

Removal of Cephalexin Antibiotic from Aqueous Solutions by Activated Carbon Adsorbent

Maryam Hemmati

MSc, Department of Chemistry, Khuzestan Science and Research Branch, Islamic Azad University, Ahvaz, Iran

Arezoo Ghaemi

* Assistant Professor, Department of Chemistry, Ahvaz Branch, Islamic Azad University, Ahvaz, Iran. (Corresponding author):
Email: arezooghaemi@yahoo.com

Haman Tavakkoli

Assistant Professor, Department of Chemistry, Ahvaz Branch, Islamic Azad University, Ahvaz, Iran

Received: 2019/01/11

Accepted: 2019/05/28

Document Type: Research article

ABSTRACT

Background and Aim: Environmental problems caused by the arrival of antibiotics in water resources are a serious threat due to toxicity and lasting effects. This study aimed to evaluate the efficiency of granular activated carbon as adsorbent for the removal of Cephalexin from aqueous solutions.

Materials and Methods: This study was performed in a batch system at a laboratory scale. The influence of process variables such as pH of solution, adsorbent dosage, initial Cephalexin concentration and contact time were investigated. Equilibrium study data were modeled using Langmuir, Freundlich and Temkin. Moreover, kinetic studies were done by models of pseudo first order and pseudo second order.

Results: This research found that the Cephalexin adsorption efficiency decreased by increasing pH from 2 to 14, so that after 3 hours, the adsorption efficiency at the 20 mg/L initial Cephalexin concentration and 0.2 g adsorbent, obtained 92.812%, 90.525% and 41.394% at pH 2, 3.5 and 14, respectively. The adsorption of Cephalexin was fitted with Langmuir isotherm and pseudo second order kinetic models.

Conclusion: The present study showed that the granular activated carbon not only can be simply and rapidly separated from aqueous solutions, but also has high potential for adsorption and separation of Cephalexin and such pollutants from aqueous solutions.

Keywords: Adsorption, Cephalexin, Granular activated carbon, Kinetic study, Aqueous solutions

► **Citation:** Hemmati M, Ghaemi A, Tavakkoli H. Removal of Cephalexin Antibiotic from Aqueous Solutions by Activated Carbon Adsorbent. *Iranian Journal of Research in Environmental Health*. Spring 2019;5 (1):11-20.

حذف آنتی‌بیوتیک سفالکسین از محلول‌های آبی با استفاده از جاذب کربن فعال

چکیده

زمینه و هدف: مشکلات محیط زیستی ناشی از ورود آنتی‌بیوتیک‌ها به منابع آبی، به علت سمی بودن و اثرات پایدار آنها، تهدیدی جدی به شمار می‌رود. مطالعه حاضر با هدف بررسی کارایی کربن فعال گرانولی به عنوان جاذب در حذف سفالکسین از محلول‌های آبی صورت گرفت.

مواد و روش‌ها: آزمایشات در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت ناپیوسته انجام گرفت. تأثیر متغیرهای مؤثر در فرآیند حذف سفالکسین، از جمله pH، مقدار جاذب، غلظت اولیه سفالکسین و زمان تماس بررسی شد. برای ارزیابی داده‌های جذب، ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیچ و تمکین، همچنین سینتیک جذب با مدل‌های شبه مرتبه اول و شبه مرتبه دوم، مطالعه شدند.

یافته‌ها: نتایج نشان داد افزایش pH محلول اولیه از ۲ به ۱۴، کارایی جذب سفالکسین را کاهش می‌دهد؛ به طوری که در غلظت اولیه ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر و ۰/۲ گرم از جاذب، بعد از ۳ ساعت، کارایی جذب برای pH های ۲، ۳/۵ و ۱۴ به ترتیب ۹۲/۸۱۲٪، ۹۰/۵۲۵٪ و ۴۱/۳۹۴٪ به دست آمد. جذب سفالکسین با مدل ایزوترم لانگمویر و سینتیک شبه مرتبه دوم مطابقت داشت.

نتیجه‌گیری: کربن فعال گرانولی علاوه بر داشتن ویژگی‌هایی چون جداسازی سریع و آسان، پتانسیل بالایی برای جذب و جداسازی سفالکسین و چنین آلاینده‌هایی از محیط‌های آبی دارد.

کلید واژه‌ها: جذب سطحی، سفالکسین، کربن فعال گرانولی، محلول‌های آبی، مطالعه سینتیکی

مریم همتی

کارشناس ارشد شیمی تجزیه، گروه شیمی، واحد علوم و تحقیقات خوزستان، دانشگاه آزاد اسلامی، اهواز، ایران.

آرزو قائمی

* استادیار شیمی تجزیه، گروه شیمی، واحد اهواز، دانشگاه آزاد اسلامی، اهواز، ایران. (نویسنده مسئول):
arezooghaemi@yahoo.com

هامان توکلی

استادیار شیمی معدنی، گروه شیمی، واحد اهواز، دانشگاه آزاد اسلامی، اهواز، ایران.

تاریخ دریافت: ۱۳۹۷/۱۰/۲۱

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۸/۰۳/۰۷

نوع مقاله: مقاله پژوهشی

◀ **استناد:** همتی م، قائمی الف، توکلی ه. حذف آنتی‌بیوتیک سفالکسین از محلول‌های آبی با استفاده از جاذب کربن فعال. فصلنامه پژوهش در بهداشت محیط. بهار ۱۳۹۸؛ ۵(۱): ۱۱-۲۰.

