

## بررسی پتانسیل جذب کربن فعال گرانولی در حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین از آب آلوده

احمد اله آبادی<sup>۱</sup>، غلامرضا موسوی<sup>۲</sup>، کامیار یغمائیان<sup>۳</sup>، حمیدرضا کریمی<sup>۴</sup>

<sup>۱</sup> دانشجوی دکتری بهداشت محیط دانشکده پزشکی دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران

<sup>۲</sup> دانشیار گروه بهداشت محیط دانشکده پزشکی دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران

<sup>۳</sup> دانشیار گروه بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه تهران، تهران، ایران

<sup>۴</sup> کارشناس آزمایشگاه گروه بهداشت، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی سبزوار، سبزوار، ایران

نشانی نویسنده مسؤول: تهران، دانشگاه تربیت مدرس، دانشکده پزشکی، گروه بهداشت محیط، غلامرضا موسوی

E-mail: moussavi@modares.ac.ir

وصول: ۹۲/۶/۱۸، اصلاح: ۹۲/۸/۲۵، پذیرش: ۹۲/۹/۱۰

### چکیده

**زمینه و هدف:** آنتی بیوتیک‌ها از آلاینده‌های منابع آب بوده که به علت تجزیه زیستی کم می‌توانند با روش جذب سطحی مورد تصفیه قرار گیرند. یکی از بهترین جاذبها کربن فعال می‌باشد. هدف از این مطالعه بررسی میزان حذف آنتی بیوتیک آموکسی سیلین توسط کربن مرک گرانولی است.

**مواد و روش‌ها:** آزمایشات در یک راکتور شیشه‌ای با دور ۱۰۰ دور در دقیقه انجام شد. در هر تست ۵۰ میلی لیتر از آب آلوده سنتتیک ریخته شده و متغیرهای دوز جاذب، نوع جاذب، غلظت آموکسی سیلین، زمان تماس، pH و درجه حرارت بر جذب آموکسی سیلین بررسی شد. نمونه پس از هر بار مگنت توسط یک فیلتر استات سلولز ۰/۴۵um و پمپ خلأ، صاف گردید و پس آب فیلتر شده جهت تعیین آموکسی-سیلین باقیمانده توسط دستگاه HPLC آنالیز گردید.

**یافته‌ها:** نتایج حاصل از آزمایشات نشان داد که در pH=۶، غلظت جاذب ۱/۶ گرم بر لیتر، زمان تماس ۶۰ دقیقه و دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد بهترین شرایط حذف آموکسی سیلین از آب آلوده می‌باشد در این شرایط کربن گرانولی با مش ۱۶-۲۰ توانست ۸۶ درصد آموکسی سیلین در غلظت ۵۰ میلی‌گرم در لیتر را حذف نماید.

**نتیجه‌گیری:** کربن فعال یک ماده کار بردی مناسب برای حذف آلاینده‌های غیر قابل تجزیه آب مثل آنتی‌بیوتیک‌ها و سموم می‌باشد.

**واژه‌های کلیدی:** کربن فعال، آموکسی سیلین، جذب.

### مقدمه

یافته است. ایران یکی از بزرگ‌ترین کشورهای مصرف کننده دارو در جهان می‌باشد (۱). به طوری که از لحاظ مصرف دارو جزء ۲۰ کشور نخست جهان به شمار می‌رود و در آسیا بعد از چین مقام دوم را در مصرف دارو

در سال‌های اخیر مصرف دارو و دسترسی مردم به انواع داروها به دلیل گسترش بیماری‌ها، پیشرفت علوم پزشکی، داروسازی و پوشش درمانی در جهان افزایش

آنتی بیوتیک‌ها این ترکیبات باید به روش مؤثر و مناسب از فاضلاب‌ها و منابع آب حذف شوند. لذا لزوم یافتن روش مناسب تصفیه با کارایی، راندمان بالا و قابل اجرا به منظور حذف این مواد دارویی ضروری است.

این روش‌ها شامل اکسیداسیون شیمیایی، تجزیه زیستی و تصفیه فیزیکی است (۳). روش‌های زیستی متداول جهت حذف آنتی بیوتیک‌ها کارایی کمتری دارد به گونه‌ای که فقط ۲۰-۱۰ درصد راندمان حذف دارند (۴). فرایندهای شیمیایی خصوصاً اکسیداسیون پیشرفته می‌تواند اغلب سبب تجزیه و شکستن آنتی بیوتیک‌ها به مولکول‌های ساده‌تر و یا معدنی‌سازی آنها گردد؛ ولی این پروسه‌ها بسیار پیچیده و پرهزینه هستند؛ لذا تکنیک‌های فیزیکی مناسب‌ترین گزینه‌های تصفیه این مواد هستند و روش جذب بیشترین راندمان را در بین روش‌های فیزیکی جهت حذف ترکیبات آلی از فاضلاب‌های صنعتی دارد (۱۵، ۱۴). روش‌های جذب، روش‌های ساده و کاربردی بوده، محصولات فرعی سمی نداشته و کم‌هزینه است (۱۶).

از بین جاذب‌های سطحی کربن فعال به دلیل خلل و فرج بالا سطح مخصوص و ظرفیت جذب بسیار بالا بیشترین استفاده را جهت حذف آلاینده‌های مواد آلی از آب‌های آلوده و فاضلاب‌ها دارد. انجام عمل جذب توسط کربن فعال به خواص ماده جاذب و همچنین خواص ماده آلاینده و شرایط محیطی فاضلاب دارد؛ لذا بایستی در جذب هر آلاینده توسط هر نوع جاذب بررسی فاکتورهای مؤثر بر جذب انجام گیرد (۱۷)؛ لذا این مطالعه فاکتورهای مؤثر در آزمایشات جذب آموکسی سیلین را به عنوان یک مدل از آنتی بیوتیک‌های آلاینده آب مورد ارزیابی قرار داده است. این فاکتورها شامل، غلظت کربن فعال، غلظت آموکسی سیلین، زمان واکنش، درجه حرارت محلول، مش-های مختلف گرانول‌های کربن، مکانیسم و ایزوترم‌های جذب می‌باشد.

