

Research Paper

Investigation on the Removal of Entacapone From Contaminated Water Using Magnetic-Activated Carbon

*Mehdi Baghayeri¹, Behrooz Maleki², Ahmad Alahabadi³, Amirhassan Amiri⁴, Forough Reyahi Manesh⁴

1. Full Professor, Department of Analytical Chemistry, Faculty of Basic Science, Hakim Sabzevari University, Sabzevar, Iran.
2. Associate Professor, Department of Organic Chemistry, Faculty of Basic Science, Hakim Sabzevari University, Sabzevar, Iran.
3. Assistant Professor, Department of Environmental Health, School of Public Health, Sabzevar University of Medical Sciences, Sabzevar, Iran.
4. MSc. Student, Department of Organic Chemistry, Faculty of Basic Science, Hakim Sabzevari University, Sabzevar, Iran.

Citation: Baghayeri M, Maleki B, Alahabadi A, Amiri AH, Reyahi Manesh F. [Investigation on the Removal of Entacapone From Contaminated Water Using Magnetic-Activated Carbon (Persian)]. Journal of Sabzevar University of Medical Sciences. 2016; 23(3):458-467. <http://dx.doi.org/10.21859/sums-2303458>

doi: <http://dx.doi.org/10.21859/sums-2303458>

Received: 12 Mar. 2016

Accepted: 06 Jun. 2016

ABSTRACT

Background Pharmaceutical resources are becoming increasingly problematic contaminants of water resources, particularly in surface and groundwater sources located around industrial and residential communities. They enter water sources mostly through discharges from pharmaceutical industries and municipal wastewater. Consumption of water contaminated with pharmaceutical discharges can have several harmful effects like acute and chronic toxicity in humans. Another critical concern regarding pharmaceutical discharges in water sources is the development of bacterial resistance to medicinal treatment of bacterial infections.

Materials & Methods The activated carbon was purchased from Merck Co. A stock solution of 1000 mg/L of entacapone was prepared by dissolving 1.0 g entacapone in 1 L distilled water. In this study, two types of contaminated water (aqueous solution and contaminated real water) were prepared and examined. The aqueous solution was made from mixing aliquots of entacapone stock solution with distilled water. To determine the remaining entacapone in the samples, they were analyzed by a Hach UV-VIS spectrophotometer (DR5000).

Results This study showed that activated carbon could be functionalized with magnetic nanoparticles and such magnetic-activated carbon could be used as adsorbents for the removal of entacapone from water samples. The results showed that contact time, sample pH, concentration of entacapone, and concentration of the adsorbent were effective on the removal process. The equilibrium results showed the best fit with Langmuir model with a maximum adsorption capacity of 357.1 mg/g.

Conclusion We described here the preparation of magnetic-activated carbons in one reaction step, and the prepared carbon was used as the adsorbents to remove entacapone from water samples rapidly and effectively. The magnetic nanoparticles can be well immobilized on activated carbons and easily separated from the solution using an external magnet. The results revealed that magnetic-activated carbons could be used as the potential adsorbents for removing entacapone from environmental water.

Key words:

Activated carbon, Entacapone, Adsorption, Magnetic nanoparticles

* Corresponding Author:

Mehdi Baghayeri, PhD

Address: Department of Analytical Chemistry, Faculty of Basic Science, Hakim Sabzevari University, Sabzevar, Iran.

Tel: +98 (51) 44013325

E-mail: m.baghayeri@hsu.ac.ir

بررسی حذف ترکیب آلی انتاکاپون از محیط های آبی توسط کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات آهن

* مهدی بقایری^۱، بهروز ملکی^۲، احمد الله آبادی^۳، امیرحسین امیری^۱، فروغ ریاحی منش^۴

۱- استاد تمام، گروه شیمی تجزیه، دانشکده علوم پایه، دانشگاه حکیم سبزواری، سبزوار، ایران.

۲- دانشیار، گروه شیمی آلی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه حکیم سبزواری، سبزوار، ایران.

۳- استادیار، گروه بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی سبزواری، سبزوار، ایران.

۴- دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه شیمی آلی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه حکیم سبزواری، سبزوار، ایران.