مقدمه

آنتی‌بیوتیک‌ها، گروه بزرگی از مواد دارویی هستند که باعث از بین رفتن باکتری‌ها می‌شوند و یا سرعت رشد آنها را کاهش می‌دهند (۱). آنتی‌بیوتیک‌ها کاربرد گسترده‌ای در درمان عفونت‌های پزشکی دارند؛ به طوری که حدود ۱۵٪ مصرف کل داروها مربوط به آنها می‌باشد (۲). نکته مهم در مورد مصرف این مواد دارویی این است که فقط کمتر از ۱۰٪ این مواد در بدن تغییر شکل می‌یابند و بقیه بدون هیچ تغییری از بدن انسان دفع می‌گردند (۳). آنتی‌بیوتیک‌ها ممکن است به طرق مختلفی به درون محیط زیست راه پیدا کنند که از آن جمله می‌توان به انتشار از سایت‌های تولید، فاضلاب خانگی، بیمارستانی، دفع تدریجی داروهای تاریخ گذشته یا استفاده نشده، اعمال پوستی داروها و شسته شدن آنها از محل اعمال روی پوست یا از روی لباس‌های آلوده و ملحفه‌ها اشاره کرد (۴). مشکلات محیط زیستی ناشی از رهاسازی آنتی‌بیوتیک‌ها در منابع آبی، تهدیدی جدی به شمار می‌رود؛ به طوری که تعطیلی بسیاری از واحدهای تولیدی را حتی در کشورهای پیشرفته، موجب شده است. نتایج نشان می‌دهد که آنتی‌بیوتیک‌ها در فرآیندهای تصفیه بیولوژیکی به طور کامل حذف نمی‌شوند و به آب پذیرنده می‌رسند. بیشترین اثر آنها، سمیت در میکروارگانیسم‌های موجود در محیط زیست است که تعادل اکولوژی را به هم می‌زنند (۵). آنتی‌بیوتیک‌ها همچنین ممکن است به عنوان کود مایع یا لجن فاضلاب به عنوان بارور کننده مورد استفاده قرار گیرند. در نتیجه به محیط‌های آبی، خاک و زنجیره غذایی وارد می‌شوند و باعث مقاومت میکروارگانیسم‌ها در مقابل آنها شده و سبب ایجاد مقاومت دارویی در افراد می‌شوند و در صورت بروز هرگونه عفونت در بدن، آنتی‌بیوتیک‌های متداول نمی‌توانند در مقابل میکروب‌ها از خود واکنش نشان دهند (۶). درصد قابل توجهی از داروهای مصرف نشده و یا تاریخ گذشته نیز از طرق مختلف به منابع آب سطحی و زیرزمینی راه می‌یابند (۷). سفالکسین، یک آنتی‌بیوتیک سفالوسپورین است که دارای خواص ضد میکروبی بوده و در درمان گروه زیادی از بیماری‌های عفونی مانند

عفونت‌های تنفسی، عفونت‌های گوش میانی، عفونت پوست و بافت نرم، عفونت‌های استخوانی یا مفصلی، عفونت‌های ادراری و تناسلی مؤثر است. به همین دلیل میزان استفاده از آنتی‌بیوتیک سفالکسین به صورت معمول بالا است و مقدار آن در پساب‌های دارویی بیشتر است (۸).

تاکنون روش‌های متعددی مانند اوزوناسیون و غشاهای زیستی (۹)، فیلترهای بیولوژیکی (۱۰) و اسمز معکوس (۱۱) برای حذف مواد دارویی از فاضلاب به کار گرفته شده است، اما فرآیند جذب در مقایسه با تکنیک‌های دیگر تصفیه از نظر هزینه اولیه، استفاده مجدد از پساب، سادگی و انعطاف پذیری در طراحی، بهره‌برداری آسان و غیرحساس بودن به آلاینده‌ها و ترکیبات سمی، مورد توجه بیشتری قرار گرفته است. تولید پساب با کیفیت بالا و عدم تشکیل رادیکال‌های آزاد و محصولات فرعی سمی و خطرناک و کم‌هزینه بودن، از مزایای دیگر جذب محسوب می‌شوند (۱۲). از میان جاذب‌های سطحی، کربن فعال به علت داشتن ویژگی‌های منحصر به فردی همچون تخلخل زیاد، سطح مخصوص و ظرفیت جذب بسیار بالا، اندازه منافذ مطلوب و حفرات درونی زیاد و واکنش سطح زیاد، یکی از متداول‌ترین جاذب‌ها در فرآیند جذب سطحی می‌باشد (۱۳). تاکنون حذف سفالکسین از محیط‌های آبی با استفاده از کربن فعال تهیه شده از ساقه درخت سدر (۱۴)، کربن تهیه شده از تخم گل ابریشم (۱۵)، نانوکربن تهیه شده از چوب تاک (۱۶) و غیره مورد بررسی قرار گرفته است.

مطالعه حاضر با هدف حذف آنتی‌بیوتیک سفالکسین از آب‌های سطحی و محیطی انجام شد که برای این منظور، از کربن فعال گرانولی به عنوان جاذب ارزان قیمت و با کارایی بالا استفاده شد و نتایج رضایت‌بخشی به دست آمد. همچنین مطالعات سنتیکی و ایزوترم‌های جذب نیز بررسی گردید.