دارد (۲). از این میان آنتی بیوتیک‌ها پر مصرف‌ترین داروها می‌باشند؛ که باعث ریشه‌کنی و توقف رشد میکرو ارگانیسم‌ها می‌شوند (۳). طبق برآورد سازمان بهداشت جهانی روزانه ۷۷۰۰ کیلوگرم آنتی بیوتیک در سراسر جهان تولید می‌گردد (۴). در ایران نیز از نظر ویال مصرفی دارو، آنتی بیوتیک‌ها پر مصرف‌ترین گروه دارویی کشور هستند به طوری که حدود ۱۵ درصد کل داروهای مصرفی کشور را تشکیل می‌دهند (۲). از آنجا که بیش از ۶۵ درصد آنتی بیوتیک‌های مصرفی جهان را گروه *B - Lactum* ها تشکیل می‌دهند که از این گروه آموکسی سیلین بیشترین مصرف را دارد (۵). در ایران نیز ۳۲/۶ درصد مصرف آنتی بیوتیک‌ها به گروه *B-lactum* (پنی سیلین، آموکسی سیلین و آمپی سیلین) تعلق دارد که آموکسی سیلین پر مصرف‌ترین آنها می‌باشد (۶). آموکسی سیلین یک پنی سیلین نیمه سنتزی با حلقه *B-lactum* با وزن مولکولی ۳۶۵/۴ گرم برمول می‌باشد که از سنتز دیواره سلولی باکتری جلوگیری می‌کند (۷، ۸) و به عنوان یک باکتریواستاتیک جهت از بین بردن باکتری‌های عفونی استفاده می‌گردد (۶). بنابراین به دلیل مصرف بالای آنتی بیوتیک‌ها غلظت آنها در آب افزایش یافته و سبب کاهش کیفیت آب می‌گردد. به طوری که مطالعات متعددی در دسترس است که غلظت آنتی بیوتیک‌ها را در محیط‌های آبی سطحی و زیر زمینی از ۱۰۰-۱ میکروگرم بر لیتر تأیید می‌کند از طرف دیگر صنایع دارویی به ویژه صنایع تولید آنتی بیوتیک‌ها دارای پساب با غلظت بالایی از آنتی بیوتیک‌ها (۱۰-۱۰۰ میلی گرم در لیتر) تولید می‌نمایند (۹). از خواص این آنتی بیوتیک‌ها دارای قابلیت تجزیه بیولوژیکی کمتر، سمیت بالا، خاصیت سرطان زایی و موتازنی صدمه به DNA و لئفوسیت‌ها، افزایش آلرژی در انسان، گسترش باکتری‌های مقاوم به آنتی بیوتیک‌ها و ایجاد عوارض پیش‌بینی نشده بر روی انسان و حیوانات را می‌توان نام برد (۱۰-۱۳). به دلیل حفظ بهداشت آب و حفاظت انسان در برابر عوارض بهداشتی شدید ناشی از

## مواد و روش‌ها

### ۱- آماده‌سازی مواد

۱-۱- تهیه آموکسی‌سیلین: آموکسی‌سیلین با وزن ملکولی  $C_{16}H_{19}N_3O_3S$  ۳۶۵/۴ گرم بر مول و با فرمول شیمیایی خریداری شده از شرکت سیگما مورد استفاده قرار گرفت. ۱-۲- تهیه کربن فعال: کربن فعال از شرکت مرک آلمان تهیه و در مش‌های مختلف ۸ تا ۵۰ توسط الک‌های استاندارد مش‌بندی و توسط آزمایشات BET، SEM، FTIR،  $pH_{zpc}$  شناسایی گردید.

۲- آزمایشات جذب: آزمایشات در یک راکتور شیشه‌ای با دور ۱۰۰ دور در دقیقه انجام شد. در هر تست ۵۰ میلی‌لیتر از آب آلوده ریخته شده و متغیرهای، دوز جاذب، نوع جاذب، غلظت آموکسی‌سیلین، زمان تماس، pH و درجه حرارت بر جذب آموکسی‌سیلین بررسی شد. متغیرها، مراحل و شرایط کاری آزمایشات راکتور در جدول شماره ۱ آمده است.

نمونه پس از هر بار مگنت توسط یک فیلتر استات سلولز ۰/۴۵um و پمپ خلاء صاف گردید و پس آب فیلتر شده جهت تعیین آموکسی‌سیلین باقیمانده آنالیز گردید. غلظت آموکسی‌سیلین در محلول توسط یک دستگاه HPLC مدل Kanuri آلمان ( $250 \times 4/6 \times 5$ ) ستون (C18 ODs) با یک دتکتور UV ۲۰۰۶ در طول موج nm ۱۹۰ تست گردید (۱۷). فاز متحرک مخلوطی است از بافر فسفات در  $pH=4/8$  و استونیتریل با نسبت حجمی ۶۰/۴۰ با میزان تزریق mL/min انجام آزمایش تأثیر درجه حرارت در انکوباتور پریزدار تنظیم و انجام شده تمام آزمایشات دو بار تکرار گردید و درصد حذف آموکسی‌سیلین محاسبه شد:

### یافته‌ها

۱- خواص کربن فعال: نتیجه FTIR در شکل ۱ و نمونه‌ای از اسکن میکروسکوپ الکترونی در شکل ۲ آمده است.

مرفولوژی سطح کربن نشان می‌دهد که کربن فعال دارای روزه‌های تصادفی و منفرد می‌باشد و اسپکترام PTIR آن نشان‌دهنده چندین پیک جالب در حضور تعدادی از گروه‌های فعال سطحی بر روی کربن می‌باشد. این پیک‌ها نشان‌دهنده عوامل فعال سطحی و محل‌های جذب عوامل آلاینده بر روی کربن می‌باشند.

