین در نور مرئی مورد بررسی قرار گرفت. کاتالیست Bi_2O_3-TiO_2 بر خلاف TiO_2 که فعالیت فتوکاتالیستی آن در نور مرئی قابل اغماض است، به خوبی به نور مرئی پاسخ می‌دهد و در این میان، BT5 فعالیت فتوکاتالیستی بهتری را در شرایط مشابه آزمایشگاهی نسبت به کاتالیست‌های سنتز شده TiO_2، Bi_2O_3، BT1 و BT3 نشان می‌دهد. افزایش در فعالیت فتوکاتالیستی، به جلوگیری از ترکیب مجدد جفت الکترون/ حفره (e^-/h^+) و افزایش طول عمر حامل‌های بار نسبت داده شده است.

تشکر و قدردانی

پژوهش حاضر برگرفته از طرح تحقیقاتی با شماره ۹۵۰۲۲۷۲۸۵۹۵، مصوب دانشگاه علوم پزشکی ایران می‌باشد. بدین وسیله از آقایان مهندس حسن پورمسلمی، مهندس مجتبی یگانه بادی و مهرداد شاهپری و همچنین، کلیه افرادی که در اجرای این مطالعه همکاری نمودند، تشکر و قدردانی به عمل می‌آید.

References

1. Qu X, Alvarez PJJ, Li Q. Applications of nanotechnology in water and wastewater treatment. Water Res 2013; 47(12): 3931-46.
2. Lee SY, Park SJ. TiO_2 photocatalyst for water treatment applications. J Ind Eng Chem 2013; 19(6): 1761-9.
3. Qadir M, Sharma BR, Bruggeman A, Choukr-Allah R, Karajeh F. Non-conventional water resources and opportunities for water augmentation to achieve food security in water scarce countries. Agric Water Manag 2007; 87(1): 2-22.
4. Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices-a review. J Environ Manage 2011; 92(10): 2304-47.
5. Leonard CT, Ward D, Longson C. Antimicrobial resistance: A light at the end of the tunnel? Lancet 2017; 389(10071): 803.
6. Munguia J, Nizet V. Pharmacological targeting of the host-pathogen interaction: Alternatives to classical antibiotics to combat drug-resistant superbugs. Trends Pharmacol Sci 2017; 38(5): 473-88.
7. Stackelberg PE, Furlong ET, Meyer MT, Zaugg SD, Henderson AK, Reissman DB. Persistence of pharmaceutical compounds and other organic wastewater contaminants in a conventional drinking-water-treatment plant. Sci Total Environ 2004; 329(1-3): 99-113.
8. Escola CM, Bester K. Can those organic micro-pollutants that are recalcitrant in activated sludge treatment be removed from wastewater by biofilm reactors (slow sand filters)? Sci Total Environ 2015; 506-507: 315-22.
9. Oller I, Malato S, Sanchez-Perez JA. Combination of advanced oxidation processes and biological treatments for wastewater decontamination--a review. Sci Total Environ 2011; 409(20): 4141-66.
10. Li H, Liu J, Qian J, Li Q, Yang J. Preparation of Bi-doped TiO_2 nanoparticles and their visible light photocatalytic performance. Chinese J Catal 2014; 35(9): 1578-89.
11. Farzadkia M, Bazrafshan E, Esrafili A, Yang JK, Shirzad-Siboni M. Photocatalytic degradation of Metronidazole with illuminated TiO_2 nanoparticles. J Environ Health Sci Eng 2015; 13: 35.
12. Gar Alalm M, Tawfik A, Ookawara S. Enhancement of photocatalytic activity of TiO_2 by immobilization on activated carbon for degradation of pharmaceuticals. J Environ Chem Eng 2016; 4(2): 1929-37.
13. In S, Orlov A, Berg R, Garcia F, Pedrosa-Jimenez S, Tikhov MS, et al. Effective visible light-activated B-doped and B,N-codoped TiO2 photocatalysts. J Am Chem Soc 2007; 129(45): 13790-1.
14. Daghrir R, Drogui P, Robert D. Modified TiO_2 for environmental photocatalytic applications: A review. Ind Eng Chem Res 2013; 52(10): 3581-99.
15. Yi W, Yan C, Hamdy MS, Baltrusaitis J, Mul G. Effects of bismuth addition and photo-deposition of platinum on (surface) composition, morphology and visible light photocatalytic activity of solĒōgel derived TiO2. Appl Catal B 2014; 154-155: 153-60.
16. Ge M, Li Y, Liu L, Zhou Z, Chen W. $Bi2O_3$-Bi_2WO_6 composite microspheres: Hydrothermal synthesis and photocatalytic performances. J Phys Chem C 2011; 115(13): 5220-5.
17. Yi S, Yue X, Xu D, Liu Z, Zhao F, Wang D, et al. Study on photogenerated charge transfer properties and enhanced visible-light photocatalytic activity of p-type Bi 2 O 3/n-type ZnO heterojunctions. New J Chem 2015; 39(4): 2917-24.
18. Huang Y, Wei Y, Wang J, Luo D, Fan L, Wu J. Controllable fabrication of Bi_2O_3/TiO_2 heterojunction with excellent visible-light responsive photocatalytic performance. Appl Surf Sci 2017; 423: 119-30.
19. Yang J, Dai J, Li J. Visible-light-induced photocatalytic reduction of Cr(VI) with coupled Bi2O3/TiO2 photocatalyst and the synergistic bisphenol A oxidation. Environ Sci Pollut Res Int 2013; 20(4): 2435-47.
20. Escobedo Salas S, Serrano Rosales B, de Lasa H. Quantum yield with platinum modified TiO_2 photocatalyst for hydrogen production. Appl Catal B 2013; 140-141: 523-36.
21. Su K, Ai Z, Zhang L. Efficient visible light-driven photocatalytic degradation of pentachlorophenol with Bi2O3/TiO2-xBx. J Phys Chem C 2012; 116(32): 17118-23.
22. Sood S, Mehta SK, Sinha ASK, Kansal SK. Bi_2O_3/TiO_2 heterostructures: Synthesis, characterization and their application in solar light mediated photocatalyzed degradation of an antibiotic, ofloxacin. Chem Eng J 2016; 290: 45-52.
23. Sud D, Syal A. Investigations on the phase transformation, optical characteristics, and photocatalytic activity of synthesized heterostructured nanoporous Bi2O3TiO2. J Chin Chem Soc 2016; 63(9): 776-83.

[Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-10-08]

[DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.3.15.9]

[DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412]

24. Basha S, Barr C, Keane D, Nolan K, Morrissey A, Oelgemoller M, et al. On the adsorption/photodegradation of amoxicillin in aqueous solutions by an integrated photocatalytic adsorbent (IPCA): Experimental studies and kinetics analysis. Photochem Photobiol Sci 2011; 10(6): 1014-22.
25. Elmolla ES, Chaudhuri M. Degradation of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution by the UV/ZnO photocatalytic process. J Hazard Mater 2010; 173(1-3): 445-9.
26. Elmolla ES, Chaudhuri M. Photocatalytic degradation of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution using UV/TiO2 and UV/H_2O_2/TiO_2 photocatalysis. Desalination 2010; 252(1): 46-52.
27. An T, An J, Yang H, Li G, Feng H, Nie X. Photocatalytic degradation kinetics and mechanism of antivirus drug-lamivudine in TiO2 dispersion. J Hazard Mater 2011; 197: 229-36.
28. Lai WW, Hsu MH, Lin AY. The role of bicarbonate anions in methotrexate degradation via UV/TiO2: Mechanisms, reactivity and increased toxicity. Water Res 2017; 112: 157-66.

[Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.3.15.9]
[DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412]

DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412 Published by Vesnu Publications

Journal of Health System Research Vol. 14, No. 3, Autumn

Received: 19.04.2018 Accepted: 24.07.2018 Published: 07.10.2018

Investigation of Photocatalytic Removal of Amoxicillin from Aquatic Environment Using Bi_2O_3-TiO_2

Ali Esrafili[1], Maryam Salimi[2], Ahmad Jonidi-Jafari[3], Roshanak Rezaei-Kalantary[3]

Original Article

Abstract

Background: The continuous introduction of antibiotics, including amoxicillin, into the environment has created potential health risks, especially resistance of pathogenic microorganisms. In recent years, several efforts have been made by researchers to develop methods that lead to the destruction of antibiotics, including photocatalytic processes based on TiO_2. The aim of this study was to evaluate the efficiency of catalyst Bi_2O_3-TiO_2 in the removal of amoxicillin from aqueous environment.

Methods: In this fundamental-applied study, the catalyst Bi_2O_3-TiO_2 was first synthesized by hydrothermal method. The scanning electron microscope (SEM), energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDX), and diffuse reflectance spectroscopy (DRS) analysis were used to determine the characteristics of the nanocomposite. Then, the effect of factors such as the content of bismuth in the Bi_2O_3-TiO_2, the initial concentration of amoxicillin (10, 15, and 20 mg/l), pH (3 to 11), and mineralization rate were investigated.

Findings: The catalyst BT5 showed more photocatalytic degradation efficiency of amoxicillin under visible light irradiation. The optimum pH and amoxicillin concentration in this process were determined as 11 and 10 mg/l, respectively. The maximum efficiency of this process was 85%, at optimal conditions after 120 minutes.

Conclusion: The results of this study showed that the photocatalytic process based on Bi_2O_3-TiO_2 compared to pure TiO_2, is an effective method for removing amoxicillin from the aqueous environment, and the use of Bi_2O_3 will effectively increase the photocatalytic activity of TiO_2 in visible light.

Keywords: Amoxicillin, Photocatalytic process, Titanium dioxide, Bismuth, Visible light

Citation: Esrafili A, Salimi M, Jonidi-Jafari A, Rezaei-Kalantary R. **Investigation of Photocatalytic Removal of Amoxicillin from Aquatic Environment Using Bi_2O_3-TiO_2.** J Health Syst Res 2018; 14(3): 369-76.

1- Associate Professor, Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
2- PhD Candidate, Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
3- Professor, Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran
Corresponding Author: Maryam Salimi, Email: m_salimi97@yahoo.com

[Downloaded from hsr.mui.ac.ir on 2026-10-08]
[DOR: 20.1001.1.17352363.1397.14.3.15.9]
[DOI: 10.22122/jhsr.v14i3.3412]