

تجزیه آنتی‌بیوتیک سولفات‌تiazول در محیط‌های آبی با استفاده از نانوذره آهن صفر و پراکسید هیدروژن

مهدی فضل‌زاده^۱ (M.Sc)، آیت رحمانی^۲ (Ph.D)، حمیدرضا ناصحی‌نیا^۳ (Ph.D)، حسن رحمانی^۳ (Ph.D)، کوروش رحمانی^۱ (Ph.D)
۱- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی اردبیل، اردبیل، ایران
۲- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی سمنان، سمنان، ایران
۳- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی کاشان، کاشان، ایران

چکیده

سابقه و هدف: آلاینده‌های دارویی در سال‌های اخیر نگرانی‌های زیادی را برای متخصصین محیط زیست به وجود آورده است. لذا یافتن روش‌های مؤثر در حذف آن‌ها از محیط بسیار مهم می‌باشد. استفاده از فرایندهای نانوکاتالیستی از جمله روش‌های مناسب می‌باشد.
مواد و روش‌ها: در این مطالعه تجربی، نانوذرات آهن صفر در شرایط آزمایشگاهی سنتز شد و مشخصات آن با آنالیزهای SEM، XRD تعیین گردید. در این تحقیق تأثیر عواملی از قبیل pH، غلظت نانوذره، غلظت پراکسید هیدروژن بر حذف آنتی‌بیوتیک سولفات‌تiazول در محیط آبی مورد بررسی قرار گرفت. کلیه نمونه‌برداری‌ها و آزمایشات بر اساس روش‌های استاندارد آزمایشات آب و فاضلاب انجام شد.
یافته‌ها: نتایج حاصل از این تحقیق نشان داد که pH تأثیر بسیار زیادی بر کارایی فرایند نانوکاتالیستی دارد و در pHهای اسیدی، کارایی فرایند بالاتر است. بیش‌ترین راندمان حذف در زمان یک ساعت در شرایط pH=۳، g/L و Nzvi=۱/۵ و H₂O₂=۱ mol به میزان ۹۹/۸۷ درصد به دست آمد.
نتیجه‌گیری: نانوذره آهن صفر سنتز در حضور پراکسید هیدروژن قابلیت خوبی در تجزیه سولفات‌تiazول داشته و می‌توان آن را جهت تصفیه فاضلاب‌های صنایع دارویی پیشنهاد کرد.

واژه‌های کلیدی: سولفات‌تiazول، نانوذره آهن صفر، اکسیداسیون، پراکسید هیدروژن

مقدمه

ترکیبات دارویی می‌توانند از طرق مختلف از قبیل صنایع داروسازی پساب بیمارستانی و مدفوع‌های انسانی و حیوانی وارد محیط شوند [۵،۶] در میان این ترکیبات دارویی که باعث آلودگی محیط می‌شوند، آنتی‌بیوتیک‌ها به خاطر مصرف بالای آن‌ها در پزشکی و دام‌پزشکی جایگاه مهمی را به اختصاص می‌دهد. سولفات‌تiazول یک ترکیب ارگانوسولفور است که به عنوان یک داروی سولفای کوتاه اثر استفاده می‌شود. در ابتدا به عنوان یک ضدباکتریایی متداول دهانی و موضعی تا زمانی

داروها و محصولات مرتبط با آن به عنوان یک نگرانی در سال‌های اخیر توجهات را به خود اختصاص داده است. داروها برای درمان یا جلوگیری از عفونت‌های میکروبی انسان‌ها و حتی در حیوانات استفاده می‌شود. ترکیبات دارویی از قبیل آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط‌های آبی مشاهده می‌شوند. این ترکیبات در آب سطحی [۱]، زیرزمینی [۲]، پساب فاضلاب [۳] و حتی در آب آشامیدنی یافت می‌شود [۴].

[۲۶،۲۵] نیترات‌ها [۲۸،۲۷] آفت‌کش‌ها [۳۰،۲۹] و رنگ‌ها [۳۱-۳۳]. مورد استفاده قرار گیرد.

استفاده از تکنولوژی NZVI جهت حذف آنتی‌بیوتیک‌های مختلف استفاده شده است [۳۴]. Ghauch و همکارانش NZVI و ZVI را جهت تجزیه آنتی‌بیوتیک‌های آموکسی‌سیلین و آمپی‌سیلین استفاده کردند. در این تحقیق حذف کامل این دو آنتی‌بیوتیک در زمان ۳ ساعت اتفاق افتاد [۳۵].

بنابراین، این مطالعه با هدف بررسی کارایی فرایند نانوکاتالیستی با استفاده از نانوذره آهن صفر در حذف آنتی‌بیوتیک سولفات‌تiazول و تاثیر پارامترهای مختلف در حذف آن انجام شده است.