روش کار

مواد مورد استفاده در این تحقیق شامل کربن فعال گرانولی با

۵، ۴، ۳، ۲، ۱) در زمان‌های مختلف (۱، ۲، ۳، ۴، ۵، ۶، ۷، ۸، ۱۰، ۱۲ و ۱۴ در زمان‌های مختلف (۱، ۲، ۳، ۴، ۵، ۶ ساعت) انجام گرفت و مخلوط واکنش با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه روی شیکر و در دمای آزمایشگاه هم زده شد. همچنین برای جداسازی ذرات جاذب بعد از پایان فرآیند جذب، از کاغذ صافی استفاده شد. مراحل انجام آزمایشات شامل بررسی تأثیر پارامترهایی همچون pH محلول، غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک، مقدار جاذب و نیز زمان واکنش بر روی کارایی جذب، به صورت مراحل مجزا انجام گرفت. در هر مرحله با ثابت نگه داشتن تمامی متغیرها و با تغییر تنها یک متغیر، مقدار بهینه برای پارامتر مورد نظر تعیین گردید. در نهایت غلظت باقی‌مانده آنتی‌بیوتیک پس از جذب، توسط دستگاه اسپکترومتر ماوراء بنفش- مرئی دو پرتویی در طول موج ۲۶۰ نانومتر اندازه‌گیری شد.

محاسبات بازده جذب و ظرفیت جذب

برای محاسبه بازده حذف و ظرفیت تعادلی جذب به ترتیب می‌توان از معادلات (۱) و (۲) استفاده نمود (۱۷):

$$Re(\%) = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

$$q_e = \frac{V(C_0 - C_e)}{m} \quad (2)$$

که در آن Re بازده حذف بر حسب درصد، C_0 و C_e به ترتیب غلظت اولیه و غلظت تعادلی سفالکسین بر حسب میلی‌گرم بر لیتر، q_e ظرفیت جذب تعادلی جاذب بر حسب میلی‌گرم بر گرم، m جرم جاذب بر حسب گرم و V حجم محلول بر حسب لیتر می‌باشند.

بررسی سینتیک و ایزوترم جذب

مطالعه سینتیک فرآیند جذب، به منظور بررسی عوامل مؤثر بر سرعت واکنش ضروری است. دو مدل بسیار مهم که به طور گسترده‌ای در منابع برای فرآیند جذب به کار می‌روند، سینتیک شبه مرتبه اول و سینتیک شبه مرتبه دوم می‌باشند، لذا در این تحقیق از مدل‌های شبه مرتبه اول و شبه مرتبه دوم برای توصیف داده‌های به دست آمده توسط طیف‌سنجی ماوراء بنفش- مرئی استفاده شد و نمودار این مدل‌ها رسم گردید. برای این منظور

خلوص ۹۹٪، سدیم هیدروکسید با خلوص ۹۹٪ و هیدروکلریک اسید با خلوص ۳۷٪ بودند که همگی از شرکت مرک تهیه شدند و سفالکسین پودری با خلوص ۹۹٪ از شرکت داروسازی دانا خریداری شد. آب مقطر دو بار تقطیر شده از آزمایشگاه مرکزی دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات خوزستان تهیه شد. برای اندازه‌گیری pH، از pH متر مدل اف ۱۱ ساخت کمپانی هوربا کشور ژاپن، برای تعیین غلظت سفالکسین باقی‌مانده در پایان آزمایشات از دستگاه اسپکترومتر ماوراء بنفش- مرئی^۱ دو شعاعی لامبدا ۳۵۲ ساخت کمپانی پرکین المر^۲ کشور آلمان، برای توزین از ترازوی دیجیتال با دقت ۰/۰۰۰۱ گرم مدل کالج ساخت کشور سوئیس و برای اختلاط و تماس محلول با جاذب، از شیکر (تکان‌دهنده) مدل اچ اس ۵۰۱^۴ ساخت شرکت آلمان استفاده شد.

تهیه جاذب کربن فعال گرانولی

کربن فعال گرانولی ساخت شرکت مرک، به صورت آماده خریداری شد و برای یکسان‌سازی بیشتر سایز ذرات، کربن فعال گرانولی از الک با مش‌های ۱۶ و ۱۴ عبور داده شد. از بین آن‌ها، ذرات عبور داده شده از الک با مش ۱۶ برای انجام آزمایشات بعدی مورد استفاده قرار گرفت.

آزمایشات جذب

مطالعه حاضر در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت ناپیوسته در دمای محیط انجام شد. غلظت‌های مورد نیاز از محلول سفالکسین تهیه و pH آنها به کمک محلول‌های هیدروکلریک اسید ۰/۱ مولار^۵ و سود ۰/۱ مولار، توسط دستگاه pH متر تنظیم گردید. اندازه‌گیری جذب با مخلوط کردن مقادیر مختلفی از کربن فعال گرانولی (۰/۱، ۰/۲، ۰/۳، ۰/۴ گرم) به عنوان جاذب، در ۱۵ میلی‌لیتر محلول سفالکسین (جذب‌شونده) با غلظت‌های مختلف (۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰، ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر) و در pH های ۲، ۳، ۴، ۵، ۳،

1. UV-Vis
2. Lambda35
3. Perkin Elmer
4. HSS01
5. Molar (M)

مایع پس از رسیدن به حالت تعادل بر حسب میلی‌گرم بر لیتر، بیشینه ظرفیت جذب بر حسب میلی‌گرم بر گرم و k_L ثابت ایزوترم لانگمویر بر حسب لیتر بر میلی‌گرم می‌باشد که برای هر سیستم خاص، در دمای مشخص تعیین می‌شود.