چکیده

تاریخ دریافت: ۲۲ اسفند ۱۳۹۴

تاریخ پذیرش: ۱۷ خرداد ۱۳۹۵

اهداف: داروها از عوامل مهم آلاینده محیط زیست به شمار می آیند و به علت مشکلات مربوط به تجزیه زیستی، روش های جذب سطحی مناسب ترین روش برای تصفیه آن ها است. یکی از این جاذب ها کربن فعال است. هدف از این مطالعه بررسی میزان حذف داروی انتاکاپون توسط کربن فعال مرک است. استفاده از کربن فعال پودری مشکلات جداسازی کربن پس از تصفیه را به دنبال دارد، برای رفع این مشکل از مگنتیک کردن کربن با Fe_3O_4 استفاده شد.

مواد و روش ها: مطالعه حاضر به صورت تجربی آزمایشگاهی انجام شد. در هر آزمایش از ۵۰ میلی لیتر محلول انتاکاپون در راکتور شیشه ای با سرعت ۱۰۰ دور بر دقیقه، استفاده شد. این مطالعه تجربی به صورت ناپیوسته انجام شد و اثر متغیرهایی نظیر نوع جاذب، دوز جاذب، غلظت انتاکاپون، زمان تماس، pH و درجه حرارت بر روند جذب انتاکاپون توسط کربن فعال مغناطیسی شده با نانوذرات آهن و داده های تجربی تعادل جذب با مدل های ایزوترم جذب فروندلیچ و لانگمویر و سینتیک واکنش بررسی شد. نمونه ها پس از هر بار استخراج با آهنربای قوی جمع آوری شده، سپس آب فیلتر شده برای تعیین انتاکاپون باقی مانده، با دستگاه اسپکتروفتومتر بررسی شد.

یافته ها: نتایج این مطالعه نشان داد که $pH=6$ ، غلظت جاذب ۰/۶ گرم بر لیتر و زمان تماس ۵۰ دقیقه بهترین شرایط حذف انتاکاپون است. در این شرایط کربن فعال مغناطیسی توانست ۹۰ درصد انتاکاپون با غلظت ۵۰ میلی گرم در لیتر را حذف کند. همچنین بررسی ایزوترم های جذب مشخص کرد که آزمایش ها با مدل لانگمویر ($R=0/9929$) مطابقت دارد و حداکثر ظرفیت جذب، $357/1 mg/g$ است.

نتیجه گیری: نتایج نشان داد جاذب کربن فعال مغناطیسی مرک جذب بالایی دارد و با اعمال شرایط بهینه می توان از آن به عنوان جاذب مناسب برای حذف ترکیبات آلی از جمله داروها استفاده شود.

کلیدواژه ها:

کربن فعال مغناطیسی، انتاکاپون، جذب، نانوذره آهن

مقدمه

جنسیت اشاره کرد. بیماری پارکینسون به علت از دست دادن سلول های عصبی دوپامینرژیک ناحیه مغز میانی ایجاد می شود که منجر به کمبود دوپامین می شود. علائم اولیه بیماری شامل رعشه، کندی حرکت، خشکی اندام ها و سفتی عضلات است. با شدت گرفتن بیماری، علائمی نظیر اختلالات خواب، آشوب های خلقی و زوال عقل دیده می شود [۴-۷]. داروی انتاکاپون با فرمول شیمیایی $C_{14}H_{15}N_3O_5$ و جرم مولکولی ۳۰۵/۲۵، دارویی مهارکننده برای درمان بیماری پارکینسون است. این ترکیب به عنوان مهارکننده ای انتخابی برای کاکتول -O- متیل ترانسفر (COMT) است [۸].

در سال های اخیر نگرانی درباره آلودگی های ایجاد شده با ترکیبات دارویی مختلف در محیط زیست روبه افزونی است [۹]. در

با پیشرفت های علمی صورت گرفته در زمینه داروسازی و پزشکی، مصرف دارو به منظور درمان بیماری ها افزایش یافته است. ایران یکی از پر مصرف ترین کشورها در زمینه استفاده از دارو است [۱]. با شیوع بیماری، مصرف دارو برای درمان زیاد می شود. بیماری پارکینسون (PD) یکی از شایع ترین بیماری های پیش رونده عصبی در سیستم اعصاب مرکزی است. این بیماری مردان را ۱/۵ برابر بیشتر از زنان تهدید می کند. در سراسر جهان ۱۰ میلیون نفر از بیماری پارکینسون رنج می برند (آمار رسمی از تعداد بیماران مبتلا به پارکینسون در ایران گزارش نشده است) [۲، ۳]. از علل محیطی که منجر به شیوع بیماری پارکینسون می شود، می توان به سن و

* نویسنده مسئول:

دکتر مهدی بقایری

نشانی: سبزواری، دانشگاه حکیم سبزواری، دانشکده علوم پایه، گروه شیمی تجزیه.