مواد و روش‌ها

روش انجام آزمایش. این تحقیق یک مطالعه تجربی است که در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت ناپیوسته انجام شده است. محلول استوک سولفات‌تiazول به صورت ۱۰۰۰ میلی‌گرم بر لیتر تهیه و با رقیق‌سازی غلظت‌های مورد نیاز مورد استفاده قرار گرفت. برای تنظیم pH از اسید سولفوریک و هیدروکسید سدیم یک مولار استفاده گردید. تمامی آزمایشات در دمای محیط آزمایشگاه و در حدود ۲۵ درجه سانتی‌گراد انجام و در نهایت برای تحلیل داده‌ها از نرم‌افزار Excel استفاده شد.

مواد شیمیایی مورد استفاده: مواد شیمیایی مورد استفاده در این پژوهش شامل سولفات آهن ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$)، پراکسید هیدروژن (H_2O_2) (۳۰ درصد وزنی)، پلی‌وینیل‌پیرولیدون، اسید سولفوریک (H_2SO_4)، سود (NaOH)، استیک اسید (CH_3COOH)، بوروهیدرات سدیم (NaBH_4)، اتانول ۳۰ درصد و متانول با درجه HPLC بودند که همگی از شرکت MERCK خریداری گردید. آنتی‌بیوتیک سولفات‌تiazول از شرکت سیگما آلدریج تهیه شد.

سنتز نانوذرات آهن صفر. نانوذرات آهن صفر از طریق روش احیایی در فاز مایع انجام شد. با استفاده از پلی‌وینیل‌پیرولیدون به عنوان یک عامل پخش‌کننده، سولفات آهن ۷ آبه با بوروهیدرات سدیم به عنوان عامل احیاء‌کننده واکنش

که یک جایگزین با سمیت کم‌تر برای آن پیدا شد مورد استفاده قرار می‌گرفت. این دارو هنوز گاهی اوقات در ترکیب با سولفانزامید و سولفاستامید و در آکواریوم‌ها مورد استفاده قرار می‌گیرد [۷].

روش‌های مختلفی در حذف آنتی‌بیوتیک‌ها از محیط‌های آبی از قبیل جذب، از ناسیون و روش‌های بیوتکنولوژی گزارش شده است [۷-۱۲]. فرآیندهای اکسیداسیون با استفاده از قدرت رادیکال هیدروکسیل هنگامی در تصفیه آب استفاده شده‌اند که آلایندگی‌های موجود به وسیله سایر روش‌های مرسوم قابل حذف نبوده‌اند [۱۳]. این فرآیندها در ردیف فرآیندهای پیشرفته اکسیداسیون (Advanced Oxidation Processes) (AOPs) قرار دارند یعنی فرآیندهایی که منجر به ایجاد رادیکال آزاد هیدروکسیل ($\text{OH}\cdot$) تحت دما و شرایط محیطی متعارف می‌باشند [۱۴]. یکی از فرآیندهای بسیار جالب در این بین، فرآیند اکسیداسیون تلفیقی نانوذرات آهن در حضور پراکسید هیدروژن می‌باشد. از این گذشته نانوذرات آهن صفر به میزان زیاد در دسترس، ارزان و غیر سمی بوده و پایداری نسبتاً زیاد شیمیایی را نشان می‌دهد [۱۴، ۱۵].

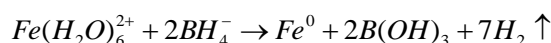
نانوذرات به دلیل اندازه بسیار کوچک و ساختار مولکولی و یا اتمی منحصر به فرد خود از ویژگی‌های مکانیکی، مغناطیسی، نوری، الکترونیکی و شیمیایی ویژه‌ای برخوردار هستند. فلزات با ظرفیت صفر (مانند آهن، قلع و آلومینیوم و روی) عوامل موثری برای اصلاح محیط‌های آبی آلوده هستند. در بین این فلزات استفاده از آهن با ظرفیت صفر (NZVI) (Nano Zero valent iron) به دلیل فراوانی، ارزانی و غیر سمی بودن، واکنش سریع و توانایی بازده بالا در تجزیه آلایندگی‌ها در الویت قرار دارد [۱۶]. علاوه بر این، ذرات آهن حاصل از فرآیندهای صنعتی می‌تواند به عنوان آهن با ظرفیت صفر در تصفیه آلایندگی‌ها استفاده شود [۱۷]. تحقیقات نشان داده است که نانوذرات آهن می‌تواند در حذف آلایندگی‌هایی از قبیل فلزات سنگین [۲۰-۱۸] کلرینات‌های آلی [۲۱، ۲۲] ترکیبات نیترو آروماتیک [۲۳، ۲۴] پلی‌برومینات دی‌فنیل‌اترها

غلظت آنتی بیوتیک سولفاتیازول در بررسی میزان حذف آن توسط فرایند نانوکاتالیستی از دستگاه HPLC مدل CECIL (Cambridge, UK) 4100 مجهز به دکتور UV-visible در طول موج ۲۵۴ نانومتر مورد استفاده قرار گرفت. حلال‌های مورد استفاده جهت فاز متحرک متانول و اسید استیک به ترتیب با نسبت‌های ۴۰ به ۶۰ بود با میزان جریان ۱ میلی‌لیتر در دقیقه استفاده شدند. زمان مشاهده پیک غلظت در این شرایط در دستگاه HPLC دقیقه ۴ بود.