آزمایش BET کربن نشان‌دهنده سطح  $m^2/g$  ۱۰۲۴ و  $V_m$  (حجم تک لایه) آن  $cm^3/g$  ۲۳۵/۳ می‌باشد متوسط قطر روزه‌ها ۲/۲۳ نانومتر و  $pH_{zpc}$  آن ۷/۴ می‌باشد و در pH های کمتر از این کربن دارای شارژ مثبت و در pH بالاتر از ۷/۴ دارای شارژ منفی می‌باشد.

۲) تأثیر غلظت جاذب: برای پیدا کردن دز بهینه غلظت-های مختلف جاذب از ۰/۲ تا ۲ گرم در لیتر از کربن گرانولی مش ۲۰-۱۶ و زمان تماس ۳۰ دقیقه استفاده گردید و نتایج آن در نمودار ۱ آمده است چنان‌که نمودار ۱ نشان می‌دهد با افزایش غلظت درصد حذف افزایش می‌یابد و غلظت ۱/۶ گرم بر لیتر به‌عنوان غلظت بهینه انتخاب گردید.

۳- اثر زمان تماس در حذف آموکسی‌سیلین: زمان تماس از عواملی است که سرعت جذب را نشان می‌دهد به‌همین دلیل در زمان‌های تماس ۵ و ۱۰ و ۲۰ و ۳۰ و ۴۰ و ۵۰ و ۶۰ و ۷۵ و ۹۰ دقیقه در pH طبیعی و دز جاذب بهینه عملیات جذب انجام گرفت.

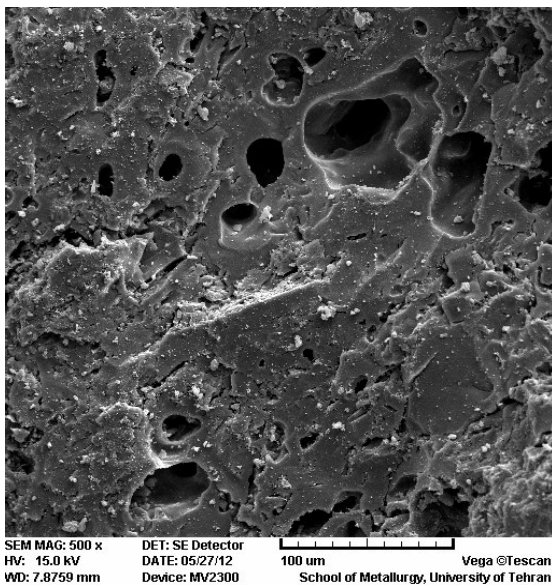
نتایج آن در نمودار ۲ آمده است، طبق نمودار ۲ مدت زمان ۶۰ دقیقه به‌عنوان زمان بهینه انتخاب می‌شود. غلظت آموکسی‌سیلین  $50 \text{ mg/L}$ ، غلظت کربن  $g/l$  ۱/۶، زمان ۱ ساعت، حجم نمونه  $50 \text{ cc}$  نتایج نمودار نشان

می‌دهد که با افزایش زمان میزان حذف نیز افزایش می‌یابد و راندمان حذف تا ۶۰ دقیقه افزایش بیشتری دارد و بعد از آن افزایش درصد حذف کمتر می‌گردد.

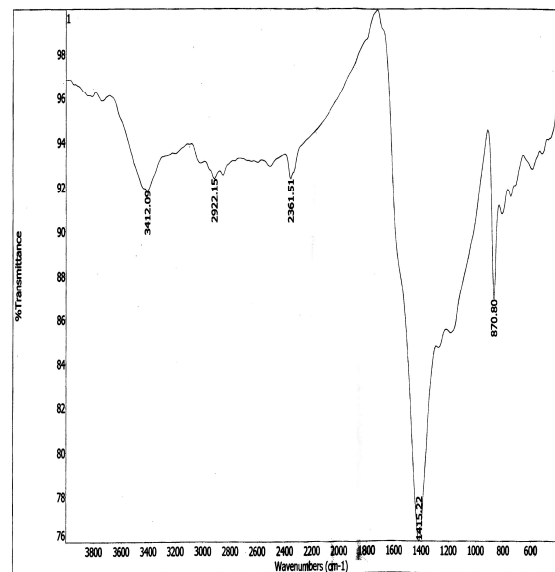
۴- اثر pH محلول و مکانیسم جذب: برای پیدا کردن pH بهینه اثر pH محلول آموکسی‌سیلین در رنج ۲ تا ۱۰ مورد

جدول ۱: متغیرها، مراحل و شرایط کاری آزمایشات راکتور ناپیوسته جذب

مرحله	هدف	pH	اندازه ذرات	غلظت کربن	$C_{AMX}$ (mg/L)	زمان (min)
۱	اثر pH	۲-۱۰		۱/۶	۵۰	۶۰
۲	دوزجاذب	۱۶-۲۰	بهینه	۰/۲-۲	۵۰	۳۰
۳	زمان تماس	۱۶-۲۰	بهینه	بهینه	۵۰	۵-۹۰
۴	اثر غلظت آموکسی سیلین و زمان واکنش	۱۶-۲۰	بهینه	بهینه	۱۰-۱۰۰	۵-۹۰
۵	اثر درجه حرارت (۴۰-۱۰۰ درجه سانتی گراد)	۱۶-۲۰	بهینه	بهینه	۵۰	بهینه
۶	اندازه ذرات جاذب	۸-۵۰	بهینه	بهینه	۵۰	بهینه



شکل ۲: اسکن میکروسکوپ الکترونی کربن



شکل ۱: نتیجه FTIR کربن مرک

جذب آموکسی سیلین بر روی کربن گرانولی در دماهای محلول بین ۱۰ تا ۴۰ درجه سانتی گراد در زمان ۶۰ دقیقه مورد آزمایش انجام گرفت.

