

## Research Paper

## مقاله پژوهشی

### The Removal of Azithromycin Antibiotic by Advanced Oxidation Method of Sodium Persulfate Activated by Steel Industry Slag from Pharmaceutical Effluent

Naser Mehrdadi<sup>1</sup>, Afshin Takdastan<sup>2\*</sup>, Laleh Khosravi  
Pour<sup>3</sup>, Gholamreza Nabi Bidhendi<sup>1</sup> and Masoume Taherian<sup>4</sup>

1- Professor, Faculty of Environment, University of Tehran,  
Tehran, Iran.

2- Professor, Environmental Technologies Research Center,  
Ahvaz Jundishapur University of Medical Sciences, Ahvaz,  
Iran.

3- Ph.D. Student in Water and Wastewater Engineering, Aras  
International Campus, University of Tehran, Aras, Iran.

4- Department of Environmental Health Engineering, School of  
Public Health, Jundishapur University of Medical Sciences,  
Ahvaz, Iran.

\*Corresponding Author, Email: [afshin\\_ir@yahoo.com](mailto:afshin_ir@yahoo.com)

Received: 07/10/2021

Revised: 02/02/2022

Accepted: 25/02/2022

© IWVA

حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین با روش اکسیداسیون پیشرفته  
پرسولفات سدیم فعال شده توسط سرباره صنایع فولاد از پساب

دارویی

ناصر مهرداد<sup>۱</sup>، افشین تکدستان<sup>۲\*</sup>، لاله خسروی پور<sup>۳</sup>، غلامرضا نبی  
بیدهندي<sup>۱</sup> و معصومه طاهریان<sup>۴</sup>

۱- استاد دانشکده محیط زیست، دانشگاه تهران، تهران، ایران.

۲- استاد مرکز تحقیقات فن آوری های زیست محیطی، دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور، اهواز،  
ایران.

۳- دانشجوی دکتری مهندسی آب و فاضلاب، پردیس بین المللی ارس، دانشگاه تهران، ارس،  
ایران.

۴- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی جندی شاپور، اهواز،  
ایران

\*نویسنده مسئول، ایمیل: [afshin\\_ir@yahoo.com](mailto:afshin_ir@yahoo.com)

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۷/۱۵

تاریخ اصلاح: ۱۴۰۰/۱۱/۱۳

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۱۲/۰۶

© انجمن آب و فاضلاب ایران

## Abstract

## چکیده

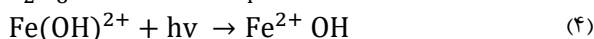
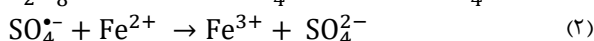
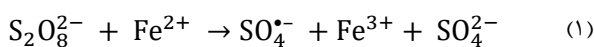
Nowadays, the contamination of water resources with antibiotics are known as one of the major pollutants in the environment due to their widespread use, toxicity, causing drug resistance, and lasting effects. This study was designed to evaluate the efficiency of the advanced oxidation process of sodium persulfate activated with steel industry slag in the presence of ultraviolet rays, solution temperature, and pH aimed at eliminating the Azithromycin antibiotic from aqueous and effluent media. In the present study, the effect of the variables, including pH, solution temperature, reaction time, initial concentration of antibiotics, sodium persulfate concentration, and UV ray intensity was examined on the process efficiency. A High-Performance Liquid Chromatography (HPLC) machine was also used to measure the concentration of the Azithromycin antibiotic. According to the study results, under optimal and certain conditions in which sodium persulfate: 2 mM, pH: 2, iron ions level in the steel industry slag: 0.4 g/l, UV intensity: 8 watts, and during 60 minutes, the elimination efficiency rates of Azithromycin antibiotic, COD, and TOC were obtained as 91%, 57/4%, and 43/8%, respectively with a mineralization level higher than 55%. The rate of Azithromycin antibiotic removal was directly related to the concentrations of iron ions, sodium persulfate, UV intensity, and the temperature. However, increase in the pH from 2 to 10 led to decrease in the process efficiency from 81% to 43%, and enhance in the initial concentration of Azithromycin antibiotic from 5 to 50 mg/l also reduced the removal rate of the antibiotic from 73% to 43%. The research revealed that the advanced oxidation process of sodium persulfate activated by steel industry slag in the presence of ultraviolet rays can be used as a proper method with high efficiency to eliminate the high concentration of antibiotics found in a real sewage sample.

**Keywords:** Advanced oxidation, Steel industry slag, Azithromycin antibiotic, Hospital effluent.

امروزه ورود آنتی‌بیوتیک‌ها به منابع آبی به علت گسترده‌گی مصرف، سمی بودن، ایجاد مقاومت دارویی و اثرات پایدار، به عنوان یکی از آلاینده‌های مهم در محیط به شمار می‌روند. هدف از این پژوهش، ارزیابی کارایی فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد، در حضور اشعه ماورای بنفش، دمای محلول و pH، به منظور حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین از محیط‌های آبی و پساب است. در این مطالعه، اثر متغیرهای pH، دمای محلول، زمان واکنش، غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک‌ها، غلظت پرسولفات سدیم و شدت اشعه ماورای بنفش، بر کارایی فرایند بررسی شد. غلظت آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین نیز، توسط دستگاه کروماتوگرافی مایع با عملکرد بالا اندازه‌گیری شد. براساس نتایج این مطالعه، در شرایط بهینه و خاصی که در آن، غلظت پرسولفات سدیم برابر ۲ میلی‌مولار، pH برابر ۲، میزان یون‌های آهن موجود در سرباره صنایع فولاد معادل ۰/۴ گرم در لیتر، شدت اشعه ماورای بنفش برابر ۸ وات و زمان تماس ۶۰ دقیقه است، راندمان حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین، COD و TOC به ترتیب برابر با ۹۱٪، ۵۷/۴٪ و ۴۳/۸٪ و میزان معدنی‌سازی بیشتر از ۵۵٪ به دست آمد. میزان حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین رابطه مستقیمی با غلظت یون‌های آهن، پرسولفات سدیم، شدت اشعه ماورای بنفش و درجه حرارت داشت؛ در حالی که با افزایش میزان pH از ۲ به ۱۰ میزان بازدهی فرایند از ۸۱٪ به ۴۳٪ و با افزایش غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین از ۵ به ۵۰ میلی‌گرم در لیتر، میزان حذف آنتی‌بیوتیک را از ۷۳٪ به ۴۳٪ کاهش داد. در این تحقیق مشخص شد، فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد در حضور اشعه ماورای بنفش، یک روش مناسب با کارایی موثر به منظور حذف غلظت بالای آنتی‌بیوتیک‌های موجود در یک نمونه فاضلاب واقعی است.

**کلمات کلیدی:** اکسیداسیون پیشرفته، سرباره صنایع فولاد، آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین، پساب بیمارستانی.

بیشتری هستند ( Babaei et al., 2015; García Perdomo et al., 2022). فعال سازی پرسولفات برای تولید رادیکال سولفات ( $SO_4^{\bullet-}$ ) از طریق روش‌های مختلفی مانند کاتالیز فلزی، الکتروشیمی، حرارت و تابش اشعه ماورای بنفش انجام می‌شود. در میان این تکنیک‌ها، یون آهن دو ظرفیتی به دلیل غیر سمی بودن، ارزان قیمت بودن و موثر بودن، به طور گسترده‌ای برای فعال سازی پرسولفات مورد استفاده قرار می‌گیرد. هم‌چنین، نور ماورای بنفش می‌تواند نقش مهمی در بهبود میزان تجزیه و تخریب مواد آلی داشته باشد (Jorfi et al., 2017). فعال سازی پرسولفات با استفاده از  $Fe^{2+}$  (سرباره صنایع فولاد را می‌توان از طریق معادلات ۱ تا ۴) بیان کرد (Shiraz et al., 2018).



سرباره، یکی از زائدات صنعت فولاد است که برای این صنعت مزاحمت زیادی ایجاد می‌کند. اما امروزه با شناخت مصارف متعدد آن، مانند کاربرد در مصالح ساختمانی و راه‌سازی، از یک ماده مزاحم به یک ماده مفید و اقتصادی تبدیل شده است (Takdastan et al., 2017). یکی از کاربردهای سرباره، استفاده به‌عنوان جاذب در حذف آلاینده‌های محیط‌زیست است. در مطالعات انجام‌شده، کاربرد موفق سرباره به‌عنوان جاذب در حذف فسفات، آمونیوم، آلاینده‌های آلی و فلزات سنگینی مانند مس، آرسنیک، سرب و غیره گزارش شده است (Kurt et al., 2017).