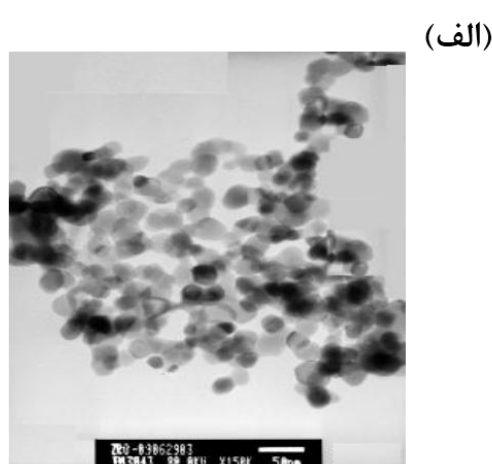
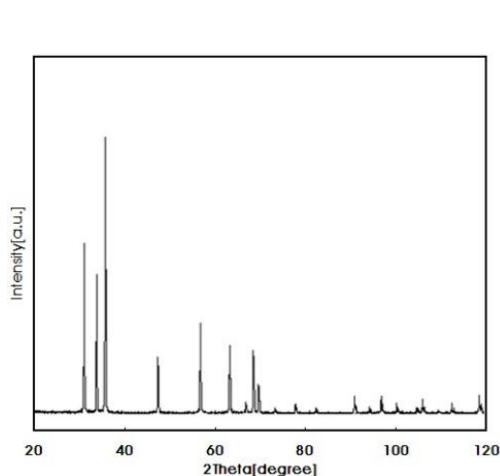
نتایج

تعیین مشخصات نانوذره آهن صفر. خصوصیات نانوذرات آهن صفر با استفاده از دستگاه‌های الکترونیکی مورد بررسی قرار گرفت. میانگین سطح ویژه نانوذره آهن صفر سنتز شده ۳۰ متر مربع بر گرم بود. شکل ۱ (الف) تصویر مشاهده شده از نانوذرات آهن صفر به وسیله TEM نشان می‌دهد. همان‌طور که در شکل دیده می‌شود ذرات دارای یک شکل یک‌نواخت می‌باشند. نانوذرات آهن صفر سنتز شده به صورت پودری بودند که از لحاظ مرفولوژی کروی و دارای اندازه‌ای در محدوده ۳۰ تا ۵۰ نانومتر داشتند. ساختار زنجیرگونه آن‌ها ممکن است ناشی از مغناطیس ساکن و تنش سطحی باشد. الگوی XRD نانوذره سنتز شده در شکل ۱ (ب) نشان داده شده است. پیک آشکار شدن آهن صفر در 2θ در $38/76^\circ$ مشخص شد.

می‌دهد. اضافه کردن پلی‌وینیل پیرولیدون نقش بسیار مهمی را در قابلیت پخش شدن نانوذرات آهن ایفا می‌کند که این امر با تغییر در توزیع بار سطح و سپس ایجاد اثر تثبیت الکترواستاتیک، فضای سه بعدی و تثبیت فضای سه بعدی الکترواستاتیک به وجود می‌آید [۳۵]. بنابراین نانوذره آهن صفر به دست آمده به خوبی پخش شده و کم‌تر به صورت گلوله‌ای در می‌آید. در تهیه نانوذره آهن صفر، آب دیونیزه شده به مدت ۳۰ دقیقه با استفاده از نیتروژن خالص اکسیژن زدایی شد. محلول سولفات آهن ۷ به ۰/۰۱ مولار و بوروهیدرات ۰/۰۳ مولار تهیه کرده و در محلول آب و اتانول به نسبت ۳۰ به ۷۰ حجمی حل شد. پلی‌وینیل پیرولیدون را به محلول سولفات آهن اضافه و با هم‌زن مخلوط شد. سپس محلول بوروهیدرید (به نسبت ۱۰ به یک بوروهیدرید و سولفات آهن) را تحت شرایط نیتروژن (با دبی ۱۰ میلی‌لیتر در دقیقه) به آن اضافه و به خوبی مخلوط گردید. بعد از سیاه‌رنگ شدن معمل اختلاط قطع شد. با استفاده از مگنت، نانوذرات آهن صفر سنتز شده جدا شده و سپس به ترتیب سه بار با آب دی یونیزه و اتانول خالص شستشو داده شد. نانوذرات آهن صفر تهیه شده تا زمان استفاده در اتانول نگهداری شدند. واکنش در سنتز نانوذره را می‌توان به صورت زیر نوشت:

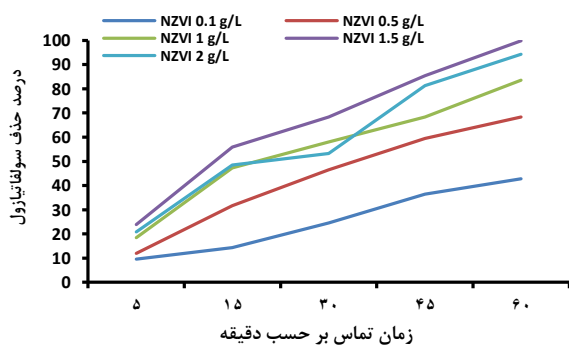


آنالیز غلظت آنتی بیوتیک سولفاتیازول: جهت اندازه‌گیری

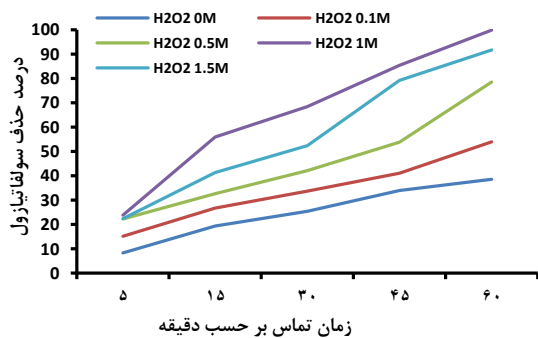


شکل ۱: نتایج حاصل از آنالیز SEM (الف) و XRD (ب) نانوذرات آهن صفر سنتز شده

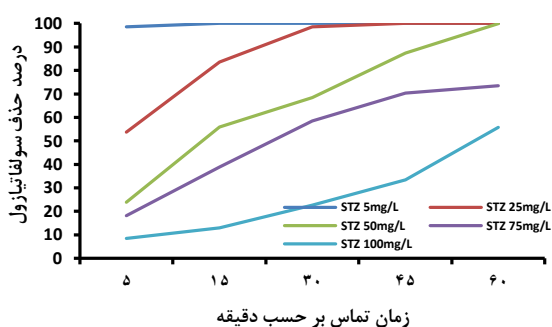
که پراکسید هیدروژن با غلظت ۱ مولار به عنوان غلظت بهینه در این تحقیق می‌باشد. در این غلظت راندمان حذف در شرایط ثابت ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر سولفاتیازول، ۱ گرم بر لیتر نانوذره آهن صفر و $\text{pH}=3$ برابر ۹۹/۸۷ درصد به دست آمد.



شکل ۳. تأثیر غلظت نانوذره آهن صفر بر کارایی فرایند نانوکاتالیستی در حذف سولفاتیازول (شرایط $\text{pH}=3$ ، $\text{H}_2\text{O}_2=1 \text{ M}$ و $\text{STZ}=50 \text{ mg/L}$)



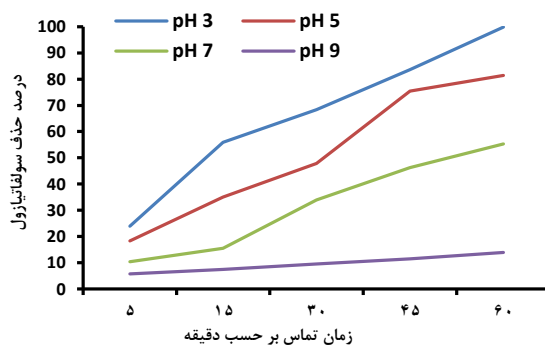
شکل ۴. تأثیر پراکسید هیدروژن بر کارایی فرایند نانوکاتالیستی در حذف سولفاتیازول (در شرایط $\text{pH}=3$ ، $\text{NZVI}=1/5 \text{ g/L}$ و $\text{STZ}=50 \text{ mg/L}$)



شکل ۵. تأثیر غلظت سولفاتیازول بر کارایی فرایند نانوکاتالیستی در حذف سولفاتیازول (شرایط $\text{pH}=3$ ، $\text{NZVI}=1/5 \text{ g/L}$ و $\text{H}_2\text{O}_2=1 \text{ M}$)

تأثیر سولفاتیازول در فرایند نانوکاتالیستی. در این مرحله جهت بررسی اثر غلظت آنتی‌بیوتیک سولفاتیازول غلظت‌های ۲۵، ۵۰، ۷۵ و ۱۰۰ میلی‌گرم بر لیتر از سولفاتیازول برداشته

تأثیر pH بر کارایی فرایند نانوکاتالیستی. اثر pH بر کارایی نانوذره آهن صفر در اکسیداسیون آنتی‌بیوتیک سولفاتیازول در شکل ۲ آورده شده است. جهت بررسی تأثیر pH سولفاتیازول در زمان‌های ۵، ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه در تماس با نانوذره آهن و پراکسید هیدروژن قرار گرفت که بیش‌ترین راندمان حذف در pH برابر ۳ (۹۹/۸۷ درصد) اتفاق افتاد. دیگر pH ‌های مورد آزمایش، ۵، ۷ و ۹، راندمان حذف برای سولفاتیازول به ترتیب ۸۱/۴۶، ۵۵/۲۹ و ۱۳/۸۶ درصد مشاهده شد.