نتایج حاصل از نمودار ۵ نشان می‌دهد که درصد حذف آموکسی سیلین با افزایش دما از ۱۰ درجه تا ۲۵ درجه افزایش و پس از آن تا ۴۰ درجه دوباره کاهش می‌یابد.

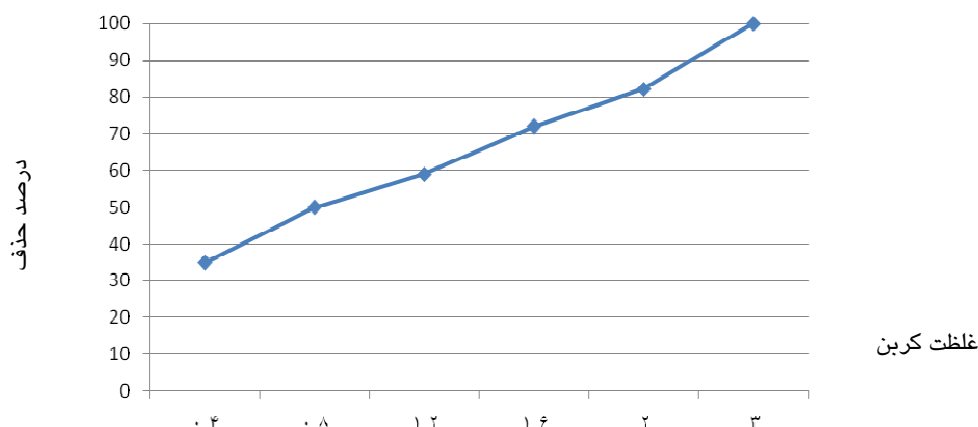
۷- اثر اندازه ذرات جاذب: پس از دانه‌بندی ذرات کربن توسط الک‌های استاندارد در مش‌های ۱۲-۱۶، ۸-۱۲، ۱۶-۲۰، ۲۰-۲۵، ۲۵-۴۰ و ۴۰-۵۰ در غلظت ۱/۶ گرم بر لیتر از آنها به مدت یک ساعت در pH بهینه و غلظت آموکسی سیلین ۵۰ میلی گرم بر لیتر آزمایش انجام شد که نتایج آن در نمودار ۶ آمده است.

بررسی قرار گرفت که نتایج آن در نمودار ۳ آمده است مطابق نمودار ۳، pH=۶ بهترین pH برای حذف آموکسی سیلین توسط کربن گرانولی است که حذف آن ۸۸/۵ درصد می‌باشد.

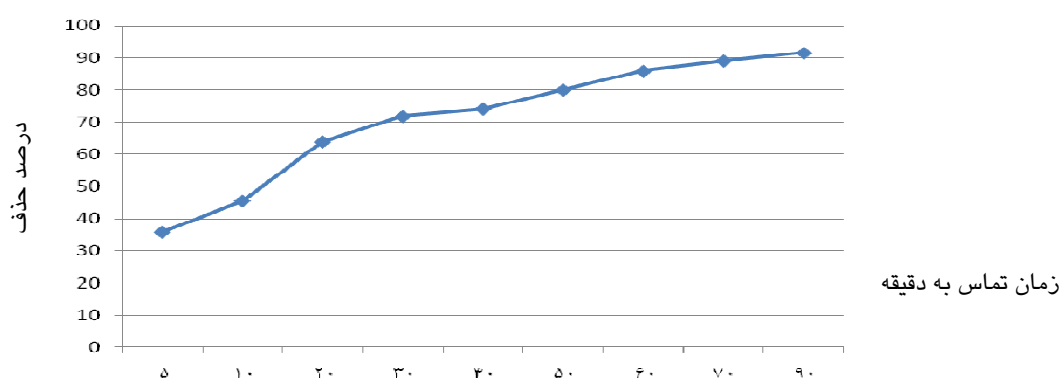
۵- اثر غلظت آموکسی سیلین: اثر غلظت آموکسی سیلین در میزان جذب آموکسی سیلین در سه غلظت متفاوت ۱۰ و ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم در لیتر در زمان‌های تماس مختلف ۵ تا ۶ دقیقه مورد آزمایش قرار می‌گیرد نتایج آزمایش در نمودار ۴ آمده است.

این نتایج نشان می‌دهد که با افزایش غلظت درصد حذف آموکسی سیلین کاهش ولی ظرفیت جذب افزایش می‌یابد.

۶- ترمودینامیک جذب: به منظور بررسی ترمودینامیک



نمودار ۱: تأثیر غلظت جاذب بر راندمان حذف آموکسی سیلین (غلظت آموکسی سیلین ۵۰ mg/L، حجم نمونه ۵۰ cc، pH= ۶/۸، مش کربن ۲۰-۱۶)



نمودار ۲: تأثیر زمان تماس بر راندمان حذف آموکسی سیلین

نتایج نمودار ۷ نشان می‌دهد که کربن گرانولی در غلظت ۵۰ میلی گرم در لیتر ۸۷/۷ درصد آموکسی سیلین را حذف می‌کند در صورتی که وقتی غلظت آموکسی سیلین به ۵۰۰ میلی گرم بر لیتر افزایش می‌یابد میزان جذب به ۳۶ درصد کاهش می‌یابد.

مدل ایزوترم جذب که روابط تشریح تعادل جزء جذب شونده بین فاز جامد و مایع می‌باشد بیشتر توسط مدل ایزوترم لانگ میز و فرندلیخ بیان می‌شود فرمول زیر معادله جذب لانگ میر را نشان می‌دهد.

که  $ce$  غلظت مواد باقیمانده در زمان تعادل

$$\frac{ce}{qe} = \frac{1}{b \cdot q_{max}} + \frac{ce}{q_{max}}$$

همان  $x/m$  یا ظرفیت جذب در حال تعادل است.