در این مطالعه، فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال‌شده توسط یون‌های آهن موجود در سرباره صنایع فولاد در حضور اشعه ماورای بنفش با طول موج مشخص به‌منظور حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین از محلول‌های آبی و پساب انجام گرفت. هم‌چنین، میزان تجزیه‌پذیری زیستی و درجه معدنی‌سازی نیز اندازه‌گیری شد و در پایان، آزمایش‌های مشابه در نمونه واقعی فاضلاب بیمارستانی حاوی مقادیر مشخصی از آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین انجام شد تا کاربرد و میزان کارایی فرایند فوق در محیط طبیعی مشخص شود. این تحقیق تحت متغیرهای ورودی مانند pH محلول، غلظت یون آهن، غلظت پرسولفات سدیم، میزان دما، مدت زمان واکنش، غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک و شدت اشعه ماورای بنفش انجام شد.

پساب حاوی ترکیبات دارویی و آنتی‌بیوتیک‌ها، مانند پساب خروجی از تصفیه‌خانه فاضلاب بیمارستانی و شرکت‌های داروسازی، به‌عنوان یکی از مشکلات در رابطه با آلودگی محیط‌زیست شناخته می‌شوند. برخی از ترکیبات دارویی به‌ویژه آنتی‌بیوتیک‌ها، اثرات نامطلوبی بر انسان و محیط‌زیست حتی در غلظت‌های کم محیطی ایجاد می‌کنند (Liu et al., 2012, 2021). از مهم‌ترین اثرات منفی حضور آنتی‌بیوتیک‌ها، توسعه مقاومت میکروبی است. از خواص آنتی‌بیوتیک‌ها، می‌توان به قابلیت تجزیه بیولوژیکی کم، سمیت بالا، خاصیت سرطان‌زایی و موتاژنی صدمه به DNA و لنفوسیت، افزایش آلرژی در انسان، گسترش باکتری‌های مقاوم به آنتی‌بیوتیک‌ها و ایجاد عوارض پیش‌بینی‌نشده بر روی انسان و حیوانات اشاره کرد (Gao et al., 2012). گسترش مصرف آنتی‌بیوتیک‌ها به‌منظور مصارف انسانی، کشاورزی، دام و طیور و غیره، باعث افزایش حضور این آلاینده در منابع آبی شده و به‌علت متابولیزه شدن ناقص در بدن و احتمال تخلیه بیشتر به محیط‌زیست، از جایگاه ویژه‌ای برخوردار هستند (Jeong et al., 2010; Liu et al., 2021). در تصفیه فاضلاب به کمک فرایند اکسیداسیون پیشرفته، مواد دارویی کاملاً اکسید و حذف می‌شوند و از فازی به فاز دیگر منتقل نمی‌شوند (Michael et al., 2013). آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین، نوعی آنتی‌بیوتیک ماکرولید با فرمول  $C_{38}H_{72}N_{2}O_{12}$  و وزن مولکولی  $g \cdot mol^{-1}$  ۷۴۸/۹۸۴ است که در درمان طیف وسیعی از عفونت‌های باکتریایی مورد استفاده قرار می‌گیرد (Hu, 2022). روش‌های اکسیداسیون پیشرفته بر پایه منوپرسولفات، با فعال سازی فیزیکی و شیمیایی از اقبال بیشتری به‌منظور تصفیه فاضلاب برخوردار هستند. این رویکرد به‌دلیل ماهیت آن، در تصفیه طیف گسترده‌ای از آلاینده‌ها در محیط‌های آبی و پساب و تبدیل آلاینده‌ها به مواد غیر آلی بی‌ضرر از جمله  $H_2O$ ،  $CO_2$  و غیره مورد استفاده قرار می‌گیرد (Ahmadi et al., 2017a). فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته (AOPs)، برای تجزیه ترکیبات آلی گزینه‌ای مناسب در مقایسه با روش‌های متداول تصفیه بوده و دارای مزایای نظیر عدم تولید مقادیر زیاد لجن در مقایسه با سایر روش‌ها است. هم‌چنین، به‌دلیل پایداری پرسولفات و مقرون به‌صرفه بودن در مقایسه با سایر اکسیدکننده‌ها مانند  $H_2O_2$ ،  $O_3$  توجه متخصصین محیط‌زیست را برای اهداف تصفیه و پاک‌سازی به‌خود جلب کرده است. در مقایسه با رادیکال‌های هیدروکسیل، رادیکال‌های سولفات دارای پتانسیل اکسیداسیون و نیمه‌عمر

## ۲- مواد و روش‌ها

## ۲-۱- مواد شیمیایی

در این مطالعه تجربی آزمایشگاهی، مواد شیمیایی مورد نیاز شامل سولفات جیوه ( $HgSO_4$ )، سولفات نقره ( $Ag_2SO_4$ )، دی‌کرومات پتاسیم ( $K_2Cr_2O_7$ )، اسید سولفوریک، اسید کلریدریک ( $HCl$ )، هیدروکسید سدیم ( $NaOH$ )، تیو سولفات سدیم ( $Na_2S_2O_3$ )، پرسولفات سدیم ( $Na_2S_2O_8$ ) و اسید نیتریک از شرکت Merck آلمان و پودر آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين با خلوص بالا ( $>98\%$ ) از شرکت Aldrich تهیه شده است. محلول ذخیره آنتی‌بیوتیک، با مقدار مشخصی از پودر آنتی‌بیوتیک در آب مقطر (DI) به دست آمده که در غلظت‌های مطلوب رقیق و تا زمان انجام آزمایش در دمای ۴ درجه سانتی‌گراد نگهداری می‌شود. برای تهیه کلیه محلول‌های آزمایش، از آب دیونیزه استفاده شد. همچنین، برای تنظیم pH محلول، از اسید کلریدریک و هیدروکسید سدیم ۰/۱ مولار استفاده شد. از سرباره صنایع فولاد نیز، به عنوان جاذب برای حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين استفاده شد.

۶ و ۸ وات مدل PHILIPS ساخت کشور لهستان بودند. همچنین کلیه دستگاه‌های مورد استفاده، قبل از انجام آزمایش‌های مطابق با کاتالوگ‌های مربوطه کالیبره شده و منحنی کالیبراسیون آن‌ها رسم شد.

## ۲-۳- تهیه و آماده‌سازی سرباره

برای افزایش قابلیت سرباره به عنوان جاذب، از روش‌های اصلاحی استفاده می‌شود. از این‌رو، سرباره ابتدا اصلاح و سپس به عنوان جاذب استفاده شد. به منظور اصلاح جاذب، ابتدا سرباره خرد و سپس، توسط سرندهای مش ۵۰ و ۷۰ برای دستیابی به سرباره با اندازه‌های بین ۰/۲ تا ۰/۳ میلی‌متر الک شد. سپس، سرباره با اسید هیدروکلریک ۱ مولار پیش‌تصفیه شد. در مرحله آخر، سرباره چند بار با آب دیونیزه شستشو داده شد تا ناخالصی‌های آن حذف شود و سپس در فور با دمای  $105^\circ C$ ، به مدت ۴ ساعت خشک شد. مراحل شستشو در بشر یک لیتری انجام و برای جداسازی سرباره از فیلتر کاغذی (واتمن ۴۰) استفاده شد.

## ۲-۴- روش انجام آزمایش

در این مطالعه که در مقیاس آزمایشگاهی و پایلوت انجام گرفت، آزمایش‌های مربوطه در یک راکتور با حجم ۵۰۰ میلی‌لیتر حاوی ۲۵۰ میلی‌لیتر محلول واکنش انجام گرفت. برای این منظور، ابتدا فاضلاب سنتتیک حاوی غلظت‌های ۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰ و ۵۰ میلی‌گرم در لیتر آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين ساخته شد و پس از انتقال به راکتور و تنظیم pH و دما، غلظت‌های مشخصی از یون‌های آهن و پرسولفات سدیم به محلول درون راکتور اضافه شد. به دنبال آن، استفاده از لامپ‌های UV با شدت‌های ۴، ۶ و ۸ وات و نیز، اختلاط محتویات درون راکتور با شدت ۳۰۰ دور در دقیقه انجام گرفت. پس از گذشت زمان مورد نظر ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه و به منظور اندازه‌گیری غلظت آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين، نمونه پساب حاصل توسط دستگاه کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا (HPLC) مجهز به آشکارساز اشعه ماورای بنفش آنالیز شد. متغیرهای این تحقیق، شامل غلظت آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين ۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰ و ۵۰ میلی‌گرم در لیتر، pH برابر ۲، ۴، ۶، ۸ و ۱۰، زمان ماند محلول واکنش درون راکتور به مدت ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه، غلظت پرسولفات سدیم ۰/۱-۲ میلی‌مولار، شدت اشعه ماورابنفش ۴، ۶ و ۸ وات و دمای محلول پارامترها در هر مرحله، فقط یکی از پارامترها به عنوان متغیر