شکل ۲. تأثیر pH بر کارایی فرایند نانوکاتالیستی در حذف سولفاتیازول (در شرایط $\text{NZVI}=5/1 \text{ g/L}$ و $\text{H}_2\text{O}_2=1 \text{ mol}$ و $\text{STZ}=50 \text{ mg/L}$)

تأثیر غلظت نانوذره آهن صفر در اکسیداسیون سولفاتیازول. برای بررسی تأثیر غلظت نانوذره آهن صفر در کارایی فرایند نانوکاتالیستی با استفاده از نانوذره آهن صفر ۵ غلظت ۰/۱، ۰/۵، ۱، ۱/۵ و ۲ گرم در لیتر مورد استفاده قرار گرفت. همان‌طور که در شکل ۳ مشاهده می‌شود نتایج نشان داد در غلظت ۱/۵ بیش‌ترین راندمان حذف بود. در غلظت‌های بالاتر راندمان حذف دچار کاهش شد به طوری که در غلظت ۲ گرم بر لیتر راندمان حذف در شرایط بهینه حدود ۵ درصد کاهش یافت.

تأثیر غلظت پراکسید هیدروژن بر کارایی فرایند نانوکاتالیستی. پراکسید هیدروژن به صورت مولار به محیط واکنش اضافه شد. همان‌طور که در شکل ۴ مشاهده می‌شود جهت بررسی تأثیر پراکسید هیدروژن غلظت‌های ۰/۱، ۰/۵، ۱ و ۱/۵ مولار استفاده شد که نتایج حاصل از آن نشان داد

رسوب هیدروکسید آهن در شرایط فوق اشباع می شود که یون های آهن II موجود در فرایند را کاهش می دهد. علاوه بر آن آهن II در رقابت با رادیکال های هیدروکسیل می باشد [۳۵].

تأثیر غلظت پراکسید هیدروژن در تجزیه سولفاتیازول شکل ۴ تجزیه سولفاتیازول را در غلظت های مختلف H_2O_2 نشان می دهد. همان طور که از نتایج بر می آید تجزیه سولفاتیازول از غلظت پراکسید هیدروژن تأثیر می پذیرد. در سیستم فنتون منبع اصلی رادیکال های هیدروکسیل از طریق واکنش پراکسید با آهن می باشد. به صورت تئوریک در صورتی که مقدار آهن موجود در سیستم محدود نباشد، رادیکال های هیدروکسیل تولیدی بیش تر خواهد بود. همان طور که پیش بینی می شد راندمان حذف سولفاتیازول از ۳۸ درصد در زمان عدم حضور پراکسید هیدروژن به ۹۹ درصد در غلظت ۱ مولار افزایش یافت. نتایج مشابه را هم می توان در مطالعات دیگر یافت [۳۹، ۳۸، ۳۴]. در سیستم فنتونی در زمانی که غلظت پراکسید هیدروژن در حد غلظت بحرانی زیاد می شود، رادیکال های هیدروکسیل می تواند از طریق اثر تخریبی غلظت اضافی پراکسید هیدروژن و ترکیب مجدد رادیکال های هیدروکسیل کاهش یابد. رادیکال های هیدروپرواکسی حاصل از اثر تخریبی دارای فعالیت کم تری نسبت به رادیکال های هیدروکسیل می باشند [۴۰]. بنابراین در غلظت های بیش از حد پراکسید هیدروژن راندمان حذف سولفاتیازول کاهش می یابد.

تأثیر غلظت آنتی بیوتیک در فرایند نانو کاتالیستی غلظت های اولیه ۲۵، ۵۰، ۷۵ و ۱۰۰ از سولفاتیازول مطالعه شد. نتایج در شکل ۵ نشان داده شده است. با افزایش غلظت اولیه سولفاتیازول میزان حذف کاهش یافت. فرایند حذف سولفاتیازول به وسیله نانو ذره آهن صفر یک فرایند ناهمگن است که شامل دو مرحله جذب و تجزیه می باشد، بنابراین سطح واکنش جذب مقدار معینی از نانو ذره آهن صفر ثابت است. این ممکن است منجر به گلوله ای شدن سولفاتیازول در منافذ نانو ذره آهن و بنابراین جلوگیری از

شد و در مدت زمان ۱۵ تا ۶۰ دقیقه به صورت ثابت در شرایط $pH=3$ ، $nZVI=1g/L$ و $H_2O_2=1mmol$ قرار گرفت که نتایج حاصل از این آزمایش در شکل ۵ مشاهده می شود.