معادله خطی ایزوترم فروندلیچ در رابطه (۶) نشان داده شده

$$q_e = k_f \cdot C_e^{1/n} \quad (6)$$

که n و k_f مقادیر ثابت‌های تجربی ایزوترم فروندلیچ هستند که ظرفیت جذب سطحی را نشان می‌دهند. n نشان‌دهنده تمایل جذب سطحی است و k_f به‌عنوان ضریب سطحی، نشان‌دهنده مقدار جذب شونده روی کربن فعال برای هر واحد غلظت تعادلی است.

شکل معادله همدمای تمکین به صورت رابطه (۷) می‌باشد:

$$q_e = \frac{RT}{B_T} \ln K_T + \frac{RT}{B_T} \ln C_e \quad (7)$$

در این معادله R ثابت گازها بر حسب ژول بر مول در کلونین، B_T ثابت جاذب گرمایی تمکین بر حسب ژول بر مول، K_T ثابت همدمای تمکین بر حسب لیتر بر گرم و T دما بر حسب کلونین می‌باشد.

یافته‌ها

بررسی ویژگی‌های سطحی کربن فعال

میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) نوعی میکروسکوپ الکترونی است که قابلیت عکسبرداری از سطوح با بزرگ‌نمایی ۱۰ تا ۵۰۰۰۰۰ برابر با قدرت تفکیکی کمتر از ۱ تا ۲۰ نانومتر (بسته به نوع نمونه) را دارد. شکل ۱ الف، ویژگی‌های سطحی کربن فعال را با بزرگ‌نمایی ۱۰۰۰ برابر که با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی مدل ۱۴۰۰ ال ای او^۲ ساخت کشور انگلستان

۶ ظرف شیشه‌ای حاوی ۱۵ میلی‌لیتر محلول سفالکسین ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر با $pH=3/5$ مخلوط شده با ۰/۲ گرم جاذب، به مدت ۱ تا ۶ ساعت بر روی شیکر با سرعت ۱۵۰ دور بر دقیقه قرار داده شد و در پایان مخلوط حاصل با کمک کاغذ صافی صاف گردید و جذب محلول زیر صافی در طول موج ۲۶۰ نانومتر خوانده شد. معادلات (۳) و (۴) به ترتیب معادلات خطی سینتیک شبه مرتبه اول و شبه مرتبه دوم را نشان می‌دهند:

$$\log(q_e - q_t) = \log q_e - \frac{k_1}{2.303} t \quad (3)$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (4)$$

که در آنها q_e و q_t به ترتیب مقدار سفالکسین جذب شده در زمان t و مقدار سفالکسین جذب شده در زمان تعادل بر حسب میلی‌گرم بر گرم، K_1 ضریب سرعت معادله شبه مرتبه اول بر حسب بر دقیقه و K_2 ضریب سرعت معادله شبه مرتبه دوم بر حسب گرم بر میلی‌گرم در دقیقه و t زمان بر حسب دقیقه می‌باشد.

ایزوترم جذب

تجزیه و تحلیل داده‌های همدما برای پیشگویی ظرفیت جذب جاذب و طراحی سیستم‌های جذب سطحی بسیار حائز اهمیت است. مدل همدمای جذب سطحی تعادلی، تعداد میلی‌گرم جذب شده به ازای هر گرم جاذب (q_e) را در مقابل غلظت تعادلی جذب شونده (C_e) بیان می‌کند. تغییرات q_e بر حسب C_e ، برای توصیف و تشریح چگونگی برهمکنش بین جاذب و جذب‌شونده بسیار حائز اهمیت است. داده‌های تجربی در این مطالعه با سه همدمای لانگمویر، فروندلیچ و تمکین بررسی گردید. صورت خطی رابطه همدمای لانگمویر به صورت معادله (۵) بیان می‌شود (۱۸):

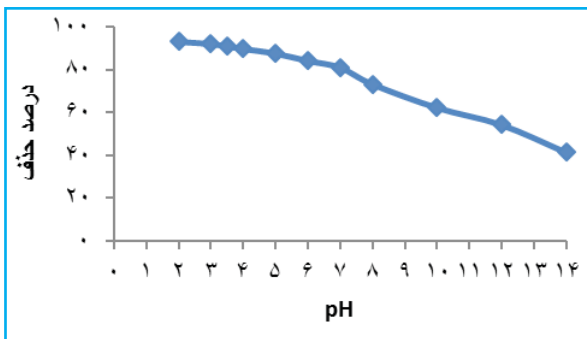
$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{k_L q_{max}} + \frac{C_e}{q_{max}} \quad (5)$$

که در آن q_e مقدار ماده جذب شده در واحد جرم کربن فعال بر حسب میلی‌گرم بر گرم، C_e غلظت ماده جذب‌شونده در فاز

1. J/mol.K
2. J/mol
3. Scanning Electron Microscopy
4. LEO1400

تأثیر pH محلول اولیه بر جذب سفالکسین

برای بررسی اثر pH، محلول‌های ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر سفالکسین در pHهای ۲، ۳، ۳/۵، ۴، ۵، ۶، ۷، ۸، ۱۰، ۱۲ و ۱۴ تهیه گردید و ۱۵ میلی‌لیتر از هر کدام در ظروف مجزا با ۰/۱ گرم جاذب به مدت ۲ ساعت بر روی شیکر مخلوط گردید. نتایج حاصل از بررسی اثر pH محلول اولیه در نمودار ۱ نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می‌شود، با افزایش pH محلول از ۲ به ۱۴، کارایی حذف کاهش می‌یابد؛ به طوری که در pH=۲، بیشترین میزان حذف سفالکسین برابر با ۹۳/۰۱۸٪ اتفاق افتاد. در pH=۳/۵ (pH محلول اولیه) ۹۰/۱۸۱٪ حذف و در pH=۱۴، ۴۱/۳۹۴٪ حذف صورت گرفت. با چشم‌پوشی از اختلاف ناچیز میزان درصد حذف سفالکسین در pH=۲ و pH=۳/۵ و با در نظر گرفتن ملاحظات بهره‌برداری، اقتصادی و ساده‌تر بودن روش، pH=۳/۵ (pH محلول اولیه)، به‌عنوان pH بهینه برای بررسی‌های بعدی انتخاب گردید.



