

## Adsorção de metformina em carvões activados preparados por carbonização hidrotérmica seguida de activação

C. Laginhas<sup>a</sup>, J.M. Valente Nabais<sup>a\*</sup>, M.M. Titirici<sup>b</sup>

<sup>a</sup>Departamento de Química, Escola de Ciências e Tecnologia, Centro que Química de Évora, Universidade de Évora, Rua Romão Ramalho 59, 7000-671 Évora, Portugal

<sup>b</sup>Queen Mary University London, School of Materials Science & Engineering, Mile End Road, E14NS London, UK

\*jvn@uevora.pt

### Introdução

O processo de carbonização hidrotérmica pode ser considerado um processo amigo do ambiente para preparar materiais de carbono com propriedades específicas, tais como estrutura regular e química superficial rica, desenvolvidas para determinadas aplicações. Este processo é simples de executar e pelo facto de usar temperaturas moderadas e não usar solventes nem gases tem um saldo ambiental positivo quando comparado com o processo usual de pirólise [1]. A diabetes é considerada uma das epidemias do Sec. XXI encontrando-se em crescimento acentuado sendo a metformina um dos medicamentos mais usados para tratar a diabetes tipo 2. Este fármaco é um disruptor endócrino que merece toda a atenção por dois motivos: 1) pelo seu potencial impacto no meio ambiente motivado pelo facto de quase não ser metabolizada pelo corpo humano, sendo excretada directamente na urina, e pela colocação no lixo doméstico de excedentes deste fármaco; 2) pelo perigo de overdose medicamentosa com todos os efeitos secundários que daí advêm, em particular a acidose láctica, que em casos severos pode ser letal. Neste trabalho estudamos a adsorção *in vitro* desta droga em carvões activados usando fluidos simulados gástrico e intestinal.

### Materiais e Métodos

O precursor quitosano (Agros Organics) foi submetido ao processo de carbonização hidrotérmica em autoclave e estufa a 200°C durante 24 horas com um rácio água:precursor de 1:6. Este carbonizado (Q200-24) foi posteriormente activado em forno horizontal com dióxido de carbono a 800°C durante 1, 3 e 5 horas (AC-1, AC-2, AC-3). Foram também preparadas amostras por activação química através da impregnação do precursor com solução saturada de CaCO<sub>3</sub> de acordo com o rácio 1:10 (w/v) seguido de pirólise a 800 °C durante 1, 3 e 5 horas (ACa-1, ACa-2, ACa-3). A amostra AC-5 foi oxidada com ácido nítrico a 90°C durante 1h (AC-5Ox). Os materiais foram caracterizados por SEM, FTIR, análise elementar e adsorção de azoto a 77K. Adsorção de metformina foi estudada a 37°C em fluidos simulados gástrico e intestinal, com pH de 1.2 e 7.5, respectivamente.

### Resultados e Discussão

A caracterização das amostras pode ser observada na tabela 1. Os resultados da análise elementar mostram que as amostras possuem um teor de nitrogénio de destaque (entre aproximadamente 6 e 10%) oriundo do precursor, naturalmente rico neste elemento. O desenvolvimento da porosidade foi muito interessante com valores de área aparente BET ( $A_{BET}$ ) entre 420 e 1400m<sup>2</sup>g<sup>-1</sup>, volume poroso e área externa determinados pelo método alfa-S ( $V_s$  e  $A_{ext}$ , respectivamente) entre 0.18 e 0.69cm<sup>3</sup>g<sup>-1</sup> e 21 e 224m<sup>2</sup>g<sup>-1</sup>. As amostras de carvões activados são todas básicas com ponto de carga zero (pcz) acima de 8.5. A oxidação com ácido

nítrico não teve impacto relevante na porosidade da amostra tendo alterado a sua química superficial com uma diminuição significativa do pcz. Por FTIR foi possível identificar nas amostras de carvões activados a presença de grupos hidroxilo, aminas, carbonilo e lactonas. A amostra AC-50x apresenta também indicações da presença de grupos ácido carboxílico e ester.

Tabela 1. Caracterização das amostras

Amostra	pH <sub>pcz</sub>	Análise elementar / %				Análise textural			
		C	N	H	O	A <sub>BET</sub> /m <sup>2</sup> g <sup>-1</sup>	V <sub>s</sub> /cm <sup>3</sup> g <sup>-1</sup>	A <sub>ext</sub> /m <sup>2</sup> g <sup>-1</sup>	V <sub>0</sub> /cm <sup>3</sup> g <sup>-1</sup>
Quitosano	-	40.38	7.72	7.81	33.70	-	-	-	-
Q200-24	6.01	59.62	10.07	4.97	16.42	10	-	-	-
AC-1	9.34	75.94	5.80	1.23	8.73	423	0.18	24	0.17
AC-3	8.76	83.20	5.23	0.25	10.69	1095	0.44	21	0.42
AC-5	8.77	81.08	5.93	1.00	11.92	1023	0.41	18	0.39
ACa-1	-	80.06	5.92	0.87	9.13	642	0.29	19	0.28
ACa-3	-	81.13	5.25	1.04	10.47	852	0.36	22	0.34
ACa-5	-	85.32	5.45	0.93	12.85	1432	0.69	222	0.54
AC-50x	2.54	44.02	3.22	0.77	23.92	1034	0.46	36	0.38

A capacidade máxima de adsorção para a metformina usando fluidos simulados gástrico (FG) e intestinal (FI) é mostrada na tabela 2. Podemos observar que a adsorção é significativamente mais elevada no FI e que neste fluido a adsorção não está só relacionada com a estrutura porosa dos materiais, mas também com interações entre os grupos funcionais com nitrogénio e a metformina, veja-se a capacidade de adsorção de Q200-24. A adsorção envolve também interações electroestáticas, a diminuta capacidade de adsorção no FG pode ficar a dever-se ao facto de nestas condições de pH a metformina estar totalmente ionizada (+) e os carvões activados estarem com carga superficial média também positiva.

Tabela 2. Adsorção de metformina

Amostra	FG/mgg <sup>-1</sup>	FI/mgg <sup>-1</sup>
Q200-24	-	32.0
AC-1	-	24.0
AC-3	1.5	28.0
AC-5	2.2	44.2
ACa-3	0.7	22.4
ACa-5	2.1	11.5
AC-50x	9.0	18.5

### Agradecimentos

Ao Centro de Química de Évora (projecto estratégico PEst-OE/QUI/UI10619) e à FCT COMPETE e QREN pela bolsa de doutoramento de Carlos Laginhas (SFRH/DB/82696/2011)

**Palavras-chave:** Carvões activados, adsorção, metformina. Carbonização hidrotérmica.

### Referencias

1. MMTirici, A Thomas, M Antonietti. Adv. Functional Mat. 17 (2007) 1010-8.