بحث و نتیجه گیری

تأثیر pH محلول به عنوان یکی از مهم ترین فاکتورهایی است که در حذف آلاینده ها با استفاده از آهن صفر تأثیر می گذارد. در این مطالعه هم pH به عنوان یک متغیر تأثیرگذار مورد بررسی قرار گرفت (۳، ۵، ۷، ۹). همان طور که در شکل ۲ مشاهده می شود راندمان حذف با کاهش pH افزایش می یابد. دلایل آن را می توان این طور بیان کرد که در pH های پایین تر خوردگی آهن سریع تر اتفاق می افتد که در این شرایط تولید هیدروژن کافی (یا اتم های هیدروژن) می کند که این عمل برای واکنش های هیدروژناسیونی مناسب تر است [۳۶]. از طرف دیگر خوردگی آهن در محلول با pH های بالاتر از ۷ منجر می شود به شکل گیری فیلم های غیر فعال هیدروکسید آهن در سطح آهن که از واکنش های بیش تر جلوگیری می کند [۳۷].

تأثیر غلظت نانوذرات آهن صفر در تجزیه سولفاتیازول نانوذره آهن صفر نقش مهمی را به عنوان منبع آهن II در واکنش فنتون ایفا می کند. در این تحقیق غلظت های ۰/۱ تا ۲ گرم بر لیتر مورد استفاده قرار گرفت که نتایج آن در شکل ۳ آمده است. همان طور که مشاهده می شود با افزایش غلظت نانوذره راندمان حذف سولفاتیازول افزایش می یابد. در غلظت های بالاتر نانوذره مقادیر آزادسازی آهن II افزایش می یابد. در فرایند فنتون، آهن II به عنوان یک کاتالیست عمل می کند که تجزیه پراکسید هیدروژن را به رادیکال های هیدروکسیل شروع می کند. پس در فرایند فنتون در زمانی که غلظت های بالاتر نانوذره آهن صفر استفاده می شود، مقدار رادیکال های هیدروکسیلی بیش تر شده و در نتیجه راندمان حذف سولفاتیازول افزایش می یابد. اما در غلظت های بالای نانوذره آهن مشاهده می شود که کاهش تدریجی راندمان اتفاق افتاده است که به دلیل این که آهن II و III بیش تر، باعث تولید

[7] Kruger Gt, Gafner G. The crystal structure of sulphathiazole II. Acta Crystallogr, Sect. B: Struct Sci 1971; 27: 326V-333.

[8] Rahmani K, Faramarzi MA, Mahvi AH, Gholami M, Esrafil A, Forootanfar H, et al. Elimination and detoxification of sulfathiazole and sulfamethoxazole assisted by laccase immobilized on porous silica beads. Int Biodeterior Biodegradation 2015; 97: 107-114.

[9] Rivera-Utrilla J, Prados-Joya G, Sánchez-Polo M, Ferro-García M, Bautista-Toledo I. Removal of nitroimidazole antibiotics from aqueous solution by adsorption/bioadsorption on activated carbon. J Hazard Mater 2009; 170: 298-305.

[10] Sánchez-Polo M, Rivera-Utrilla J, Prados-Joya G, Ferro-García M, Bautista-Toledo I. Removal of pharmaceutical compounds, nitroimidazoles, from waters by using the ozone/carbon system. Water Res 2008; 42: 4163-4171.

[11] Malakootian M, Sepehr MN, Bahraini S, Zarrabi M. Capacity of natural and modified zeolite with cationic surfactant in removal of antibiotic tetracycline from aqueous solutions. Koomesh 2016; 17: 779-788. (Persian).

[12] Malakootian M, Yaghmaeian K, Momenzadeh R. Efficiency of titanium dioxide photocatalytic activity in removing anionic surfactant of sodium dodecyl sulfate from waste water. Koomesh 2015; 16: 648-654. (Persian).

[13] Dargahi A, Pirsahab M, Hazrati S, Fazlzadehdavil M, Khamutian R, Amirian T. Evaluating efficiency of H₂O₂ on removal of organic matter from drinking water. Des. Water Treat 2015; 54: 1589-1593.

[14] Gómez MJ, Petrović M, Fernández-Alba AR, Barceló D. Determination of pharmaceuticals of various therapeutic classes by solid-phase extraction and liquid chromatography–tandem mass spectrometry analysis in hospital effluent wastewaters. J Chromatogr A 2014; 1114: 224-233.

[15] Parastar S, Nasser S, Borji SH, Fazlzadeh M, Mahvi AH, Javadi AH, et al. Application of Ag-doped TiO₂ nanoparticle prepared by photodeposition method for nitrate photocatalytic removal from aqueous solutions. Des Water Treat 2013; 51: 7137-7144.

[16] Sung H, Francis I. "Nanotechnology for environmental remediation" springer science+business media, Inc 2006; 5-42.

[17] Fazlzadeh M, Rahmani K, Zarei A, Abdoallahzadeh H, Nasiri F, Khosravi R. A novel green synthesis of zero valent iron nanoparticles (NZVI) using three plant extracts and their efficient application for removal of Cr(VI) from aqueous solutions. Adv Pow Tech 2016; in press.