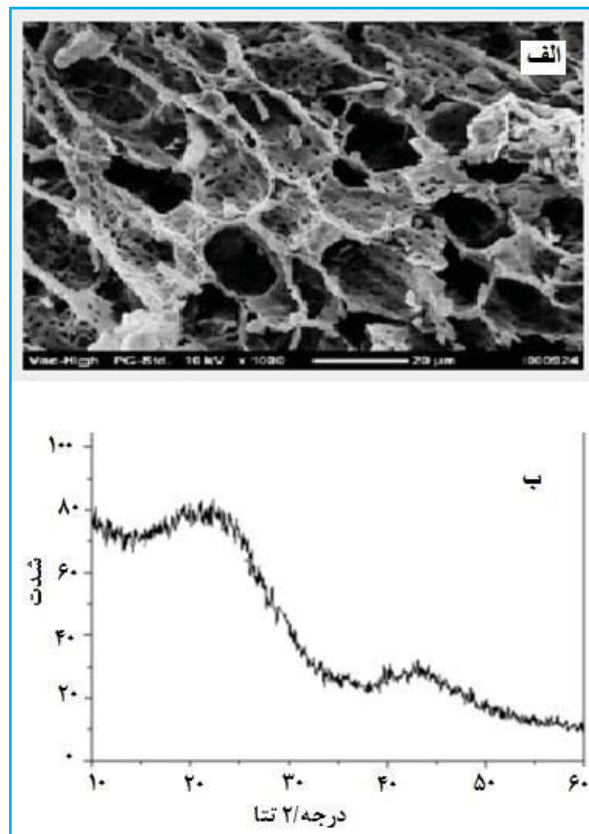
نمودار ۱. اثر pH بر حذف سفالکسین (۱۵ میلی‌لیتر محلول سفالکسین با غلظت ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر و زمان تماس ۲ ساعت)

تأثیر زمان تماس و دوز جاذب بر جذب سفالکسین

برای بررسی اثر زمان تماس و مقدار جاذب، به حجم‌های مشخصی از محلول نمونه، ۰/۱ گرم جاذب اضافه کرده و مخلوط حاصل برای زمان‌های ۱، ۲، ۳، ۴، ۵ و ۶ ساعت بر روی شیکر قرار داده شد. همین عمل برای مقادیر ۰/۲، ۰/۳ و ۰/۴ گرم از جاذب تکرار شد. نتایج حاصل در نمودار ۲ نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می‌شود، افزایش زمان تماس و مقدار جاذب، سبب افزایش کارایی حذف سفالکسین می‌گردد. بر اساس نتایج به‌دست آمده، کارایی

مورد بررسی قرار گرفت را نشان می‌دهد. تصویر سطح کربن فعال گرانولی حاکی از وجود ساختار متخلخل در مقیاس میکرو و منافذ با اندازه‌های مختلف و توزیع تقریباً یکنواخت می‌باشد.

در شکل ۱ ب، الگوی پراش اشعه ایکس کربن فعال گرانولی تهیه شده، نشان داده شده است. این الگو دو پیک نسبتاً پهن را نشان می‌دهد که در غياب وجود پیک تیز حاکی از ساختار آمورف کربن فعال است. این دو پیک پهن در زاویه‌های براگ $2\theta = 25, 43$ ظاهر شده‌اند که به ترتیب مربوط به صفحات پراش (۰۰۲) و (۱۰۰) می‌باشند. ساختار متخلخل کربن فعال که با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی نیز تأیید گردید، باعث پهن شدن پیک در زاویه ۲۵ درجه شده است و همچنین پیک صفحه (۱۰۰) در زاویه حدود ۴۳ درجه را کاهش داده است.



شکل ۱. الف) تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی کربن فعال گرانولی (با بزرگ‌نمایی ۱۰۰۰ برابر)، ب) الگوی پراش اشعه ایکس کربن فعال گرانولی

سینتیک و ایزوترم جذب سفالکسین بر روی کربن فعال گرانولی

مطالعات سینتیکی جذب سفالکسین بر روی کربن فعال گرانولی با استفاده از مدل‌های شبه مرتبه اول و شبه مرتبه دوم انجام شد. تطابق داده‌های تجربی این دو مدل توسط ضرایب همبستگی (R^2) تعیین می‌شوند. مقدار R^2 به دست آمده از مدل شبه مرتبه اول برابر با ۰/۸۵۸۲ بود که از مقدار محاسبه شده از مدل شبه مرتبه دوم (۰/۹۹۹۸)، کمتر بود که نشان‌دهنده این است که جذب سطحی سفالکسین از محلول آبی توسط کربن فعال از مدل سینتیکی شبه مرتبه دوم تبعیت می‌کند. بررسی ایزوترم منطبق بر جذب سفالکسین بر کربن فعال، با استفاده از همدماهای لانگمویر، فروندلیچ و تمکین مورد مطالعه قرار گرفت و ضرایب ایزوترمیک جذب سفالکسین در جدول ۱ آورده شده است. برای انتخاب ایزوترم جذب منطبق بر جذب سفالکسین بر روی کربن فعال نیز از ضریب همبستگی (R^2) استفاده شد که بر اساس نتایج به دست آمده، ضریب همبستگی برای ایزوترم لانگمویر از ضرایب همبستگی ایزوترم‌های فروندلیچ و تمکین بیشتر بود، بنابراین مدل لانگمویر نسبت به دو مدل دیگر، جذب سطحی سفالکسین را روی ذرات کربن فعال بهتر توصیف کرده بود.