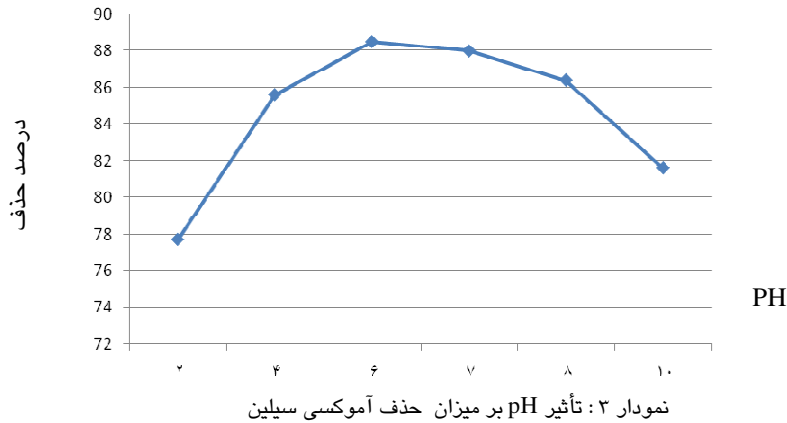
$q_{max}$  = ماکزیمم ظرفیت جذب برای تشکیل یک لایه

کلی کامل است و  $b$  ثابت لانگ میر است.

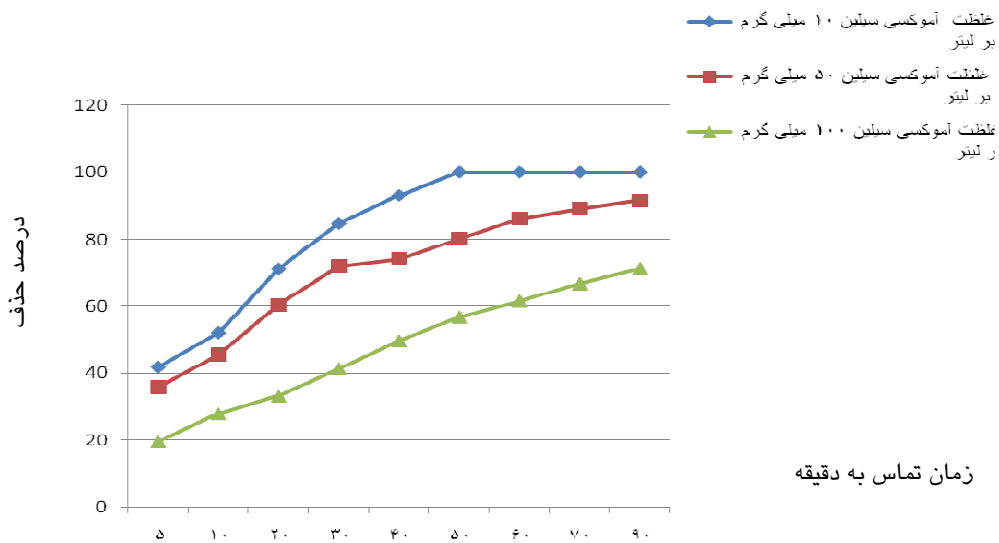
نتایج فوق نشان می‌دهد که هر چه اندازه ذرات کوچکتر باشد جذب بیشتر است به طوری که در مش های ۵۰ - ۴۰، ۴۰ - ۲۵، ۲۵ - ۲۰ درصد حذف ذرات ۱۰۰ درصد بوده است و در مش ۲۰-۱۶، ۱۶-۸ درصد و در مش ۱۲-۸ این میزان حذف به ۴۲/۴ درصد کاهش یافته است.

البته مش‌های ریزتر هر چند درصد حذف بهتری دارند ولی در سیستم‌های تصفیه جداسازی آنها از آب مشکل‌تر است و لذا در این پژوهش مش ۲۰-۱۶ انتخاب گردید.

۸- تعادل جذب و مدل ایزوترم آن: تعادلات جذب آموکسی سیلین در غلظت ۵۰۰، ۴۰۰، ۳۰۰، ۲۰۰، ۱۰۰ و ۵۰ آموکسی سیلین و دز ۰/۰۸ گرم در لیتر ماده جاذب در حجم ۵۰ میلی لیتر به مدت ۶ ساعت انجام گردید که نتایج آن در نمودار ۷ آمده است.



نمودار ۳: تأثیر pH بر میزان حذف آموکسی سیلین (غلظت آموکسی سیلین ۵۰ mg/L، غلظت کربن ۱/۶ gr، زمان ۱ ساعت، حجم نمونه ۵۰ cc)



نمودار ۴: تأثیر غلظت آموکسی سیلین بر راندمان حذف آن (غلظت کربن ۱/۶ gr/l، pH = ۶)

می باشد.

با رسم نمودار  $ce/qe$  در مقابل  $ce$  مقادیر  $b$  و  $q_{max}$  محاسبه می شود. پس از رسم منحنی ایزوترم لانگ میر میزان  $q_{max}$  ۲۶۱ و میزان  $b$  به میزان ۰/۱۸۵ به دست آمده و میزان  $R^2$  این مدل ۰/۹۸۳ می باشد.