## ۲-۲- دستگاه‌های مورد نیاز

در این مطالعه، از یک راکتور به حجم ۵۰۰ میلی‌لیتر، به ابعاد ۳۵۰ میلی‌متر قطر و ۱۰۰۰ میلی‌متر ارتفاع از جنس کوارتز، سرعت قابل تنظیم از ۶۰ تا ۴۵۰ دور در دقیقه، تحمل دمایی از  $(-40)$  تا  $(+200)$  درجه سانتی‌گراد استفاده شد. برای اندازه‌گیری میزان اکسیژن‌خواهی شیمیایی (COD)، از دستگاه اسپکتروفتومتر (DR4000 HACH) استفاده شد و به منظور تنظیم و اندازه‌گیری pH، دستگاه pH متر مدل HQ 40d (HACH) مورد استفاده قرار گرفت. اندازه‌گیری و سنجش غلظت آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين، توسط دستگاه کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا (HPLC-UV) مدل Agilent 1220 infinity system، مجهز به آشکارساز اشعه ماورای بنفش با طول موج ۲۷۵ نانومتر، با استفاده از ستون C18 به ابعاد  $4/6\text{ mm} \times 250\text{ mm}$  با ذرات به قطر ۰/۵ میکرون، حجم تزریق ۲۰ میکرولیتر و دمای ستون ۲۳ درجه سانتی‌گراد، با سرعت جریان ۱ میلی‌لیتر در دقیقه انجام شد. برای آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين مخلوطی از استونیتریل ۰/۸۸، متانول ۰/۱۰ و بافر فسفات به عنوان فاز متحرک استفاده شد. کل کربن آلی (TOC)، با استفاده از آنالیزگر کل کربن آلی SHIMADZU، VCHS/CSN ساخت ژاپن اندازه‌گیری شد. لامپ‌های UV مورد استفاده در این مطالعه، با شدت‌های ۴،

تجزیه موثر پرسولفات سدیم و تولید رادیکال‌های  $OH^{\cdot-}$  و  $SO_4^{\cdot-}$  می‌شوند (Jorfi et al., 2016; Shiraz et al., 2018). مطالعه‌ای توسط Shankaraiah et al. (2016) در باره تجزیه آنتی بیوتیک نورفلوکساسین در محلول آبی با استفاده از فرآیندهای اکسیداسیون پیشرفته انجام شد. براساس نتایج این مطالعه در شرایط بهینه شامل pH برابر ۳، غلظت  $H_2O_2$  برابر ۲۰۰ میلی گرم در لیتر، غلظت آهن برابر ۳۰ میلی گرم در لیتر و غلظت اولیه دارو برابر ۱۵۰ ppm، بالاترین راندمان حذف آنتی بیوتیک با روش فوتوفنتون به دست آمد که سبب حذف ۹۶ درصدی نورفلوکساسین شد.

### ۳-۲- تاثیر pH محلول

pH محلول، به دلیل تاثیر در تغییر درجه یونیزاسیون آلاینده‌ها و اکسیدان‌ها ویژگی‌های سطح و حلالیت عوامل واکنش، یکی از موثرترین پارامترها در سیستم‌های اکسیداسیون است (Kermani et al., 2018b; Rezaei Kalanry et al., 2016). اثر pH در محدوده ۲، ۴، ۶، ۸ و ۱۰ بر بازدهی حذف آنتی بیوتیک آزیترومایسین در حضور ۰/۲ گرم بر لیتر، یون آهن و ۳ میلی مولار پرسولفات سدیم برای غلظت ۲۰ میلی گرم بر لیتر آنتی بیوتیک آزیترومایسین، طی زمان واکنش ۶۰ دقیقه و در حضور لامپ UV با شدت اشعه ۸ وات انجام گرفت. در این آزمایش، با افزایش pH از ۲ به ۱۰، بازدهی فرایند در حذف آزیترومایسین در مدت زمان ۶۰ دقیقه، از ۸۱٪ به ۴۳٪ کاهش می‌یابد. به عبارت دیگر، این فرایند برای حذف آنتی بیوتیک آزیترومایسین در محیط‌های اسیدی عملکرد بهتری در مقایسه با محیط‌های خنثی و قلیایی دارد. بنابراین، مقدار pH بهینه برای انجام مراحل بعدی آزمایش، برابر ۲ در نظر گرفته می‌شود. نتایج توضیحات فوق، در شکل ۱ نشان داده شده است.

نتایج به دست آمده از این تحقیق، با نتایج سایر محققان ارتباط معناداری دارد. خزایی و همکاران (۱۳۹۸) در بررسی کارایی فرایند UV/پراکسی مونو سولفات در حذف آنتی بیوتیک سفکسیم از محلول‌های آبی، به این نتیجه رسیدند که با افزایش pH محلول از ۳ به ۹، میزان راندمان حذف آنتی بیوتیک سفکسیم از ۹۷٪ به ۹۳٪ کاهش می‌یابد. کمانی و همکاران (۱۳۹۷) در مورد کارایی فرایند تلفیقی اولتراسونیک-پرسولفات در کاهش مواد آلی فاضلاب سنتتیک لبنی مطالعه‌ای را انجام دادند و به این نتیجه رسیدند که راندمان کلی فرایند در pH اسیدی نسبت به pH قلیایی برتری دارد؛ به طوری که با افزایش pH از ۵ به ۹، کارایی فرایند حذف مواد آلی از فاضلاب سنتتیک کاهش می‌یابد.

انتخاب و سایر پارامترها ثابت در نظر گرفته شدند. مقدار بهینه و تاثیر هر یک از متغیرها بر میزان حذف آنتی بیوتیک آزیترومایسین مشخص شد. تمامی آزمایشات، با سه بار تکرار و انحراف معیاری در حدود کمتر از ۵٪ انجام شد. پس از بهینه‌سازی فرآیند، سینتیک تخریب و مطالعات درجه معدنی‌سازی صورت گرفت. همچنین، کارایی فرایند در نمونه فاضلاب واقعی بیمارستانی حاوی آنتی بیوتیک آزیترومایسین تحت شرایط بهینه بررسی و در نهایت میزان حذف آنتی بیوتیک آزیترومایسین (R%) و میزان معدنی‌سازی از معادلات (۵ و ۶) محاسبه شد.

$$Re\% = \left( \frac{C_0 - C_t}{C_0} \right) \times 100 \quad (5)$$

که  $C_0$ : نشان دهنده غلظت اولیه و  $C_t$ : نشان دهنده غلظت نهایی آنتی بیوتیک (میلی گرم در لیتر) است.

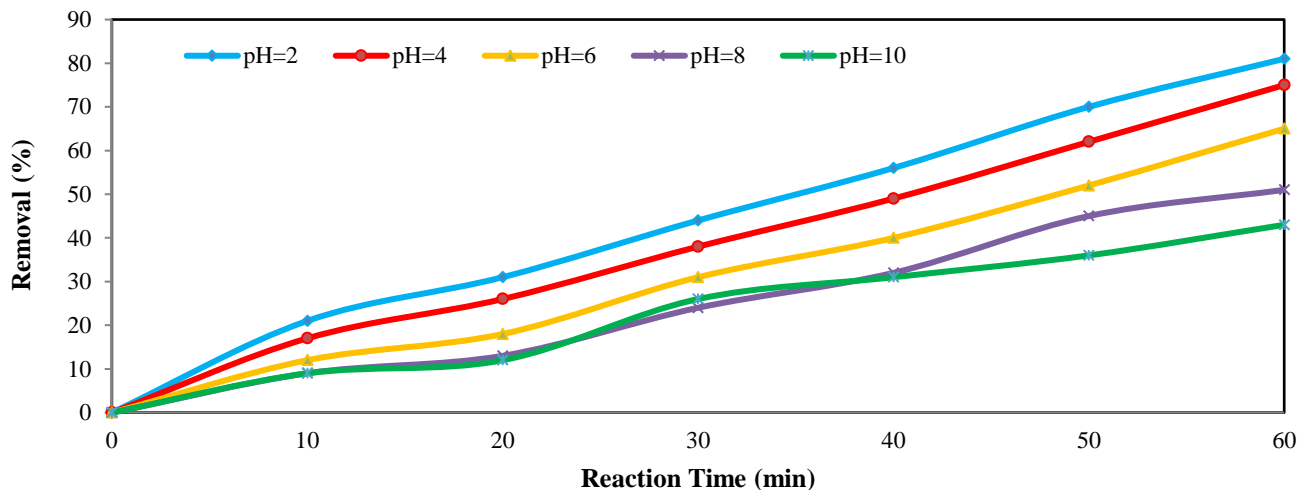
$$\text{Mineralization}(\%) = \left( \frac{TOC_T}{TOC_0} \right) \times 100 \quad (6)$$

که  $TOC_0$  و  $TOC_T$ : به ترتیب نشان دهنده میزان کل کربن آلی اولیه و میزان کل کربن آلی نهایی (میلی گرم در لیتر) است. در این تحقیق، اندازه‌گیری تمام پارامترهای فیزیکی و شیمیایی براساس آخرین روش‌های ارائه شده کتاب استاندارد متد ویرایش ۲۰ انجام گرفته است.