[18] Li ZJ, Wang L, Yuan LY, Xiao CL, Mei L, Zheng LR, et al. Efficient removal of uranium from aqueous solution by zero-valent iron nanoparticle and its graphene composite. J Hazard Mater 2015; 290: 26-33.

[19] Guo X, Yang Z, Dong H, Guan X, Ren Q, Lv X, et al. Simple combination of oxidants with zero-valent-iron (ZVI) achieved very rapid and highly efficient removal of heavy metals from water. Water Res 2016; 88: 671-680.

[20] Li S, Wang W, Liang F, Zhang WX. Heavy metal removal using nanoscale zero-valent iron (nZVI): Theory and application. J Hazard Mater 2017; 322: 163-171.

[21] Choe S, Chang Y, Hwang K, Khim J. Rapid reductive destruction of hazardous organic compounds by nanoscale Fe₀. Chemosphere 2001; 42: 367-372.

[22] Qiu ZQF XH. Degradation of halogenated organic compounds by modified nano zero-valent iron. Prog Chem 2010; 22: 291-29.

[23] Zhang X, Chen Z. 2,4,6-Trinitrotoluene reduction kinetics in aqueous solution using nanoscale zero-valent iron. J Hazard Mater 2009; 165: 923-927.

تماس بیش‌تر و مانع از آزادسازی مداوم هیدروژن تولید شده می‌گردد. در نتیجه آن سرعت واکنش و میزان حذف کاهش می‌یابد [۴۱].

نتایج حاصل از این تحقیق نشان داد که فرایند نانوکاتالیستی با استفاده از نانوذرات آهن صفر قابلیت خوبی در اکسیداسیون آنتی‌بیوتیک سولفاتیازول دارد. در این فرایند عواملی از قبیل pH محلول، غلظت پراکسید هیدروژن، غلظت نانوذره و غلظت آنتی‌بیوتیک تأثیرگذار می‌باشد. شرایط بهینه این فرایند در pH=۳، نانوذرات آهن صفر در غلظت ۱/۵ گرم بر لیتر و پراکسید هیدروژن در غلظت ۱ مولار به دست آمد. همچنین با افزایش غلظت سولفاتیازول، راندمان حذف کاهش یافت.

تشکر و قدردانی

این طرح در آزمایشگاه دانشکده بهداشت دانشگاه علوم اردبیل انجام شده است. بدین وسیله از مسئولین محترم آزمایشگاه شیمی دانشکده بهداشت کمال تشکر و قدردانی می‌گردد.

منابع

[1] Kolpin DW, Furlong ET, Meyer MT, Thurman EM, Zaugg SD, Barber LB, et al. Pharmaceuticals, hormones, and other organic wastewater contaminants in US streams, 1999–2000: A national reconnaissance. Environ Sci Technol 2002; 36: 1202-1211.

[2] Rabiet M, Togola A, Brissaud F, Seidel J, Budzinski H, Elbaz-Poulichet F. Consequence of wastewater disposal on the contamination of the water resource by pharmaceuticals in a Mediterranean basin. Environ Sci Technol 2006; 40: 5282-5288.

[3] Carballa M, Omil F, Llompart Ma, García-Jares C, Rodríguez I, et al. Behavior of pharmaceuticals, cosmetics and hormones in a sewage treatment plant. Water Res 2004; 38: 2918-2926.

[4] 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: 99-113.

[5] Yang L, Liya EY, Ray MB. Degradation of paracetamol in aqueous solutions by TiO₂ photocatalysis. Water Res 2008; 42: 3480-3488.

[6] Ikehata K, Jodeiri Naghashkar N, Gamal El-Din M. Degradation of aqueous pharmaceuticals by ozonation and advanced oxidation processes: a review. Ozone Sci Eng 2006; 28: 353-414.

zero valent iron in the presence of ultrasonic irradiation. *Sep Purific Technol* 2014; 122: 41-46.

[34] Rahmani H, Rahmani K, Rahmani A, Zare MR. Removal of dexamethasone from aqueous solutions using sono-nanocatalysis process. *Res J Environ Sci* 2015; 9: 320-331.

[35] Ghauch A, Tuqan A, Assi HA. Antibiotic removal from water: elimination of amoxicillin and ampicillin by microscale and nanoscale iron particles. *Environ Pollut* 2009; 157: 1626-1635.

[36] Zhang W, Quan X, Wang J, Zhang Z, Chen S. Rapid and complete dechlorination of PCP in aqueous solution using Ni-Fe nanoparticles under assistance of ultrasound. *Chemosphere* 2006; 65: 58-64.

[37] Jovanovic GN, Znidaršič Plazl P, Sakrithichai P, Al-Khalidi K. Dechlorination of p-chlorophenol in a microreactor with bimetallic Pd/Fe catalyst. *Ind Eng Chem Res* 2005; 44: 5099-5106.