معادله فرندلیخ عبارت است از:

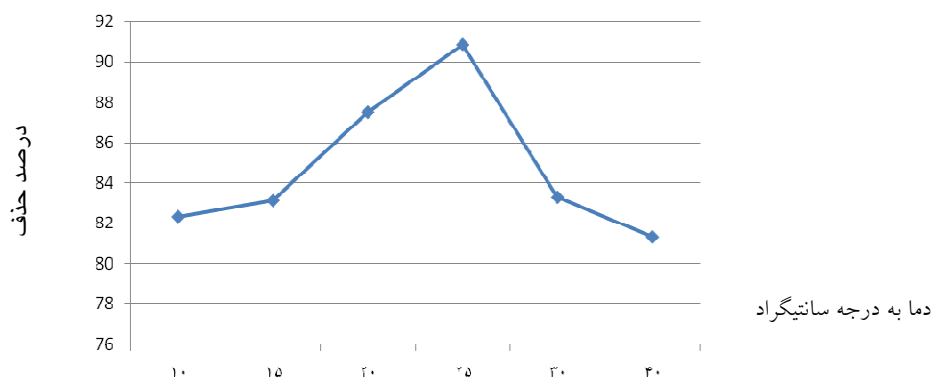
$$\frac{1}{n} \ln q_e = \ln k_f + \frac{1}{n} \ln c_e$$

$$\ln q_e = \ln k_f + \frac{1}{n} \ln c_e$$

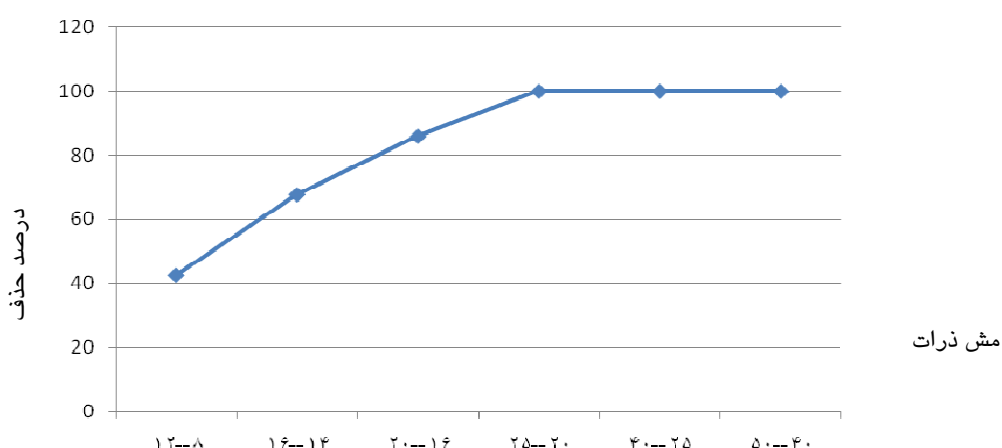
$K_f$  و  $n$  ثابت معادله فرندلیخ هستند و ثابت  $k_f$  ظرفیت جذب می باشد و  $1/n$  تبادلات واکنش را نشان می دهد و بر اساس رگرسیون خطی  $\ln q_e$  در مقابل  $\ln c_e$  مقادیر  $k_f$  و  $n$  به دست می آید بر اساس این معادله مقادیر  $k_f$  برابر ۰/۹۷۹ و  $n$  ۱/۵ به دست می آید و میزان  $R^2$  این مدل ۰/۹۷۹

## بحث

نتایج حاصل از این مطالعه نشان می دهد که کربن اکتیو گرانولی جاذب مناسبی برای جذب آنتی بیوتیکها بالاخص آموکسی سیلین می باشد و کربن اکتیو مرک به- علت BET بالا دارای ظرفیت جذب بالایی بوده و در معادلات لانگمیر و فرندلیخ نیز با توجه به بالا بودن ماکزیمم ظرفیت جذب ( $q_m$ ) این نکته تأیید می گردد. با افزایش زمان ماند میزان جذب افزایش می یابد این افزایش جذب می تواند ناشی از افزایش تعداد



نمودار ۵: تأثیر دما بر راندمان حذف آموکسی سیلین (غلظت آموکسی سیلین ۵۰ میلی گرم بر لیتر، زمان ۱ ساعت، pH = ۶، حجم نمونه ۵۰)



نمودار ۶: تأثیر اندازه ذرات بر میزان حذف آموکسی سیلین (غلظت آموکسی سیلین ۵۰ mg/l، غلظت کربن ۱/۶ میلی گرم بر، زمان ۱ ساعت، pH = ۶)

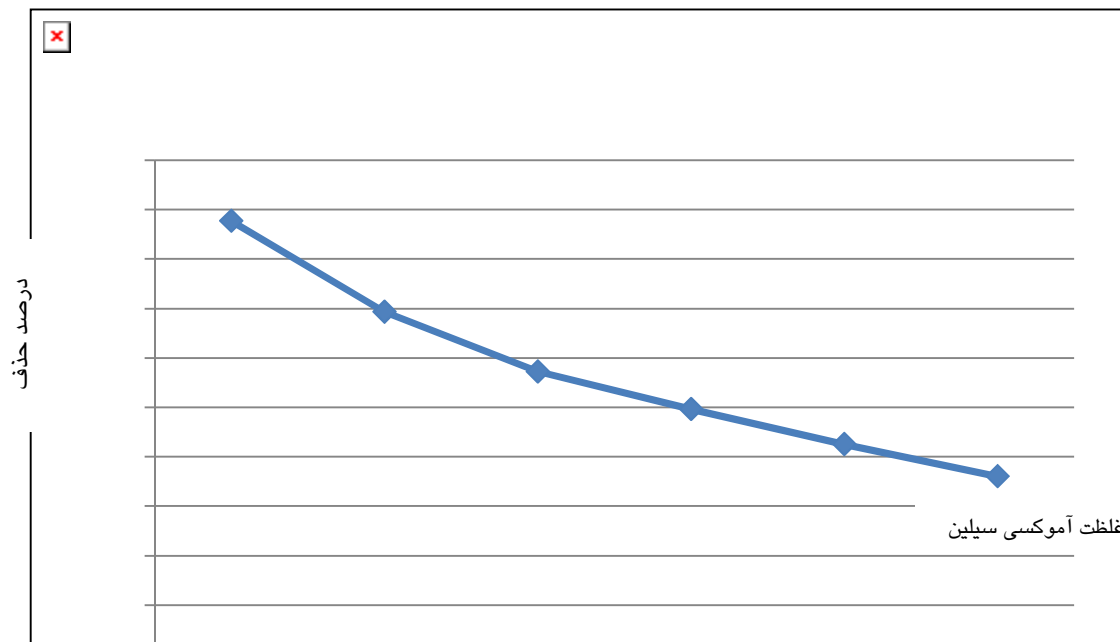
می دهد (۱۱).