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- عملکرد فرایند

حذف آنتی بیوتیک‌ها با استفاده از فرایندهای منفرد، به دلیل قدرت اکسیداسیون ناچیز پرسولفات سدیم و اشعه ماورای بنفش دارای راندمان پایین هستند که می‌تواند ناشی از عدم وجود رادیکال‌های اکسیدکننده برای تخریب کارآمد آلاینده‌ها نیز باشد (Norzaee et al., 2017; Takdastan et al., 2018). عملکرد مولکول‌های پرسولفات سدیم به همراه اشعه ماورای بنفش، توانایی بیشتری در حذف آنتی بیوتیک نسبت به یون آهن موجود در سرباره دارد. در نتیجه می‌توان تولید بیشتر رادیکال‌های سولفات در واکنش بین پرسولفات سدیم و اشعه ماورای بنفش نسبت به یون آهن را توصیف کرد (Jafari et al., 2017; Jorfi et al., 2017). اما اتصال  $Fe^{+2}$  موجود در سرباره، پرسولفات سدیم و اشعه ماورای بنفش با یکدیگر، باعث افزایش حذف آنتی بیوتیک می‌شود که این امر، به دلیل وجود فعال کننده‌های مختلفی است که منجر به



شکل ۱- تاثیر مقادیر مختلف pH بر بازدهی حذف آزیترومایسین توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد

یون فروس به ۰/۵ گرم بر لیتر، بازدهی آن به ۷۹/۱٪ کاهش یافت. نتایج نشان داد که افزایش مقادیر یون فروس، تا یک حد مشخصی می‌تواند بازدهی فرایند در حذف آنتی‌بیوتیک را ارتقا دهد و افزایش بیشتر غلظت یون فروس، تاثیر قابل توجهی بر روی بازدهی فرایند ندارد. این پدیده را می‌توان به تاثیر  $SO_4^{2-}$  با وجود یون‌های آهن اضافی و خود اتصالی ذرات آهن که باعث کاهش تعداد مکان‌های واکنش‌دهنده کاتالیزور در غلظت‌های بیشتر می‌شود، نسبت داد (Babaei et al., 2015). در نتیجه، غلظت بهینه یون فروس برای حذف حداکثری آزیترومایسین برابر با ۰/۴ گرم بر لیتر انتخاب شد. در بسیاری از مطالعات مشابه پیرامون حذف آلاینده‌ها توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته منوپرسولفات، یافته‌های مشابهی توسط محققان گزارش شده است. حمزه‌زاده و همکاران (۱۳۹۶) در بررسی عملکرد فرایند نانو/ پرسولفات در حذف مترونیدازول از محلول‌های آبی دریافتند که افزایش غلظت آهن دو ظرفیتی از مقادیر مشخص، باعث افزایش حجم لجن و کاهش کارایی فرآیند به علت پدیده جذب رادیکال‌های پرسولفات توسط آهن دو ظرفیتی می‌شود. در مطالعه‌ای که توسط Ahmadi et al. (2017b) با هدف ارزیابی فرایند فوتوفنتون در حذف آلاینده‌های آنیلین و بنزوتریازول صورت‌گرفت، مشاهده شد که افزایش بیش از حد یون‌های آهن در محیط واکنش اثر نامطلوبی بر روی عملکرد فرایند دارد. آنان دو دلیل عمده را برای این پدیده گزارش کردند: الف) واکنش یون‌های اضافی فروس با رادیکال‌های آزاد و ممانعت از واکنش آن‌ها با ترکیبات آلی ب) تولید مقادیر مازاد رادیکال‌های آزاد در محلول واکنش که طی واکنش با یکدیگر منجر به تولید مجدد  $S_2O_8^{2-}$  می‌شوند.

رادیکال‌های هیدروکسیل، بیشتر می‌توانند در محیط‌های قلیایی تشکیل شوند؛ در حالی که غلظت رادیکال سولفات ( $SO_4^{\cdot-}$ ) در شرایط اسیدی بیشتر است (Rao et al., 2014; Xu and Li, 2010; García Perdomo et al., 2022). از آنجایی که رادیکال‌های سولفات، پتانسیل اکسیداسیون بیشتری نسبت به هیدروکسیل دارند، حذف بیشتر آلاینده‌ها در مقادیر pH اسیدی امکان‌پذیر است (Avetta et al., 2015; Kim et al., 2020). در شرایط بسیار اسیدی، فراوانی یون‌های هیدروژن ( $H^+$ ) ممکن است منجر به تجزیه مولکول‌های پرسولفات سدیم و مهار هر دو رادیکال هیدروکسیل و سولفات شوند (Kermani et al., 2018a; Li et al., 2017; Tavassoli et al., 2018). کاهش حذف آنتی‌بیوتیک در شرایط قلیایی، می‌تواند ناشی از رسوب هم‌زمان آهن و تشکیل کمپلکس هیدروکسید، تبدیل رادیکال‌های سولفات به رادیکال‌های هیدروکسید باشد که گونه‌هایی با پتانسیل اکسیداسیون پایین‌تر تولید می‌کند (Rao et al., 2014; Shiraz et al., 2018).

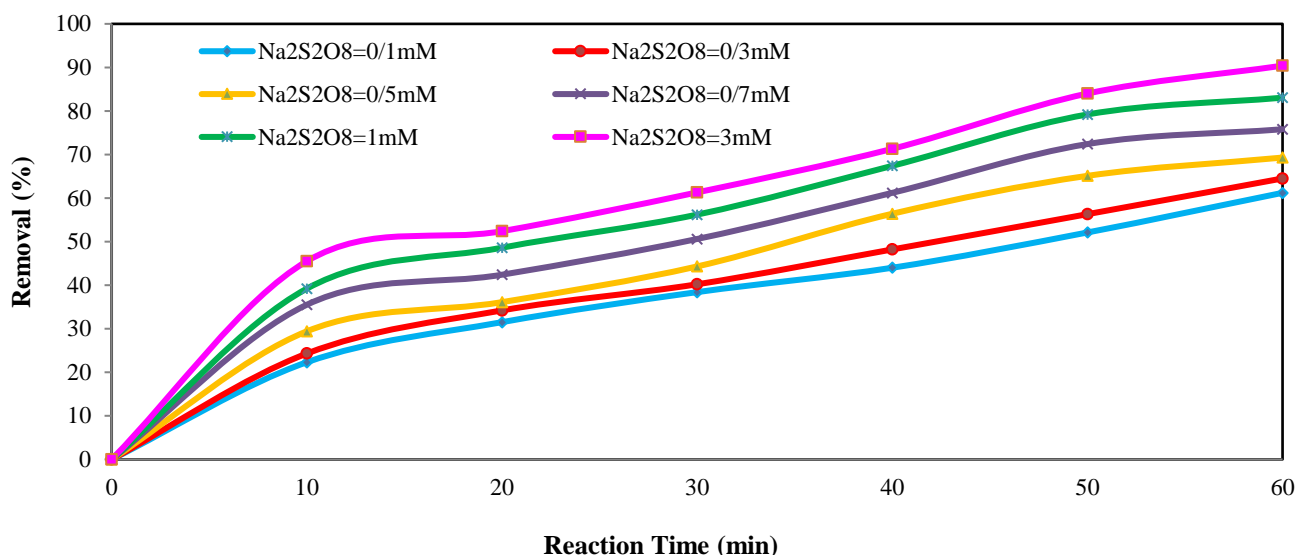
### ۳-۳- تاثیر غلظت‌های مختلف آهن موجود در سرباره صنایع فولاد

در این مرحله، تاثیر غلظت‌های مختلف یون فروس موجود در سرباره صنایع فولاد بر حذف آزیترومایسین، در pH بهینه برابر با ۲ و در حضور ۲ میلی‌مولار پرسولفات سدیم، طی مدت زمان ۶۰ دقیقه، در حضور لامپ UV با شدت ۸ وات و دمای ۲۰ درجه سانتی‌گراد اندازه‌گیری شد. بعد از ۶۰ دقیقه واکنش و با افزایش غلظت یون آهن از ۰/۱ به ۰/۴ گرم بر لیتر، بازدهی حذف برای آزیترومایسین از ۵۸/۲٪ به ۸۵٪ افزایش و سپس با افزایش مقدار

## ۴-۳- تاثیر غلظت پرسولفات سدیم

لیتر یون فروس، pH برابر ۲، طی مدت زمان ۶۰ دقیقه و در حضور اشعه ماورای بنفش با شدت ۸ وات انجام شد. طی نتایج به دست آمده و مطابق شکل ۲ مشاهده شد که بازدهی حذف آنتی بیوتیک با افزایش مقدار پرسولفات سدیم از ۰/۱ به ۲ میلی مولار، افزایش می یابد.