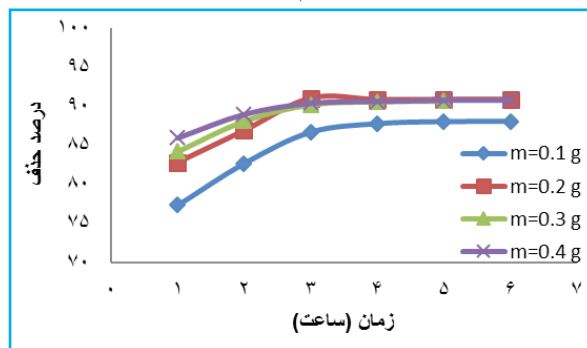
جدول ۱. پارامترهای همدماهای لانگمویر، فروندلیچ و تمکین برای جذب سفالکسین بر روی کربن فعال گرانولی (غلظت محلول اولیه ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر، مقدار جذب ۰/۲ گرم، $pH=3/5$)

ایزوترم لانگمویر			ایزوترم فروندلیچ			ایزوترم تمکین		
R^2	K_L (L/mg)	q_{max} (mg/g)	R^2	K_F (L/mg)	n	R^2	K_T	B_T
۰/۹۹۹۲	۱/۱۹۱۲	۲/۹۳۴۳	۰/۶۹۲۹	۱/۵۲۰۹	۳/۹۸۵۷	۰/۷۰۲۶	۱۷/۰۵۸۰	۰/۵۳۲۵

بحث

در این مطالعه، پارامترهای تأثیرگذار بر روی جذب نظیر pH ، دوز جذب، زمان تماس و غلظت اولیه سفالکسین مورد بررسی قرار گرفت. pH محلول، یک پارامتر مهم و مؤثر بر جذب سطحی می‌باشد که نقش مهمی در کل فرآیند دارد و نه تنها بار سطحی

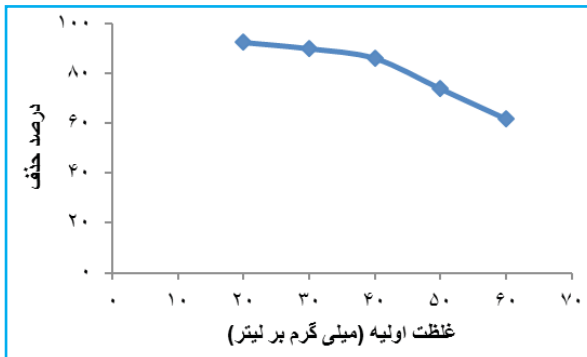
جذب سفالکسین در پایان زمان ۳ ساعت از فرآیند به ۹۰/۹۹۱٪ حذف رسید که در مقایسه با کارایی مشاهده شده در پایان زمان ۴ ساعت که برابر با ۹۰/۷۹۴٪ حذف بود، تغییر چندانی نداشت، لذا زمان تعادل برای فرآیند، ۳ ساعت در نظر گرفته شد. همچنین با افزایش مقدار جذب از ۰/۱ تا ۰/۴ گرم، کارایی حذف سفالکسین از ۸۶/۶۳۶٪ به ۹۰/۳۹۴٪ افزایش یافت. بیشترین میزان کارایی حذف برابر با ۹۰/۹۹۱٪ بود که در مقدار ۰/۲ گرم از جذب اتفاق افتاد.



نمودار ۲. بررسی اثر زمان‌های تماس بر بازدهی حذف سفالکسین توسط مقادیر مختلف جذب (۱۵ میلی‌لیتر سفالکسین ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر و $pH=3/5$)

تأثیر تغییرات غلظت محلول اولیه بر جذب سفالکسین

افزایش غلظت سفالکسین از ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر به ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر، کارایی حذف را از ۹۲/۵۴٪ به ۶۱/۶۹٪ کاهش داد. این نتیجه نشان می‌دهد که افزایش غلظت اولیه محلول سفالکسین بر روی کارایی حذف تأثیر منفی داشته است. نتایج حاصل از بررسی اثر غلظت در نمودار ۳ نشان داده شده است.



نمودار ۳. اثر غلظت اولیه سفالکسین بر بازده حذف (مقدار جذب ۰/۲ گرم، ۱۵ میلی‌لیتر از غلظت‌های مختلف سفالکسین با $pH=3/5$ و زمان تماس ۳ ساعت)