با افزایش غلظت کربن میزان جذب آموکسی-سیلین افزایش می یابد و این میزان در ۱/۶ گرم در لیتر در کربن با مش ۱۶-۲۰ به ۸۶ درصد می رسد. در صورتی که میزان جذب مقداری افزایش یابد درصد حذف به ۱۰۰ درصد خواهد رسید ولی به علت جلوگیری از هزینه بالا دز ۱/۶ به عنوان دز بهینه انتخاب گردید. pH یکی از عوامل مهم مؤثر در حذف آموکسی سیلین توسط کربن می باشد.

علت افزایش حذف آموکسی سیلین با افزایش pH تا pH=۶ مربوط به pH<sub>pzc</sub> کربن می باشد با توجه به این که pH<sub>pzc</sub> کربن فعال ۷/۴ می باشد و در pH های کمتر از pH<sub>pzc</sub> کربن دارای شارژ مثبت است و در عوض مولکول آموکسی سیلین در pH های اسیدی دارای گروه-

برخوردهای بین آلاینده و جاذب باشد و در ضمن سرعت نیز در این جاذب نسبتاً بالا است به طوری که در کمتر از یک ساعت میزان جذب به حذف بهینه رسید (۱۷).

میزان qm کربن گرانولی با مش ۲۰-۱۶ در این بررسی ۲۶۱ میلی گرم آموکسی سیلین به ازاء هر گرم کربن می باشد در حالی که در تحقیقی مشابه که Gurabineire و همکارانش در سال ۲۰۱۱ در فرانسه انجام داده اند ماکزیمم جذب در معادله لانگمیر و فرندلیخ ۱۱۲-۲۳۱ میلی گرم آنتی بیوتیک سیپروفلوکسا سین بر روی جاذب کربن فعال بوده است (۱۷) و یا در بررسی حذف نیترا میدازول توسط کربن فعال در محیط های مایع که توسط ریورا و همکارانش در سال ۲۰۰۹ در اسپانیا انجام گرفته است میزان ماکزیمم ظرفیت جذب را در معادله لانگمیر ۲/۰۴-۱/۰۴ میلی مول به ازاء هر گرم کربن نشان



نمودار ۷: تعادلات جذب و راندمان حذف آموکسی سیلین (زمان ۱ ساعت با غلظت کربن ۱/۶ و pH = ۶)

است (۱۷).

یکی دیگر از عوامل مؤثر در جذب آموکسی سیلین توسط کربن اندازه ذرات جاذب می‌باشد به طوری که با ریز شدن ذرات کربن در شرایط یکسان درصد حذف به شدت افزایش می‌یابد به طوری که در مش ۲۵-۲۰ در دز ۱/۶ گرم بر لیتر درصد حذف ۱۰۰ درصد و در مش ۱۲-۱۸ این میزان ۴۲/۴ درصد بوده است. علت افزایش حذف با توجه به کاهش اندازه ذرات می‌تواند مربوط به افزایش سطح ذرات باشد و این نشان‌دهنده این است که بیشتر جذب آموکسی سیلین توسط کربن جذب سطحی است تا جذب در خلل و خرج کربن در تحقیقی مشابه که نویسندگان این مقاله در سال ۲۰۱۲ در دانشگاه تربیت مدرس انجام داده و در مجله *chemical engineering Journal* به چاپ رسیده نشان می‌دهد که کربن پودری درصد بسیار بالاتری از حذف آموکسی سیلین را داشته است به طوری که کربن پودری توانست در غلظت  $g/l$  ۰/۸ در زمان ۳۰ دقیقه بیش از ۸۰ درصد آموکسی سیلین در غلظت ۵۰ میلی‌گرم در لیتر را حذف نماید به هر حال کربن فعال می‌تواند یک ماده کاربردی برای حذف آلاینده‌های غیرقابل تجزیه آب مثل آنتی‌بیوتیک‌ها و سموم باشد.

های کربوکسیل می‌باشد ( $-COOH$ ) می‌باشد و هر چه pH از ۲ به ۷ افزایش می‌یابد گروه کربوکسیل ( $-COOH$ ) به کربوکسیلات ( $-COO^-$ ) تبدیل می‌شود و این سبب می‌شود که الکترواستاتیک بین مولکول آموکسی سیلین با یون منفی  $-COO^-$  و کربن فعال با شارژ مثبت در سطح کربن در pH کمتر از ۷/۴ بیشترین تمایل جذب ایجاد گردد با افزایش pH به بالای ۷/۴ سطح کربن شارژ منفی پیدا می‌کند و تمایل جذب بین کربن و آموکسی سیلین کاهش می‌یابد (۱۷).

در بررسی تأثیر افزایش غلظت آموکسی سیلین بر حذف آن نشان می‌دهد که هر چه غلظت اولیه آموکسی سیلین افزایش می‌یابد درصد حذف کاهش می‌یابد و آن به علت پر شدن محل‌های فعال جذب بر روی کربن می‌باشد ولی در عوض ظرفیت جذب افزایش می‌یابد و این نشان‌دهنده تعداد برخوردهای بین جاذب و جذب‌شونده در غلظت بالا می‌باشد (۱۷).

بهبود جذب آموکسی سیلین با افزایش دما مربوط به افزایش فعل انفعالات بین مولکول‌های آموکسی سیلین و محل‌های جذب جاذب با افزایش دما می‌باشد. کاهش جذب آموکسی سیلین با افزایش دما مربوط به واجذب آموکسی سیلین جذب شده و وارد شدن آن درون محلول



**تقدیر و تشکر**

مدرس و دانشگاه علوم پزشکی سبزوار اجرا گردید.  
بدین وسیله از زحمات پرسنل این دو آزمایشگاه تشکر و  
قدردانی می‌گردد.