غلظت پرسولفات سدیم به دلیل تولید رادیکال های اکسیدکننده سولفات، تاثیر قابل توجهی در اکسیداسیون آنتی بیوتیک هدف دارد. در این مرحله، تاثیر مقادیر مختلف اکسیدان پرسولفات سدیم در ۷ سطح ۰/۱، ۰/۳، ۰/۵، ۰/۷۵، ۱، ۱/۵، ۲ میلی مولار در حذف آزیترومايسين در حضور ۰/۴ گرم بر



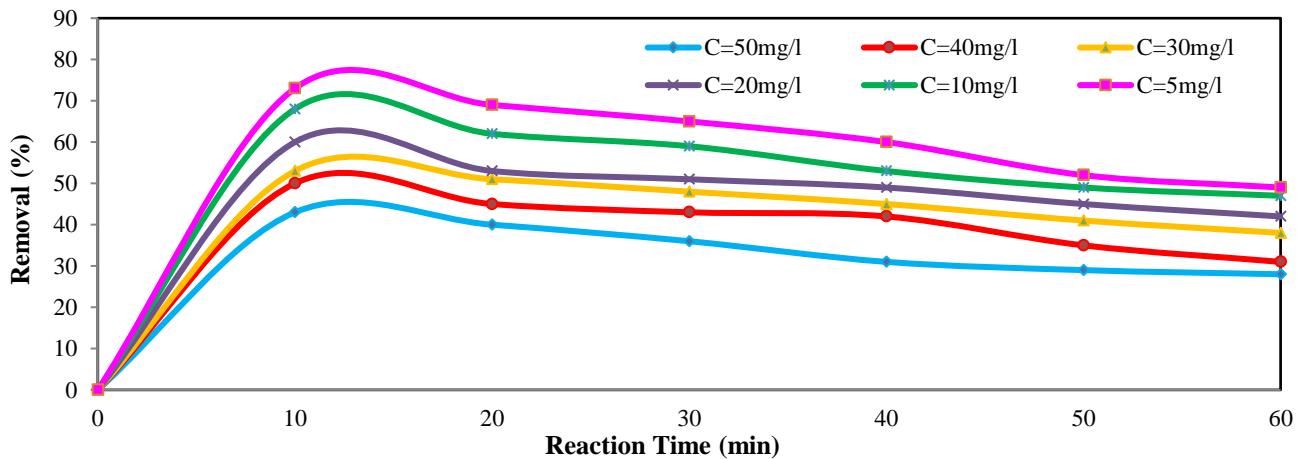
شکل ۲- تاثیر مقادیر مختلف پرسولفات سدیم بر بازدهی حذف آزیترومايسين توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد و یون های فلزی

فنل در محیط های آبی با کاربرد پرسولفات فعال شده با نانو ذرات آهن صفر ظرفیتی انجام دادند، به این نتیجه رسیدند که با افزایش غلظت پرسولفات از ۲۵ به ۵۰۰ میلی گرم در لیتر کارایی حذف فنل افزایش می یابد؛ به طوری که کارایی حذف فنل از حدود ۵٪ در غلظت ۲۵ میلی گرم در لیتر پرسولفات به حدود ۸۹٪ در غلظت ۲۵۰ میلی گرم در لیتر و ۹۸/۵٪ در غلظت ۵۰۰ میلی گرم در لیتر پرسولفات می رسد.

## ۳-۵- تاثیر غلظت آنتی بیوتیک آزیترومايسين

برای انجام این مرحله از آزمایش، آنتی بیوتیک آزیترومايسين در غلظت های ۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰ و ۵۰ میلی گرم بر لیتر و pH برابر ۲، سطح دمایی ۲۰ درجه سانتی گراد، زمان واکنش ۶۰ دقیقه و غلظت پرسولفات سدیم ۲ میلی مولار بررسی شد. همان طور که در شکل ۳ نشان داده شده است، وقتی غلظت اولیه آنتی بیوتیک از ۵ میلی گرم در لیتر به ۵۰ میلی گرم در لیتر افزایش می یابد، بازدهی حذف آزیترومايسين به ترتیب از ۷۳٪ به ۴۹٪ کاهش می یابد.

بازدهی حذف برای مقادیر ۰/۱ و ۲ میلی مولار پرسولفات سدیم برای آزیترومايسين برابر با ۶۱٪ و ۹۴٪ بوده و حداکثر راندمان حذف آنتی بیوتیک آزیترومايسين در غلظت ۲ میلی مولار پرسولفات سدیم به دست آمده است. بنابراین، مقدار پرسولفات سدیم بهینه در این آزمایش، برابر ۲ میلی مولار در نظر گرفته می شود. با استفاده از غلظت های بیشتر پرسولفات سدیم، تعداد بیشتری رادیکال سولفات تولید می شود که حذف آلاینده ها را تسریع می کند (Ahmadi et al., 2017b; Babaei et al., 2017). در واقع، با افزایش نسبت مولی پرسولفات سدیم نسبت به آلاینده، مولکول های اکسیدان بیشتری برای حذف مواد آلی تشکیل می شود که کارایی حذف را بهبود می بخشد (Jafari et al., 2017; Kermani et al., 2018b). حمزه زاده و همکاران (۱۳۹۶) مطالعه ای با عنوان بررسی کارایی فرایند نانو / پرسولفات در حذف آنتی بیوتیک مترونیدازول انجام دادند و به این نتیجه رسیدند که هرچه میزان غلظت پرسولفات بیشتر باشد، میزان حذف آنتی بیوتیک مترونیدازول بیشتر است. در مطالعه ای که Shokouhi et al. (2017) با عنوان اکسیداسیون سونوشیمیایی



شکل ۳- تاثیر غلظت‌های مختلف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین بر بازدهی حذف آن توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد

بنفش ۴، ۶ و ۸ وات در نظر گرفته شد. طبق نتایج به دست آمده که در جدول ۱ ارائه شده است، میزان حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین رابطه مستقیمی با شدت اشعه ماورای بنفش دارد.

جدول ۱- تاثیر شدت اشعه ماورای بنفش (UV) بر بازدهی حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین

اشعه ماورای بنفش (وات)	۴	۶	۸
درصد حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین	۸۶/۳٪	۹۱/۴٪	۹۸/۲٪

بازدهی حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین، هنگامی که شدت اشعه ماورای بنفش برابر ۴، ۶ و ۸ وات باشد، به ترتیب برابر با ۸۱/۵، ۸۶/۴ و ۹۷ درصد به دست آمد. بنابراین حداکثر راندمان حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین در این آزمایش، در شدت ۸ وات اشعه ماورای بنفش حاصل شد؛ لذا، لامپ UV با شدت ۸ وات برای ادامه آزمایش‌ها انتخاب و استفاده شد. این پدیده را می‌توان به تأثیر مهار ( $SO_4^{\bullet-}$ ) به علت تولید یون‌های آهن اضافی از سنگدانه‌ها و متصل شدن ذرات آهن که تعداد مکان‌های واکنش‌دهنده کاتالیزور را در غلظت‌های بالا کاهش می‌دهد، نسبت داد (Jorfi et al., 2017). (Jorfi et al., 2017). در بررسی بازدهی فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته بر روی تجزیه مواد آلی نشان دادند که با افزایش شدت امواج UV، میزان تجزیه مواد آلی به‌طور قابل‌ملاحظه‌ای افزایش می‌یابد و حداکثر بازدهی معدنی‌سازی فرایند در بالاترین شدت لامپ UV حاصل شده است. در مطالعه‌ای دیگر که توسط Barndök et al. (2016) بر روی کاربرد فرایند فوتوفنتون در تجزیه مواد آلی صورت گرفت، مشاهده شد که عملکرد فرایند در تجزیه مواد آلی در شدت‌های

حذف آنتی‌بیوتیک با غلظت اولیه آن، رابطه مستقیم دارد (Ferkous et al., 2017). به‌طور کلی در غلظت‌های پایین، مولکول‌های آلاینده می‌توانند به‌طور عمده حذف شوند؛ زیرا تعداد گونه‌های واکنش‌پذیر کافی است. این درحالی است که در غلظت‌های بیشتر آلاینده کمبود رادیکال‌های اکسیدکننده باعث رقابت بین واسطه‌ها و مولکول‌های آلاینده برای گونه‌های واکنش‌پذیر می‌شود (Esrafilii et al., 2016; Ghauch et al., 2017; Jafari et al., 2017). در مطالعه‌ای که خزایی و همکاران (۱۳۹۸) با عنوان بررسی کارایی فرایند UV/پراکسی مونسولفات در حذف آنتی‌بیوتیک سفکسیم از محلول‌های آبی انجام دادند، به این نتیجه رسیدند که با افزایش غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک از ۵ به ۲۰ میلی‌گرم در لیتر، کارایی حذف آنتی‌بیوتیک سفکسیم از ۹۳/۱۸ به ۹۱/۳۷ درصد کاهش پیدا می‌کند؛ یعنی میزان غلظت آنتی‌بیوتیک با میزان کارایی فرایند حذف رابطه معکوس دارد. در مطالعه‌ای که حمزه‌زاده و همکاران (۱۳۹۶) به‌عنوان بررسی فرایند نانو/پرسولفات در حذف آنتی‌بیوتیک مترونیدازول از محیط‌های آبی انجام دادند، به این نتیجه رسیدند که در شرایط بهینه، بیشترین راندمان حذف مربوط به زمانی است که مترونیدازول در کمترین غلظت خود است.