توسط جایگاه‌های فعال داخلی انجام پذیرد (۲۱). برای بررسی اثر غلظت سفالکسین در شرایط بهینه، محلول‌هایی با غلظت‌های ۲۰ تا ۶۰ میلی‌گرم بر گرم از سفالکسین مورد مطالعه قرار گرفتند و مشاهده شد که با افزایش غلظت سفالکسین از ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر به ۶۰ میلی‌گرم بر لیتر، درصد حذف سفالکسین از ۵۴/۹۲٪ به ۶۹/۶۱٪ کاهش یافت. این امر به این علت است که در غلظت‌های بالاتر ماده جذب‌شونده، میزان دسترسی به مکان‌های جذب کمتر می‌شود. به‌منظور دست یافتن به اطلاعاتی در مورد عوامل مؤثر بر سرعت واکنش، ارزیابی سینتیک جذب ضروری است. در این مطالعه مطابقت داده‌های تجربی با سینتیک جذب با مقایسه مقادیر R^2 برای دو مدل سینتیکی مورد بررسی قرار گرفت که بر اساس نتایج، مقدار R^2 برای مدل سینتیکی شبه مرتبه اول ۰/۸۵۸۲ بود که از مقدار آن برای مدل شبه مرتبه دوم یعنی ۰/۹۹۹۸، کمتر بود که نشان‌دهنده این است که سینتیک سرعت جذب سطحی سفالکسین از محلول آبی توسط کربن فعال گرانولی از مدل سینتیکی شبه مرتبه دوم تبعیت می‌کند و بیانگر این است که غلظت هر دو جزء جاذب و جذب‌شونده (کربن فعال و سفالکسین) در سرعت فرآیند جذب نقش داشته‌اند. همدمای جذب، یکی از فاکتورهای بسیار تأثیرگذار در طراحی سیستم‌های جذب می‌باشد. داده‌های تجربی در این پژوهش با معادله‌های همدمای تمکین، فروندلیچ و لانگمویر مورد بررسی قرار گرفت. ضریب همبستگی (R^2) همدمای تمکین ۰/۷۰۲۶، همدمای فروندلیچ ۰/۶۹۲۹ و همدمای لانگمویر ۰/۹۹۱۲ به‌دست آمد. از این رو همدمای لانگمویر نسبت به دو همدمای دیگر، جذب سطحی سفالکسین را روی ذرات جاذب بهتر توصیف کرده است و بیانگر جذب به‌صورت تک لایه‌ای می‌باشد.

نتیجه‌گیری

در این پژوهش کارایی کربن فعال گرانولی در حذف آنتی‌بیوتیک سفالکسین از محیط‌های آبی مورد مطالعه و بررسی قرار گرفت. همانطور که از نتایج مشخص است با افزایش pH، راندمان حذف سفالکسین کاهش یافت. افزایش زمان تماس و مقدار جاذب سبب افزایش کارایی جذب

جاذب را تحت تأثیر قرار می‌دهد، بلکه درجه یونیزاسیون مواد موجود در محلول و تفکیک گروه‌های عاملی روی مکان‌های فعال جذب و همچنین شیمی محلول را نیز متأثر می‌کند و نقشی ضروری در جاذبه الکتروستاتیکی بین جاذب و جذب‌شونده ایفا می‌کند (۱۹). اثر pH در محدوده ۲ تا ۱۴ مطالعه شد و مشاهده گردید که بیشترین درصد حذف سفالکسین در pH‌های پایین رخ داده است و با افزایش pH از ۲ به ۱۴، درصد حذف سفالکسین از ۱۸/۹۳٪ به ۴۱/۳۹۴٪ کاهش یافت. دلیل بالا بودن درصد حذف در pH‌های اسیدی را می‌توان اینگونه بیان کرد که در pH‌های اسیدی، سایت‌های فعال موجود در سطح جاذب، پروتونه شده و دانسیته بار موجود در سطح جاذب افزایش می‌یابد. با توجه به ساختار مولکولی سفالکسین و دارا بودن پیوند هیدروکسید و آمین، سفالکسین تمایل به جذب بار مثبت دارد، به همین دلیل وقتی pH کم می‌شود، به‌دلیل جاذبه الکتروستاتیکی بین جاذب و جذب‌شونده، درصد حذف افزایش می‌یابد (۲۰). زمان، نقش اساسی در مدل‌سازی و طراحی فرآیند جذب دارد. در این مطالعه اثر زمان تماس بر روی جذب، در زمان‌های ۱ تا ۶ ساعت با مقدار جاذب ۰/۱ تا ۰/۴ گرم مورد بررسی قرار گرفت که بر اساس نتایج، با افزایش زمان تماس و افزایش مقدار جاذب، درصد حذف سفالکسین افزایش پیدا کرد. با مقدار ۰/۲ گرم از جاذب، بازده حذف سفالکسین از ۸۱/۸۲٪ در یک ساعت به ۹۰/۸۳٪ در ششمین ساعت افزایش پیدا کرد. همچنین با افزایش زمان، ظرفیت جذب افزایش یافت و سپس با اشغال تمامی جایگاه‌های فعال روی جاذب، سرعت جذب کاهش یافت تا در نهایت به تعادل رسید. جذب سریع سفالکسین در زمان‌های ابتدایی می‌تواند به این دلیل باشد که در ابتدای انجام فرآیند جذب، مکان‌های جذب فراوانی در دسترس است و آلاینده به راحتی در این مکان‌ها جذب می‌شود، اما به مرور زمان، تغییرات درصد حذف سفالکسین تغییر چندانی از خود نشان نمی‌دهد. این امر می‌تواند ناشی از اشباع شدن جایگاه‌های فعال خارجی جاذب و یا دسترسی مشکل مولکول‌های سفالکسین به مکان‌های فعال روی سطح جاذب باشد و نیاز به زمان بیشتری است تا فرآیند جذب

ملاحظات اخلاقی

نویسندگان کلیه نکات اخلاقی شامل عدم سرقت ادبی، انتشار دوگانه، تحریف داده‌ها و داده‌سازی را در این مقاله رعایت کرده‌اند. همچنین هرگونه تضاد منافع حقیقی یا مادی که ممکن است بر نتایج یا تفسیر مقاله تأثیر بگذارد را رد می‌کنند.