تلفن: ۰۹۸ ۴۴۰۱۳۳۲۵ (۵۱)

پست الکترونیکی: m.baghayeri@hsu.ac.ir

مطالعه شده مغناطیس کردن آن‌ها و جداسازی با آهن ریاست. بدین منظور از نانوذرات مغناطیسی استفاده می‌شود [۱۹]. در این پژوهش حذف انتاکاپون از محلول‌های آبی آلوده توسط کربن فعال بررسی شده است. به منظور افزایش میزان حذف انتاکاپون و بهبود توان جمع‌آوری کربن فعال از نانوذرات مغناطیسی آهن به عنوان عامل بهینه‌کننده استفاده شده است.

مواد و روش‌ها

مواد شیمیایی

انتاکاپون از شرکت سیگما و ترکیبات $FeCl_2$ ، $FeCl_3$ و NH_3 از شرکت مرک آلمان خریداری شد. کربن فعال نیز از شرکت مرک آلمان خریداری شد و پیش از استفاده به صورت پودری درآمد. هیدروکلریک اسید و سدیم هیدروکسید از شرکت فلوکا تهیه شد. از محلول‌های هیدروکلریک اسید و سدیم هیدروکسید (۰/۱ نرمال) برای تنظیم pH محلول‌های آزمایشی استفاده شد. در هر مرحله pH محلول‌های تهیه شده با دستگاه pH متر تنظیم شد.

دستگاه‌ها

مطالعات اسپکتروفتومتری با استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر UV-Vis مدل DR5000 ساخت شرکت هک آمریکا انجام شد. برای تنظیم pH از دستگاه pH متر ساخت شرکت متروهم کشور سوئیس استفاده شد. تصویربرداری و بررسی ریخت‌شناسی نانوساختارها با استفاده از میکروسکوپ انتقال الکترونی AB912 LEO انجام شد. برای مخلوط کردن محلول‌ها از هیتر همزن مغناطیسی مدل RH Basic2 ساخت شرکت IKA آلمان استفاده شد. برای خارج کردن کربن فعال مغناطیسی از محلول نیز از آهن ربای مغناطیسی قوی (۱/۳ تسلا) استفاده شد.

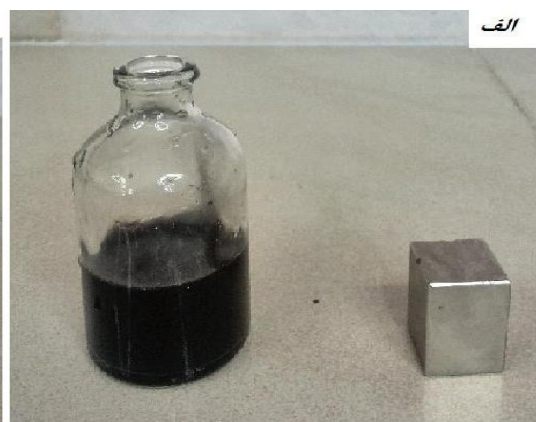
کشورهای پیشرفته نظیر آلمان، ایتالیا، انگلیس و آمریکا همه ساله بررسی‌هایی در زمینه اثرات منفی داروها روی محیط زیست و جانداران انجام می‌گیرد [۱۰]. به طور عمده این آلاینده‌ها از راه پساب صنایع داروسازی، فاضلاب بیمارستان‌ها و مواد دفعی انسان و دام وارد محیط زیست می‌شود [۱۱]. به عنوان مثال پس از مصرف دارو توسط انسان، مقداری از آن به صورت تجزیه نشده از بدن دفع شده و وارد فاضلاب می‌شود. مطالعات اخیر، غلظت برخی داروها را در آب‌های سطحی و زیرزمینی بین ۱ تا ۱۰۰ میکروگرم بر لیتر اعلام می‌کند [۱۰، ۱۱]. برای حل این مشکل، یافتن روش مناسبی برای تصفیه فاضلاب‌ها ضروری است.