### ۳-۶- تاثیر شدت اشعه ماورای بنفش (UV)

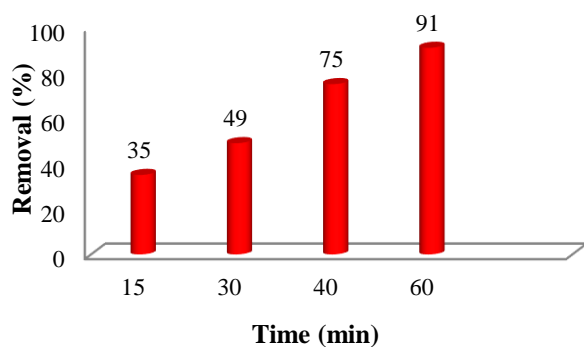
در فرایند اکسیداسیون پیشرفته، شدت اشعه ماورای بنفش عامل مهمی در حذف آلاینده‌ها است. در این مرحله از آزمایش، آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین در غلظت ۵ میلی‌گرم بر لیتر، pH برابر ۲، دمای ۲۰ درجه سانتی‌گراد، زمان واکنش ۶۰ دقیقه، غلظت پرسولفات سدیم ۲ میلی‌مولار و میزان شدت اشعه ماورای

دارد.

Kordestani et al. (2020) مطالعه‌ای با عنوان اکسیداتیو فتوفنتون فاضلاب دارویی حاوی آنتی بیوتیک‌های مروپنم و سفتریاکسون انجام دادند. براساس نتایج این مطالعه با افزایش دما از ۲۰ به ۵۰ درجه سانتی‌گراد، سرعت تجزیه مروپنم و سفتریاکسون به ترتیب از ۹۲ به ۹۷/۲ درصد و از ۸۸ به ۹۳/۴ درصد طی واکنش ۶۰ دقیقه‌ای افزایش یافت. از این مطالعه، می‌توان نتیجه گرفت که دما بر تجزیه مولکول‌های آلاینده‌های هدف تأثیر مؤثری دارد.

### ۳-۸- بررسی تأثیر اثر زمان

در این مرحله، آزمایش با استفاده از سطح بهینه دما، pH، پرسولفات سدیم و غلظت بهینه آنتی‌بیوتیک و در سطوح زمانی ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه انجام شد. میزان دمای بهینه ۴۰ درجه سانتی‌گراد، pH برابر ۲، ۲ میلی‌مولار پرسولفات سدیم و میزان آنتی‌بیوتیک ۵ میلی‌گرم در لیتر است. طبق نتایج به دست آمده که در شکل ۵ نشان داده شده، در سطوح بهینه پارامترها، بهترین زمان واکنش برای حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین ۶۰ دقیقه است.



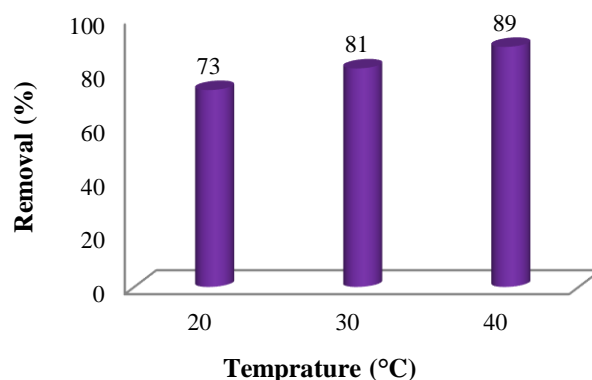
شکل ۵- تأثیر مقادیر مختلف زمان واکنش بر بازدهی حذف آزیترومایسین در سطوح زمانی (۱۵-۶۰) دقیقه

Khalooet al. (2021) مطالعه‌ای با عنوان سنتز و کاربرد فتوکاتالیست  $TiO_2/SiO_2/rGO$  در تخریب فتوشیمیایی اریترومایسین از محلول‌های آبی را انجام دادند. نتایج مطالعه اثر مدت زمان تابش نشان داد با افزایش زمان واکنش فتوکالیزوری تخریب اریترومایسین، راندمان حذف افزایش یافته و در ۱۴۰ دقیقه این واکنش کامل می‌شود. با افزایش زمان گونه‌های فعال تولید شده در سطح فتوکاتالیست، زمان بیشتری برای تماس با آلاینده و انجام بیشتر واکنش‌های اکسیداسیون تخریبی خواهند داشت.

بالتر لامپ UV مطلوب‌تر بوده و ارتقای نرخ تجزیه ماده آلی به دلیل تولید بیشتر رادیکال‌های اکسنده در سیستم، در شدت‌های بالاتر امواج نور UV حاصل می‌شود.

### ۳-۷- تأثیر دمای محلول

دما در تجزیه مولکول‌های پرسولفات سدیم و تولید رادیکال‌های سولفات در سیستم اکسیداسیون پیشرفته، نقش انکارناپذیری دارد. در این مرحله، عملکرد فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرپاره صنایع فولاد در حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین با غلظت اولیه ۵ میلی‌گرم در لیتر و در محدوده دمایی ۲۰، ۳۰ و ۴۰ درجه سانتی‌گراد، pH برابر ۲، مدت زمان واکنش ۶۰ دقیقه، میزان اشعه ماورای بنفش ۸ وات و غلظت پرسولفات سدیم ۲ میلی‌مولار بررسی شد و نتایج آن در شکل ۴ ارائه شده است.



شکل ۴- تأثیر دمای محلول بر روی بازدهی حذف آزیترومایسین توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرپاره صنایع فولاد در محدوده ۲۰، ۳۰ و ۴۰ درجه سانتی‌گراد

نتایج بیانگر آن است که بعد از ۶۰ دقیقه واکنش، افزایش دمای محلول تأثیر مطلوبی بر روی عملکرد فرایند مذکور در حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین داشته؛ به گونه‌ای که با افزایش دمای محلول از ۲۰ به ۴۰ درجه سانتی‌گراد، راندمان حذف آزیترومایسین از ۷۳٪ به ۸۹٪ افزایش یافته است. در نتیجه، دمای ۴۰ درجه سانتی‌گراد به عنوان دمای بهینه برای حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرپاره صنایع فولاد انتخاب شد. علت احتمالی این افزایش را می‌توان به افزایش درصد تجزیه پرسولفات سدیم و تشکیل بیشتر رادیکال‌های سولفات ( $SO_4^{\bullet-}$ ) در دمای بالاتر نسبت داد (Tan et al., 2012; Ji et al., 2015). نتایج این تحقیق، با مطالعات انجام شده توسط سایر محققان کاملاً مطابقت



### ۳-۹- مطالعات معدنی‌سازی و تجزیه بیولوژیکی

میزان معدنی‌سازی توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد، با استفاده از دو شاخص COD و TOC مورد ارزیابی قرار گرفت. در این مرحله، آزمایش‌های اکسیداسیون تحت شرایط بهینه طی مدت زمان ۶۰ دقیقه انجام شدند و سپس غلظت‌های COD و TOC سنجش شد. نتایج نشان داد که فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد، تحت شرایط بهینه قادر است  $57/4\%$  از COD و  $43/8\%$  از TOC را برای آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین حذف نماید. عدم تخریب کامل COD و TOC به دلیل واسطه‌های مختلف است که به راحتی در مقایسه با ترکیبات اصلی اکسید نمی‌شوند (Kermani et al., 2018b). در سایر مطالعات پیرامون فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته، حذف کامل COD حاصل نشده که با نتایج به دست آمده در مطالعه حاضر هم‌خوانی دارند. (Takdastan et al. (2018) در بررسی عملکرد فرایند فوتوفنتون در حذف آزیترومایسین از محیط‌های آبی، بازدهی معدنی‌سازی را بر مبنای شاخص TOC برابر با  $43/7\%$  گزارش کردند. در مطالعه (Mondal et al. (2018) در نتیجه استفاده از فرایند فوتوفنتون اصلاح شده، بازدهی معدنی‌سازی بر مبنای شاخص TOC ۶۰ درصد گزارش شد.

در پایان آزمایش Zahn-Wellens (تجزیه‌پذیری زیستی)، نمونه‌های حاوی آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین قبل و بعد از تصفیه توسط فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با یون‌های آهن موجود در سرباره صنایع فولاد، به همراه یک نمونه شاهد مورد ارزیابی قرار گرفت. در طول دوره، ۲۸ روزه مقادیر COD باقی‌مانده هر سه نمونه مورد سنجش قرار گرفت. نتایج به دست آمده نشان می‌دهد که مقادیر باقی مانده COD آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین، برای هر دو نمونه (نمونه خام و تصفیه شده) روند کاهشی داشته و مقادیر COD نمونه فاضلاب خام از ۴۵ به  $28/7$  میلی‌گرم بر لیتر و برای نمونه تصفیه شده از  $20/4$  به  $6/8$  میلی‌گرم بر لیتر کاهش یافت. هم‌چنین با افزایش زمان تصفیه بیولوژیکی، درصد تجزیه زیستی هر دو نمونه خام و تصفیه شده افزایش پیدا کرده و درصد تجزیه‌پذیری زیستی برای نمونه‌های تصفیه شده به مراتب بیشتر از نمونه‌های خام بود؛ به گونه‌ای که میزان تجزیه‌پذیری زیستی آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین  $42\%$  برای نمونه خام و  $78/6\%$  برای نمونه تصفیه شده حاصل شد.