این مطالعه حاصل اجرای پایان‌نامه دوره دکترا در  
رشته بهداشت محیط در دانشگاه تربیت مدرس می‌باشد  
که در آزمایشگاه گروه بهداشت محیط دانشگاه تربیت

**References**

1. Rakhshani M, Rakhshani F, Mirshahi A. Self-medication in Zahedan city in 1999. *Feyz*, 2002; 22(2):45-55.
2. Shyan F, Pattern of Drug prescription in clinical ward of Motahari an Peimaneie Hospital in kordad 1385. *Journal of Jahrom University of medical Sciences*. 2006; 5(2): 48-8.
3. Klavarioti M, Mantzavinos D, Kassinos D. Removal of residual pharmaceuticals from aqueous systems by advanced oxidation processes. *Environ Int*, 2009. 35(2): 402-17.
4. Musey, M., Evaluation of the Fate of Ciprofloxacin and Amoxicillin in Simulated Domestic Wastewater. 2006.43(8): 2149-58.
5. Bendesky, A., D. Menéndez, and P. Ostrosky-Wegman, Is metronidazole carcinogenic? *Mutation Research/Reviews in Mutation Research*, 2002. 511(2): 133-44.
6. Kümmerer, K, Al-Ahmad A, Mersch-Sundermann V. Biodegradability of some antibiotics, elimination of the genotoxicity and affection of wastewater bacteria in a simple test. *Chemosphere*, 2000. 40(7): 701-10.
7. Aksu Z, Tunc O. Application of biosorption for penicillin G removal: comparison with activated carbon. *Process Biochemistry*, 2005. 40(2): 831-47.
8. Rivera-Utrilla J, Sánchez-Polo M, Prados-Joya G, Ferro-García MA, Bautista-Toledo I. Removal of tinidazole from waters by using ozone and activated carbon in dynamic regime. *Journal of hazardous materials*. 2010; 174(1-3):880-6.
9. Elmolla ES, Chaudhuri M. Degradation of the antibiotics amoxicillin, ampicillin and cloxacillin in aqueous solution by the photo-Fenton process. *Journal of hazardous materials*, 2009. 172(2-3): 1476-81.
10. Richardson, M.L. and J.M. Bowron, The fate of pharmaceutical chemicals in the aquatic environment. *Journal of Pharmacy and Pharmacology*, 1985. 37(1):1-12.
11. Rivera-Utrilla J, Prados-Joya G, Sánchez-Polo M, Ferro-García MA, Bautista-Toledo I. Removal of nitroimidazole antibiotics from aqueous solution by adsorption/bioadsorption on activated carbon. *Journal of hazardous materials*, 2009. 170(1): 298-305.
12. Ansari F. Use of systemic anti-infective agents in Iran during 1997-1998. *Eu J Clin Pharmacol*, 2001. 57(6): 547-51.
13. Ay F, Kargi F. Advanced oxidation of amoxicillin by Fenton's reagent treatment. *Journal of hazardous materials*, 2010. 179(1-3): 622-7.
14. Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices: a review. *J Environ Manage*. 2011; 92(10): 2304-47.
15. Lin S.H, Juang R.Sh. Adsorption of phenol and its derivatives from water using synthetic resins and low-cost natural adsorbents: a review. *J Environ Manage*. 2009; 90(3): 1336-49.
16. Han, D. Ding, Y. Xu, W. Zou, Y. Wang, Y. Li, L. Zou, Use of rice husk for the adsorption of congo red from aqueous solution in column mode, *Bioresource Technol*. 99 (2008) 2938-2946.
17. G. Moussavi, A. Alahabadi, K. Yaghmaeian, M. Eskandari, Preparation, characterization and adsorption potential of the NH<sub>4</sub>Cl-induced activated carbon for the removal of amoxicillin antibiotic from water, *Chemical Engineering Journal* 217 (2013) 119-128

# Adsorption potential of the granular activated carbon for the removal of amoxicillin from water

**Ahamd Alahabadi,**

Department of Environmental Health Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran

**Gholamreza Moussavi,**

Department of Environmental Health Engineering, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran

**Kamyar Yaghmaeian,**

Department of Environmental Health Engineering, Tehran University of Medical Sciences, Tehran, Iran

**Hamidreza Karemisan**

Department of Environmental Health Engineering, Sabzevar University of Medical Science, Sabzevar, Iran

Received: 09/09/2013, Revised:16/11/2013, Accepted:01/12/2013

---

## Corresponding author:

Gholamreza Mosusavi,  
Department of Environmental  
Health Engineering, Tarbiat  
Modares University, Tehran, Iran  
E-mail: moussavi@modares.ac.ir

## Abstract

**Background:** Antibiotics are important pollutants of water resources, and because of hard biodegradability, they can be filtered through adsorption method. Activated carbon is one of the best adsorbents. The aim of this study was to investigate the amoxicillin removal rate of a standard granular activated carbon.

**Materials and methods:** The adsorption experiments were conducted in the stirred (100 rpm) glass reactor. In each test, 50 ml of aqueous solution contaminated by amoxicillin was transferred into the reactor, and the influence of adsorbent dose, adsorbent type, amoxicillin concentration, reaction time, solution pH and temperature was tested on the amoxicillin adsorption. At the end of each of adsorption tests, the suspension was filtered using a cellulose acetate filter with 0.45 $\mu$ m pore size and the filtrate was analyzed for residual amoxicillin using HPLC.

**Results:** The obtained data showed that the best conditions for removal of amoxicillin from contaminated water using granular activated carbon were as follow: pH: 6, adsorbent concentration: 1.6 g/l, reaction time: 60 min, temperature: 25oc. In these conditions up to 86% of amoxicillin (concentration: 50 mg/l) could be adsorb by a granular 16-20 activated carbon.

**Conclusion:** Adsorption onto activated carbon is an efficient method for the removal of non-degradable water pollutants such as antibiotics and toxins.

**Keywords:** Activated carbon, Amoxicillin, Adsorption