تاکنون روش‌های مختلفی شامل تجزیه زیستی، حذف فیزیکی و اکسیداسیون شیمیایی برای تصفیه پساب‌ها پیشنهاد شده است. طولانی و وقت گیر بودن روش‌های تجزیه زیستی که به طور معمول شامل شکستن داروها به مولکول‌های ساده تر یا معدنی سازی آن‌ها در فرایند اکسیداسیون پیشرفته است، نشان دهنده پیچیده و پرهزینه و مشکل بودن این روش‌هاست. بنابراین روش‌های حذف فیزیکی بهترین راه برای تصفیه پساب‌هاست [۱۵-۱۲].

کربن فعال یکی از متداول‌ترین جاذب‌های فیزیکی است. در این جاذب، جذب شونده در محلول به سطوح داخلی کربن فعال وارد شده و در آن تجمع می‌کند. ظرفیت و تخلخل بالای کربن فعال سبب شده تا از آن برای تصفیه آلاینده‌های آلی (نظیر دارو)، رنگ‌ها، طعم‌ها و بوها استفاده شود [۱۶]. مطالعات زیادی روی کربن فعال صورت گرفته است. موسوی و همکاران [۱۷] میزان حذف داروی آموکسی سیلین را روی کربن فعال بررسی کردند [۱۷]. همچنین در تحقیقی مشابه جعفری و همکاران [۱۸] حذف رنگ متیلن بلور با استفاده از خاکستر پوست گردو بررسی کردند [۱۸]. مشکلی که در زمینه استفاده از کربن فعال پودری وجود دارد، جداسازی آن‌ها پس از تصفیه از محلول است؛ زیرا به علت کوچک بودن امکان صاف کردن بسیار سخت است. یکی از روش‌های پیشنهاد شده برای حذف مؤثر مواد جاذب از محلول



تصویر ۱. ب) کربن فعال مغناطیسی جذب شده به وسیله آهن ربا.



تصویر ۱. الف) کربن فعال مغناطیسی پخش شده در محلول.

تهیه کربن فعال مغناطیسی

ابتدا ۱۶ میلی مول معادل ۴/۴۳ گرم $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ و ۸ میلی مول از $FeCl_2 \cdot H_2O$ معادل ۱/۶۲۵ رادر ۲۰۰ میلی لیتر آب مقطر یون زدایی شده حل کردیم، سپس به آرامی ۱۰ میلی لیتر از NH_3 ۲۵ درصد را به آن اضافه نمودیم [۲۰]. پس از مشاهده اولین رسوب نانوذرات آهن (رسوب سیاه رنگ) پودر کربن فعال را اضافه کردیم و پس از مصرف تمام آمونیاک، ۱۵ دقیقه دیگر به صورت متوالی هم زدن را ادامه دادیم. محلول را سه مرتبه با آب مقطر شستیم و با آهن ربای مغناطیسی قوی جدا و سپس در آن خشک کردیم. تصویر شماره ۱-الف و تصویر شماره ۱-ب مغناطیسی شدن کربن فعال را نشان می دهد.

روش انجام آزمایش های جذب

در هر آزمایش کربن فعال مغناطیسی (جاذب) به ۵۰ میلی لیتر آب حاوی مقدار مشخصی از انتاکاپون اضافه شد. پس از طی زمان اختلاط (۵۰ دقیقه هم زدن مخلوط با سرعت ثابت ۱۰۰ دور در دقیقه) و در شرایط بهینه، جاذب با آهن ربای مغناطیسی از محلول جدا شد و آب فیلتر شده با دستگاه اسپکتروسکوپی در طول موج انتاکاپون (۳۰۸nm) آزمایش شد و غلظت باقی مانده از انتاکاپون در این محلول اندازه گیری شد. متغیرهای مؤثر بر میزان جذب انتاکاپون از جمله دز جاذب، غلظت محلول انتاکاپون، زمان تماس، pH محلول و درجه حرارت مطالعه شد. تمام آزمایش ها سه بار تکرار و درصد حذف داروی انتاکاپون محاسبه شد.