تشکر و قدردانی

این مقاله بخشی از پایان‌نامه کارشناسی ارشد بوده که با حمایت دانشگاه آزاد اسلامی واحد اهواز انجام شده است. بدین وسیله از پشتیبانی و کمک‌های معاونت پژوهشی دانشگاه تشکر و قدردانی می‌شود.

سفالکسین شد. همچنین با افزایش غلظت اولیه سفالکسین، میزان جذب کاهش یافت. در $\text{pH}=3/5$ ، کارایی حذف سفالکسین با غلظت اولیه ۲۰ میلی‌گرم بر لیتر و مقدار ۰/۲ گرم از جاذب در پایان ۳ ساعت از فرآیند، برابر با ۹۲/۵۴٪ مشاهده شد. مطالعه حاضر نشان داد که کربن فعال گرانولی علاوه بر داشتن ویژگی‌هایی چون جداسازی سریع و آسان، پتانسیل بالایی را برای حذف سفالکسین دارد، لذا می‌توان از آن برای جذب و جداسازی چنین آلاینده‌هایی از محیط‌های آبی استفاده نمود.

References

- Lieberman JM. Appropriate antibiotic use and why it is important: the challenges of bacterial resistance. *The Pediatric Infect. Disease J* 2003; 22(12): 1143-51.
- Vieno NM, Tuhkanen T, Kronberg L. Analysis of neutral and basic pharmaceuticals in sewage treatment plants and in recipient rivers using solid phase extraction and liquid chromatography–tandem mass spectrometry detection. *J Chromatography A* 2006; 1134(1): 101-11.
- Kulik N, Trapido M, Goi A, et al. Combined chemical treatment of pharmaceutical effluents from medical ointment production. *Chemos* 2008; 70(8): 1525-31.
- Michael I, Rizzo L, McArdeell C, et al. Urban wastewater treatment plants as hotspots for the release of antibiotics in the environment: a review. *Water Res* 2013; 47(3): 957-95.
- Watkinson A, Murby E, Costanzo S. Removal of antibiotics in conventional and advanced wastewater treatment: implications for environmental discharge and wastewater recycling. *Water Res* 2007; 41(18): 4164-76.
- Mohammadi AS, Sardar M. The removal of penicillin G from aqueous solutions using chestnut shell modified with H_2SO_4 : Isotherm and kinetic study. *Iran J Health and Environ* 2013; 5(4): 497-508.
- Elmolla ES, Chaudhuri M. Combined photo-Fenton–SBR process for antibiotic wastewater treatment. *J Hazard Mater* 2011; 192(3): 1418-26.
- Nazari G, Abolghasemi H, Esmaili M. Batch adsorption of cephalixin antibiotic from aqueous solution by walnut shell-based activated carbon. *J Taiwan Inst Chem Eng* 2016; 58: 357-65.
- Rodayan A, Segura PA, Yargeau V. Ozonation of wastewater: removal and transformation products of drugs of abuse. *Sci Total Environ* 2014; 487: 763-70.
- Ziylan A, Ince NH. The occurrence and fate of anti-inflammatory and analgesic pharmaceuticals in sewage and fresh water: treatability by conventional and non-conventional processes. *J Hazard Mater* 2011; 187(1): 24-36.
- Gabet-Giraud V, Miège C, Choubert J, et al. Occurrence and removal of estrogens and beta blockers by various processes in wastewater treatment plants. *Sci Total Environ* 2010; 408(19): 4257-69.
- Iram M, Guo C, Guan Y, et al. Adsorption and magnetic removal of neutral red dye from aqueous solution using Fe_3O_4 hollow nanospheres. *J Hazard Mater* 2010; 181(1): 1039-50.
- Qu S, Huang F, Yu S, et al. Magnetic removal of dyes from aqueous solution using multi-walled carbon nanotubes filled with Fe_2O_3 particles. *J Hazard Mater* 2008; 160(2): 643-47.
- Liu H, Liu W, Zhang J, et al. Removal of cephalixin from aqueous solutions by original and Cu (II)/Fe (III) impregnated activated carbons developed from lotus stalks Kinetics and equilibrium studies. *J Hazard Mater* 2011; 185(2): 1528-35.
- Ahmed MJ, Theydan SK. Adsorption of cephalixin onto activated carbons from Albizia lebbek seed pods by microwave-induced KOH and K_2CO_3 activations. *Chem Eng J* 2012; 211: 200-07.
- Pouretedal H, Sadegh N. Effective removal of amoxicillin, cephalixin, tetracycline and penicillin G from aqueous solutions using activated carbon nanoparticles prepared

- from vine wood. J Water Pro Eng 2014; 1:64-73.
17. Su J, Lin H-f, Wang Q-P, et al. Adsorption of phenol from aqueous solutions by organomontmorillonite. Desalination 2011; 269(1): 163-69.
 18. Langmuir I. The Constitution and Fundamental Properties of Solid and Liquid. Part I. Solids. J Am Chem Soc. 1916; 38(11): 2221-95.
 19. Aksu Z, Tunç Ö. Application of biosorption for penicillin G removal: comparison with activated carbon. Pro. Biochem 2005; 40(2): 831-47.
 20. Gashtasbi F, Yengejeh RJ, Babaei AA. Photocatalysis assisted by activated-carbon-impregnated magnetite composite for removal of cephalexin from aqueous solution. Korean J Chem Eng 2018; 35: 1726–34.
 21. Gashtasbi F, Yengejeh RJ, Babaei AA. Adsorption of vancomycin antibiotic from aqueous solution using an activated carbon impregnated magnetite composite. Desalin Water Treat 2017; 88: 286-97.