

## KOKKUVÕTE

*Doksütsükliin* on maailma üks levinumatest tetratsükliini antibiootikumitest tänu oma laiale antibakteriaalsele toimele erinevate patogeenide vastu. Antud antibiootikumi aktiivne tootmine ning laialdane kasutamine meditsiini-, põllumajandus- ja veterinaarvaldkondades põhjustavad selle sattumist veekogudesse. Sellega kaasneb resistentsete mikroobikultuuride arenemine, mis alandab antibiootikumide toime efektiivsust.

Arvestades eespool nimetatud doksütsükliini negatiivset mõju keskkonnale, tuleb see vesikeskkonnast võimalikult kiiresti eemaldada. Käesolevas töös uuriti Fenton-reaktsioonide ning ultraviolettkiirguse toimet doksütsükliini lagundamisele. Katsed teostati perioodilises reaktoris toatemperatuuril  $\text{pH} = 3,0$  juures. Doksütsükliiniga saastatud vesi töödeldi fotolüüsiga ultraviolettspektris (UV), vesinikperoksiidi ja ultraviolettkiirguse kombinatsiooniga (UV/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>), foto-Fenton protsessidega (UV/Fe<sup>3+</sup>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ja UV/Fe<sup>3+</sup>), klassikalise Fentoni reagentiga (Fe<sup>2+</sup>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) ja modifitseeritud Fenton-protsessiga (Fe<sup>3+</sup>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>). Saadud tulemuste alusel teostati reaktsiooni kineetika analüüs. Üldorgaanilise süsiniku (TOC) eemaldumise põhjal kontrolliti doksütsükliini mineralisatsiooniastet reaktsiooni käigus. Fe<sup>3+</sup>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> uurimisel püstitati hüpotees, et doksütsükliini taandavate omaduste tõttu suureneb antud kombinatsiooni oksüdeerimisvõime. Nimelt taandub doksütsükliini toimel Fe<sup>3+</sup> Fe<sup>2+</sup>-ni ning oksüdeerimine toimub klassikalise Fenton-reaktsiooni mehhanismi järgi. Selleks määrati reaktsioonisegus hüdroksüülradikaalide (•OH) teke desoksüriboosi meetodil. Paralleelselt määrati ka Fe<sup>2+</sup> moodustumist Fe<sup>3+</sup>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> reaktsioonisegus doksütsükliini juuresolekul. Saadud andmete põhjal on tehtud järgnevad järeldused:

1. Ülalmainitud protsesse iseloomustab pseudo-esimest järku reaktsioonikineetika. Doksütsükliini kontsentratsioonide määramiseks kasutati kõrgsurve-vedelikkromatograafiat ultraviolettkiirgusega fotomeetrilise detektoriga (HPLC-UV/Vis).
2. Ilma täiendavate aktivaatoriteta (UV või Fe<sup>n+</sup>) on vesinikperoksiidil väga madal võime oksüdeerida doksütsükliini.

3.  $\text{Fe}^{2+}/\text{H}_2\text{O}_2$  ja vesinikperoksiidi kombinatsioonid UV kiirgusega ( $\text{UV}/\text{H}_2\text{O}_2$  ja  $\text{UV}/\text{Fe}^{3+}/\text{H}_2\text{O}_2$ ) olid

efektiivsemad doksütsükliini lagundamisel võrreldes teiste töös kasutatud meetoditega. Mõlemate meetoditega oli doksütsükliin täielikult oksüdeerunud 15 min jooksul. Pseudo-esimest järku reaktsiooni konstandid  $\text{Fe}^{2+}/\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{UV}/\text{H}_2\text{O}_2$  ja  $\text{UV}/\text{Fe}^{3+}/\text{H}_2\text{O}_2$  korral olid vastavalt 0,24, 0,31 ja  $0,26 \text{ s}^{-1}$ .

4.  $\bullet\text{OH}$  tekemehhanism on rangelt seotud  $\text{Fe}^{2+}$  kontsentratsiooniga Fentoni reaktsioonisegus. Antud uuringus selgus, et doksütsükliinil on suur raua taandamisvõime. Raua taandamiskineetika  $\text{Fe}^{3+}/\text{H}_2\text{O}_2$  reaktsioonisegus näitas, et doksütsükliini toimel saavutab  $\text{Fe}^{2+}$  kontsentratsioon maksimumi 10 min jooksul ja seejärel oksüdeerub tagasi  $\text{Fe}^{3+}$ -ni vesinikperoksiidiga reageerides. Doksütsükliini juuresolekul  $\text{Fe}^{3+}/\text{H}_2\text{O}_2$  reaktsioonisegus fikseeriti desoksüriboosi meetodil märgatav  $\bullet\text{OH}$  kasv. Lagundamiskineetika näitas, et doksütsükliin oli täielikult oksüdeerunud 120 min jooksul ( $k = 3,6 \cdot 10^{-2} \text{ min}^{-1}$ ). Seega tõestavad eespool nimetatud tulemused hüpoteesi, et doksütsükliin suurendab  $\text{Fe}^{3+}/\text{H}_2\text{O}_2$  oksüdeerimisvõimet.

5. Kolmevalentse raua lisamine UV ja  $\text{UV}/\text{H}_2\text{O}_2$ -le ei avaldanud märgatavat mõju doksütsükliini lagundamisele

6. Üldorgaanilise süsiniku (TOC) määramine reaktsioonisegudes näitas, et doksütsükliin mineraliseerub täielikult  $\text{UV}/\text{H}_2\text{O}_2$  ja  $\text{UV}/\text{Fe}^{3+}/\text{H}_2\text{O}_2$  kombinatsioonide kasutamisel. Kõige väiksem orgaanilise üldsüsiniku eemaldumine oli fotolüüsi puhul (ca 18%).