یافته ها

خواص کربن فعال

تصویر شماره ۲-الف طیف FT-IR حاصل از نمونه کربن فعال و تصویر شماره ۲-ب طیف FT-IR کربن فعال مغناطیسی شده

به وسیله نانوذرات آهن را نشان می دهد. ایجاد پیک در ناحیه ۵۵۰ تا ۶۰۰ پیوند Fe-O [۲۱] و کم شدن شدت پیک ۲۲۶۰ هم کنش بین نانوذرات آهن و کربن فعال را نشان می دهد. به طور کلی حضور پیک ها در طیف FT-IR وجود گروه های عامل روی سطح جاذب است. این گروه های فعال محل جذب دارو روی کربن فعال است.

آزمایش های جذب

بهینه سازی pH

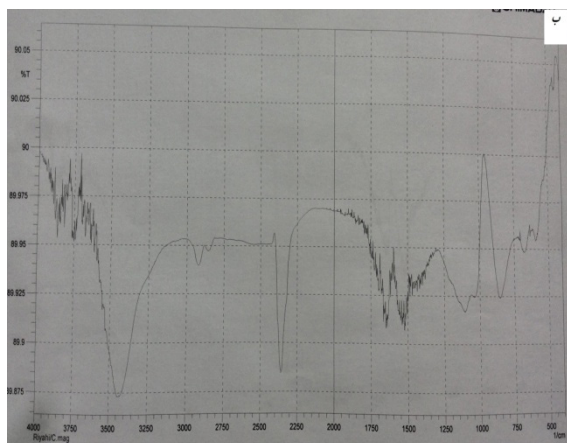
برای یافتن بهترین pH حذف انتاکاپون توسط کربن فعال مغناطیسی، pH های بین ۲ تا ۱۰ بررسی شد. همان طور که مشاهده می شود با افزایش pH محلول از ۲ تا ۶ میزان حذف انتاکاپون توسط جاذب افزایش و پس از $pH=6$ با افزایش pH توانایی حذف کاهش می یابد. تصویر شماره ۳-الف و ب تأثیر pH را بر میزان جذب انتاکاپون توسط کربن فعال مغناطیسی نشان می دهد.

تأثیر غلظت جاذب

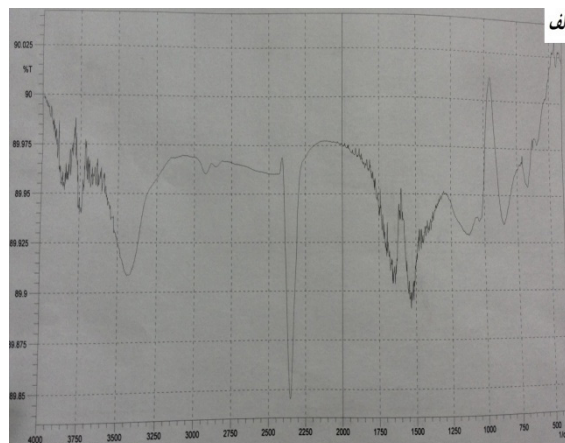
برای تعیین میزان بهینه جاذب استفاده شده مقادیر بین ۰/۱ تا ۰/۸ گرم بر لیتر از کربن فعال مغناطیسی استفاده شد. نتایج به دست آمده بیانگر این است که مقدار بهینه برای جذب ۰/۶ گرم بر لیتر از کربن فعال مغناطیسی است. در این مقدار ۷۶ درصد حذف مشاهده شد. کربن فعال مغناطیسی در ۰/۱ گرم بر لیتر، ۳۲ درصد حذف داشت. با اضافه کردن مقدار بیشتری از کربن فعال به محلول تغییر قابل توجهی در میزان جذب دیده نشد. به طوری که مقادیر ۰/۷ و ۰/۸ گرم بر لیتر از کربن فعال مغناطیسی تنها توانست میزان حذف را به ۷۷ درصد برساند.