[38] Molina R, Martínez F, Melero JA, Bremner DH, Chakinala AG. Mineralization of phenol by a heterogeneous ultrasound/Fe-SBA-15/H₂O₂ process: multivariate study by factorial design of experiments. *Appl Catal B* 2006; 66: 198-207.

[39] Wang S. A comparative study of Fenton and Fenton-like reaction kinetics in decolourisation of wastewater. *Dyes Pigments* 2008; 76: 714-720.

[40] Gholami M, Rahmani K, Rahmani A, Rahmani H, Esrafil A. Oxidative degradation of clindamycin in aqueous solution using nanoscale zero-valent iron/H₂O₂/US. *Des Water Treat* 2016; 57: 13878-13886.

[41] Fang Z, Chen J, Qiu X, Qiu X, Cheng W, Zhu L. Effective removal of antibiotic metronidazole from water by nanoscale zero-valent iron particles. *Desalination* 2011; 268: 60-67.

[24] Zhang X, Shan XQ, Chen ZL. Degradation of 2,4,6-trinitrotoluene (TNT) from explosive wastewater using nanoscale zero-valent iron. *Chem Eng J* 2010; 158: 566-570.

[25] Li A, Zhao Z, Wang Y, Zhang Q, Jiang G, Hu J. Debromination of decabrominated diphenyl ether by resin-bound iron nanoparticles. *Environ Sci Technol* 2007; 41: 6841-6846.

[26] Shih YH. Reaction of decabrominated diphenyl ether by zerovalent iron nanoparticles. *Chemosphere* 2010; 78: 1200-1206.

[27] Shin K. Microbial reduction of nitrate in the presence of nanoscale zerovalent iron. *Chemosphere* 2008; 72: 257-262.

[28] Wang W, Jin ZH, Li TL, Zhang H, Gao S. Preparation of spherical iron nanoclusters in ethanol-water solution for nitrate removal. *Chemosphere* 2006; 65: 1396-1404.

[29] Elliott DW, Zhang WX. Degradation of lindane by zero-valent iron nanoparticles. *J Environ Eng* 2009; 135: 317-324.

[30] Joo SH, Waite TD. Oxidative degradation of the carbothioate herbicide, molinate, using nanoscale zero-valent iron. *Environ Sci Technol* 2004; 38: 2242-2247.

[31] Weng CH, Lin YT, Chang CK, Liu N. Decolourization of direct blue 15 by Fenton/ultrasonic process using a zero-valent iron aggregate catalyst. *Ultrason Sonochem* 2013; 20: 970-977.

[32] Rónavári A, Balázs M, Tolmacsov P, Molnár C, Kiss I, Kukovecz Á, et al. Impact of the morphology and reactivity of nanoscale zero-valent iron (NZVI) on dechlorinating bacteria. *Water Res* 2016; 95: 165-173.

[33] Wang X, Wang L, Li J, Qiu J, Cai C, Zhang H. Degradation of acid orange 7 by persulfate activated with

Degradation of sulfathiazole antibiotics in aqueous solutions by using zero valent iron nanoparticles and hydrogen peroxide

Mehdi Fazlzadeh (M.Sc)¹, Ayat Rahmani (Ph.D)², Hamid Reza Nasehinia (Ph.D)³, Hassan Rahmani (M.Sc)³, Kourosh Rahmani (Ph.D)^{*1}

1 – Dept. of Environmental Health, School of Public Health, Ardabil University of Medical Sciences, Ardabil, Iran

2 - Dept. of Environmental Health, School of Public Health, Semnan University of Medical Sciences, Semnan, Iran

3 - Dept. of Environmental Health, School of Public Health, Kashan University of Medical Sciences, Kashan, Iran

(Received: 16 Sep 2016; Accepted: 15 Nov 2016)

Introduction: In recent years, pharmaceutical contaminants has created much concern for environmental experts. Therefore, it is important to find effective methods to remove of them from the environment. One of appropriate methods, in order to remove these contaminants is using nanocatalysts process.

Materials and Methods: In this experimental study, zero-valent iron nanoparticles synthesized in laboratory conditions, and its characteristics were determined by SEM and XRD analyses. In this study, it was investigated effects of factors such as pH, nanoparticles concentration and hydrogen peroxide concentration in removal of sulfathiazole antibiotics in aqueous solutions. All sampling and testing was performed according to standard methods for water and wastewater.

Results: The result of this study showed that pH, as a very effective agent, has a major impact on the efficiency of the nanocatalysts process and removal efficiency is higher at lower pH. Maximum efficiency was 99.87 percent that obtained time 60 min, pH =3, Nzvi = 1g / L and H₂O₂ = mmol 1.

Conclusion: Synthesized zero valent iron nanoparticles in the presence of hydrogen peroxide has a good efficiency to degradation of sulfathiazole and it can be suggested for wastewater treatment of pharmaceutical industry.

Keywords: Sulfathiazole, Nano Zero Valent Iron Particles, Oxidation, Hydrogen Peroxide

* Corresponding author. Tel: +98 45 33513775

krahmanii@yahoo.com