### ۳-۱۰- بررسی بازدهی فرایند اکسیداسیون پیشرفته پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد در حذف آنتی‌بیوتیک تتراسایکین از نمونه فاضلاب واقعی بیمارستان نفت اهواز

در این مرحله از آزمایش، پس از تهیه نمونه فاضلاب از تصفیه‌خانه فاضلاب بیمارستان بزرگ نفت اهواز و اندازه‌گیری برخی مشخصات شیمیایی که شامل COD برابر  $590$  میلی‌گرم در لیتر، BOD برابر  $350$  میلی‌گرم در لیتر و میزان pH برابر  $6/7$  بود و سنجش میزان آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین، مشاهده شد که در بعضی از روزها، نمونه فاضلاب حاوی غلظت‌های بسیار پایین (کمتر از  $20$  میکروگرم در لیتر) آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین و در زمان‌هایی هم نمونه‌ها حاوی  $20$  الی  $21$  میلی‌گرم در لیتر آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین بود. در نهایت، به منظور ارزیابی بازدهی فرایند، غلظت آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین در نمونه فاضلاب واقعی،  $20$  میلی‌گرم در لیتر در نظر گرفته شد. پس از شناسایی ویژگی‌های پساب، عملکرد فرایند اکسیداسیون پیشرفته مونو پرسولفات سدیم فعال شده با سرباره صنایع فولاد تحت شرایط بهینه در حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین از نمونه فاضلاب واقعی، مورد ارزیابی و با بازدهی فرایند برای نمونه‌های سنتتیک مورد مقایسه قرار گرفت. تحت این شرایط، بازدهی حذف آزیترومایسین برای نمونه‌های سنتتیک  $93/4\%$  و برای نمونه‌های واقعی فاضلاب  $78\%$  به دست آمد.

راندمان حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین برای نمونه‌های واقعی، تا حدودی کمتر از نمونه سنتتیک بوده است. کاهش بازدهی فرایند در نمونه واقعی، ممکن است به دلیل حضور عوامل مزاحم نظیر کاتیون‌ها و آنیون‌ها و یا دیگر مواد آلی باشد. حضور کاتیون‌ها و آنیون‌ها، در این جا می‌توانند در نقش اسکاونجرهای معدنی وارد واکنش شده و رادیکال‌های آزاد موجود در سیستم را مصرف نمایند. بنابراین، از این طریق مانع واکنش بین رادیکال‌های آزاد و ماده آلی می‌شوند. در فاضلاب بیمارستانی، طیف گسترده‌ای از ترکیبات دارویی و آلی حضور داشته که می‌توانند با رادیکال‌های آزاد واکنش دهند و آن‌ها را مصرف کنند. از این رو، بازدهی حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین کاهش می‌یابد.

### ۴- نتیجه گیری

بر اساس یافته‌های به دست آمده، فرایند اکسیداسیون پیشرفته مونوپرسولفات سدیم فعال شده با یون‌های آهن موجود در سرباره صنایع فولاد، در شرایط بهینه و خاصی که در آن غلظت پرسولفات

مونوسولفات در حذف آنتی‌بیوتیک سفیکسیم از محلول‌های آبی"، *مجله علمی دانشگاه علوم پزشکی کردستان*، ۲۴(۴)، ۲۲-۴۰.

Ahmadi, M., Kakavandi, B., Jaafarzadeh, N., and Babaei A.A., (2017a), "Catalytic ozonation of high saline petrochemical wastewater using PAC@ FeIIIFe2IIIO4: Optimization, mechanisms and biodegradability studies", *Separation and Purification Technology*, 177, 293-303.

Ahmadi, M., Kakavandi, B., Jorfi, S., and Azizi, M., (2017b), "Oxidative degradation of aniline and benzotriazole over PAC@ FeIIIFe2IIIO4: A recyclable catalyst in a heterogeneous photo-Fenton-like system", *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 336, 42-53.

Avetta, P., Pensato, A., Minella, M., Malandrino, M., Maurino, V., Minero, C., Hanna, K., and Vione, D., (2015), "Activation of persulfate by irradiated magnetite: Implications for the degradation of phenol under heterogeneous photo-Fenton-like conditions", *Environmental science and Technology*, 49(2), 1043-1050.

Babaei, A.A., Azari, A., Kalantary, R.R., and Kakavandi, B., (2015), "Enhanced removal of nitrate from water using nZVI@MWCNTs composite: Synthesis, kinetics and mechanism of reduction", *Water Science and Technology*, 72(11), 1988-1999.

Babaei, A.A., Kakavandi, B., Rafiee, M., Kalantarhormizi, F., Purkaram, I., Ahmadi, E., and Esmaeili, S., (2017), "Comparative treatment of textile wastewater by adsorption, Fenton, UV-Fenton and US-Fenton using magnetic nanoparticles-functionalized carbon (MNPs@C)", *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 56, 163-174.

Barndök, H., Blanco, L., Hermosilla, D., and Blanco, Á., (2016), "Heterogeneous photo-Fenton processes using zero valent iron microspheres for the treatment of wastewaters contaminated with 1, 4-dioxane", *Chemical Engineering Journal*, 284, 112-121.

Esrafil, A., Rezaei Kalantary, R., Azari, A., Ahmadi, E., and Gholami, M., (2016), "Removal of diethyl phthalate from aqueous solution using persulfate-based (UV/Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>8</sub>/Fe<sup>2+</sup>) advanced oxidation process", *Journal of Mazandaran University of Medical Sciences*, 25(132), 122-135.

Ferkous, H., Merouani, S., Hamdaoui, O., and Pétrier, C., (2017), "Persulfate-enhanced sonochemical degradation of naphthol blue black in water: Evidence of sulfate radical formation", *Ultrasonics sonochemistry*, 34, 580-587.

Gao, L., Shi, Y., Li, W., Niu, H., Liu, J., and Cai, Y., (2012), "Occurrence of antibiotics in eight sewage treatment plants in Beijing, China", *Chemosphere*, 86(6), 665-671.

García Perdomo, C.M., Ramírez Minota, P.A., Zúñiga-Benítez, H., and Peñuela, G.A., (2022), "Cephalexin removal by persulfate activation using simulated sunlight and ferrous ions", *Water Science and Technology*, 85(1), 52-62.

سدیم ۲ میلی‌مولار، pH برابر ۲، میزان یون‌های آهن موجود در سرباره صنایع فولاد ۰/۴ گرم در لیتر، شدت اشعه ماورای بنفش ۸ وات و در مدت زمان تماس ۶۰ دقیقه باشد، قادر به حذف آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین به میزان ۹۳/۴٪ از فاضلاب سنتتیک و ۷۸٪ از فاضلاب واقعی بیمارستانی است. هم‌چنین راندمان حذف با مقدار pH محلول رابطه عکس داشت و استفاده از دوزهای آهن تا ۰/۴ میلی‌گرم در لیتر منجر به حذف بیشتر آنتی‌بیوتیک شد. هم‌چنین، با افزایش غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین از ۵ به ۵۰ میلی‌گرم در لیتر، راندمان حذف از ۷۳٪ به ۴۹٪ کاهش یافت؛ در حالی‌که با افزودن دوزهای بیشتر پرسولفات سدیم به محلول، سیستم توانایی بالاتری در حذف آنتی‌بیوتیک از محلول آبی نشان داد. این فرایند، عملکرد موثری در افزایش قابلیت تجزیه‌پذیری زیستی آلاینده‌های آلی داشته و می‌تواند به‌عنوان یک روش موثر در پیش‌تصفیه فاضلاب‌های حاوی آنتی‌بیوتیک و یا مواد آلی سخت تجزیه‌پذیر و قبل از فرایندهای بیولوژیکی مورد استفاده قرارگیرد. در نهایت، سیستم اکسیداسیون پیشرفته بر پایه رادیکال سولفات با اکسیداسیون بالا، به‌منظور تخریب مواد آلی مقاوم به تجزیه از جمله آنتی‌بیوتیک‌ها با استفاده از اکسید آهن موجود در پسماند دور ریز سرباره صنایع فولاد به‌عنوان روشی جدید، کارآمد و بدون تولید آلودگی ثانویه در محلول‌های آبی است.

## ۵- مراجع

تک‌دستان، ا.، ابطحی، م.، سرشیر، ع.، بازفکن، م.، و سعیدی، ر.، (۱۳۹۶)، "بررسی سرباره اصلاح شده شرکت فولاد خوزستان در حذف آلومینیوم از محلول‌های آبی"، *مجله تحقیقات سلامت در جامعه*، ۳، ۷۸-۸۵.

توسلی، ص.، بذرافشان، ا.، کرد مصطفی پور، ف.، مقصودی، ز.، بالاک، د.، کمانی، ح.، و الله زارعی، ع.، (۱۳۹۷)، "کارایی پرسولفات فعال‌شده با اشعه ماورای بنفش در حذف افلوکسازین از محلول‌های آبی"، *مجله دانشگاه علوم پزشکی مازندران*، ۲۸، ۱۱۶-۱۲۹.

حمزه‌زاده، ا.، فضل‌زاده، م.، و رحمانی، ک.، (۱۳۹۶)، "بررسی کارایی فرآیند نانو/پرسولفات (nZVI/PS) در حذف مترونیدازول از محیط‌های آبی"، *مجله مهندسی بهداشت محیط*، ۴(۴)، ۳۰۷-۳۲۰.

خزایی، ر.، رحمانی، ع.، صیدمحمدی، ع.، فردمال، ج.، و لیلی، م.، (۱۳۹۸)، "بررسی کارایی فرآیند UV/پراکسی

- pharmaceutical wastewater containing meropenem and ceftriaxone antibiotics: Influential factors, feasibility, and biodegradability studies", *Toxin Reviews*, 39(3), 292-302.
- Kurt, A., Mertm, B.K., Özeninm, N., Sivrioğlu, Ö., and Yonar, T., (2017), *Treatment of antibiotics in wastewater using advanced oxidation processes (AOPs)*, Open Access Peer-Reviewed Chapter from the Edited Volume *Physico-Chemical Wastewater Treatment and Resource Recovery*, 175.
- Li, R., Kong, J., Liu, H., Chen, P., Liu, G., Li, F., and Lv, W., (2017), "A sulfate radical based ferrous-peroxydisulfate oxidative system for indomethacin degradation in aqueous solutions", *RSC Advances*, 7(37), 22802-22809.
- Liu, P., Wu, Z., Abramova, A.V., and Cravotto, G., (2021), "Sonochemical processes for the degradation of antibiotics in aqueous solutions: A review", *Ultrasonics Sonochemistry*, 74, 105566.
- Liu, X., Lee, J., Ji, K., Takeda, S., and Choi, K., (2012), "Potentials and mechanisms of genotoxicity of six pharmaceuticals frequently detected in freshwater environment", *Toxicology Letters*, 211(1), 70-76.
- Michael, I., Rizzo, L., McArdell, C., Manaia, C., Merlin, C., Schwartz, T., Dagot, C., and Fatta-Kassinos, D.J.W.R., (2013), "Urban wastewater treatment plants as hotspots for the release of antibiotics in the environment: A review", *Water Research*, 47(3), 957-995.
- Mondal, S.K., Saha, A.K., and Sinha, A., (2018), "Removal of ciprofloxacin using modified advanced oxidation processes: Kinetics, pathways and process optimization", *Journal of Cleaner Production*, 171, 1203-14
- Norzaee, S., Bazrafshan, E., Djahed, B., Kord Mostafapour, F., Khaksefidi, R., (2017), "UV activation of persulfate for removal of penicillin G antibiotics in aqueous solution", *The Scientific World Journal*, 2017, Article ID 3519487, <https://doi.org/10.1155/2017/3519487>.
- Rao, Y., Qu, L., Yang, H., and Chu, W., (2014), "Degradation of carbamazepine by Fe (II)-activated persulfate process", *Journal of Hazardous Materials*, 268, 23-32.
- Rezaei Kalantry, R., Jonidi Jafari, A., Esrafil, A., Kakavandi, B., Gholizadeh, A., and Azari, A., (2016), "Optimization and evaluation of reactive dye adsorption on magnetic composite of activated carbon and iron oxide", *Desalination and Water Treatment*, 57(14), 6411-6422.
- Shankaraiah, G., Poodari, S., Bhagawan, D., Himabindu, V., and Vidyavathi, S., (2016), "Degradation of antibiotic norfloxacin in aqueous solution using advanced oxidation processes (AOPs), A comparative study", *Desalination and Water Treatment*, 57(57), 27804-27815.
- Shiraz, A.D., Takdastan, A., and Borghei, S.M., (2018), "Photo-Fenton like degradation of catechol using persulfate activated by UV and ferrous ions: Influencing operational parameters and feasibility studies", *Journal of Molecular Liquids*, 249, 463-469.
- Ghauch, A., Baalbaki, A., Amasha, M., El Asmar, R., and Tantawi, O., (2017), "Contribution of persulfate in UV-254 nm activated systems for complete degradation of chloramphenicol antibiotic in water", *Chemical Engineering Journal*, 317, 1012-1025.
- Hu, M., (2022), "The mechanism of amoxicillin and azithromycin to treat acute tonsillitis", *Proceedings of the 3rd International Symposium on Artificial Intelligence for Medicine Sciences*, (pp. 334-338).
- Jafari, A.J., Kakavandi, B., Jaafarzadeh, N., Kalantary, R.R., Ahmadi, M., and Babaei, A.A., (2017), "Fenton-like catalytic oxidation of tetracycline by AC@ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> as a heterogeneous persulfate activator: Adsorption and degradation studies", *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 45, 323-333.
- Jeong, J., Song, W., Cooper, W.J., Jung, J., and Greaves, J., (2010), "Degradation of tetracycline antibiotics: mechanisms and kinetic studies for advanced oxidation/reduction processes", *Chemosphere*, 78(5), 533-540.
- Ji, Y., Fan, Y., Liu, K., Kong, D., and Lu, J., (2015), "Thermo activated persulfate oxidation of antibiotic sulfamethoxazole and structurally related compounds", *Water Research*, 87, 1-9.
- Jorfi, S., Barzegar, G., Ahmadi, M., Soltani, R.D.C., Takdastan, A., Saedi, R., and Abtahi, M., (2016), "Enhanced coagulation-photocatalytic treatment of Acid red 73 dye and real textile wastewater using UVA/synthesized MgO nanoparticles", *Journal of Environmental Management*, 177, 111-118.
- Jorfi, S., Kakavandi, B., Motlagh, H.R., Ahmadi, M., and Jaafarzadeh, N., (2017), "A novel combination of oxidative degradation for benzotriazole removal using TiO<sub>2</sub> loaded on FeIIFe<sub>2</sub>III<sub>2</sub>O<sub>4</sub>@C as an efficient activator of peroxy monosulfate", *Applied Catalysis B: Environmental*, 219, 216-230.
- Kermani, M., Kakavandi, B., Farzadkia, M., Esrafil, A., Jokandan, S.F., and Shahsavani, A., (2018a), "Catalytic ozonation of high concentrations of catechol over TiO<sub>2</sub>@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> magnetic core-shell nanocatalyst: Optimization, toxicity and degradation pathway studies", *Journal of Cleaner Production*, 192, 597-607.
- Kermani, M., Mohammadi, F., Kakavandi, B., Esrafil, A., and Rostamifasih, Z., (2018b), "Simultaneous catalytic degradation of 2, 4-D and MCPA herbicides using sulfate radical-based heterogeneous oxidation over persulfate activated by natural hematite ( $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/PS)", *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 117, 49-59.
- Khaloo, S.S., Ghalkhani, M., and Schooli, E., (2021), "Synthesis and application of TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>/rGO photocatalyst for photochemical degradation of erythromycin in aqueous solutions", *Journal of Health in the Field*, 9(1).
- Kim, T., Kim, S., Tak, H., Kim, K., Chung, C-W., and Lee, M., (2020), "Mechanisms at different pH for stabilization of arsenic in mine tailings using steelmaking slag", *Minerals*, 10(10), 900.
- Kordestani, B., Takdastan, A., Jalilzadeh Yengejeh, R., and Neisi, A.K., (2020), "Photo-Fenton oxidative of

- Shokouhi, R., Poureshgh, Y., Almasi, H., and Shabanloo, A., (2016), "Sonochemical oxidation of phenol using persulfate activated by zerovalent iron nanoparticles in aqueous environments", *Journal of Occup Environ Health*, 2(1), 7-17.
- Takdastan, A., Abtahi, M., Sarshir, A., Bazafkan, M., and Saeidi, R., (2017), "Investigation of Khuzestan Steel Company's modified slag in removal of Aluminum from Aqueous solutions: Adsorption isotherm and kinetic studies", *Journal of Health Research in Community*, 3(2), 78-85.
- Takdastan, A., Kakavandi, B., Azizi, M., and Golshan, M., (2018), "Efficient activation of peroxy monosulfate by using ferrous oxide supported on carbon/UV/US system: A new approach into catalytic degradation of bisphenol A", *Chemical Engineering Journal*, 331, 729-743.
- Tan, C., Gao, N., Deng, Y., An, N., and Deng, J., (2012), "Heat-activated persulfate oxidation of diuron in water", *Chemical Engineering Journal*, 203, 294-300.
- Tavassoli, P., Bazrafshan, E., Kord Mostafapour, F., Maghsoodi, Z., Balarak, D., Kamani, H., and Allah Zarei, A., (2018), "Efficiency of UV activated persulfate in removal of ofloxacin from aqueous solutions", *Journal of Mazandaran University of Medical Sciences*, 28(159), 116-129.
- Xu, X-R., and Li, X-Z., (2010), "Degradation of azo dye Orange G in aqueous solutions by persulfate with ferrous ion", *Separation and Purification Technology*, 72(1), 105-111.



This article is an open-access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC-BY) license.