اثر زمان تماس

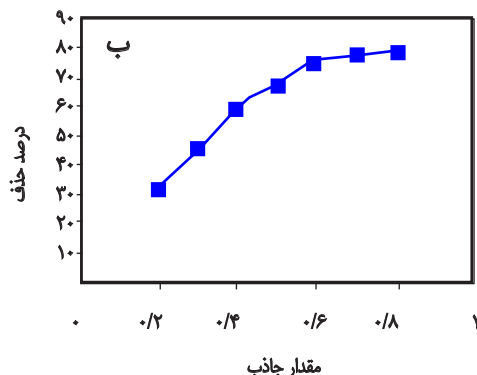
در فرایند حذف انتاکاپون از محلول آزمایش، یکی از متغیرهای



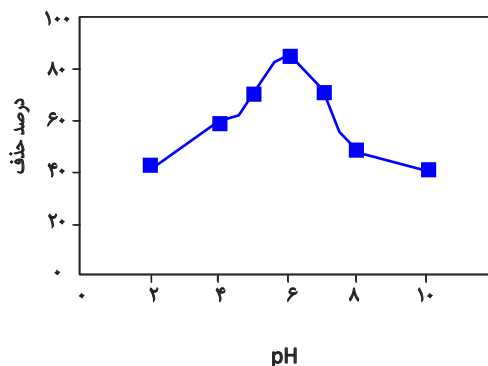
تصویر ۲. ب) طیف FT-IR برای کربن فعال مرک مغناطیسی شده با نانوذرات آهن.



تصویر ۲. الف) طیف FT-IR برای کربن فعال مرک.



تصویر ۳. ب) تأثیر مقدار جاذب بر میزان جذب.



تصویر ۳. الف) تأثیر pH بر میزان جذب.

(تصویر شماره ۵). سینتیک جذب غلظت‌های مختلف انتاکاپون (۱۰ و ۵۰ و ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر) روی کربن فعال مغناطیسی توسط داده‌های به دست آمده از آزمایش‌ها با معادلات شبه مرتبه اول و شبه مرتبه دوم بررسی شد. (جدول شماره ۱)

معادله شبه مرتبه اول

(معادله ۱)

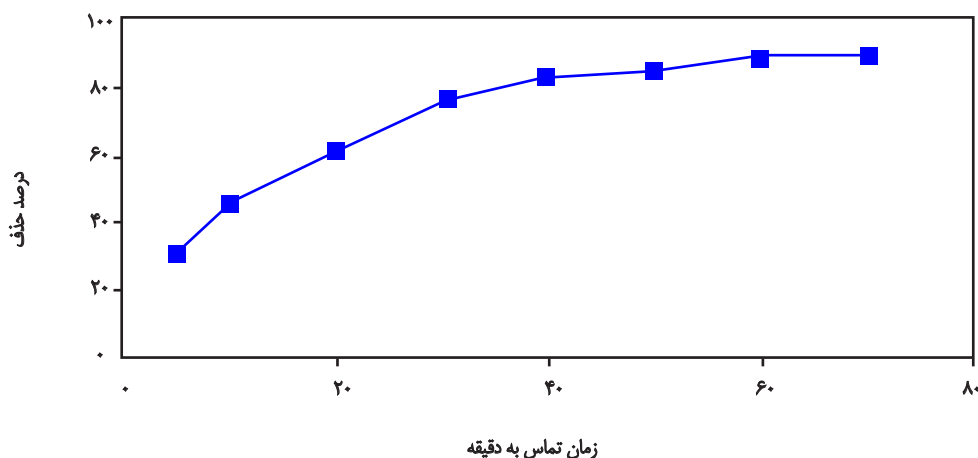
$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t$$

به منظور بررسی معادله شبه مرتبه اول نمودار $\ln(q_e - q_t)$ بر حسب t رسم شد.

مهم بهینه کردن زمان تماس جاذب و آنالیت است. به همین منظور کربن فعال مغناطیسی طی زمان‌های مختلف (۵، ۱۰، ۲۰، ۳۰، ۴۰، ۵۰، ۶۰ و ۷۰ دقیقه) در تماس با محلول حاوی انتاکاپون قرار داده شد. زمان‌ها بر اساس آزمون‌های اولیه انتخاب شدند. نتایج نشان می‌دهد درصد حذف در زمان ۵ دقیقه ۳۱ درصد بود که با افزایش زمان به ۵۰ دقیقه، جذب به ۸۶ درصد رسید. ۵۰ دقیقه زمانی مناسب برای بهترین حذف انتاکاپون از محلول آزمایش است. تصویر شماره ۴ تأثیر زمان اختلاط جاذب و محلول حاوی انتاکاپون را بر بازده حذف انتاکاپون نشان می‌دهد.

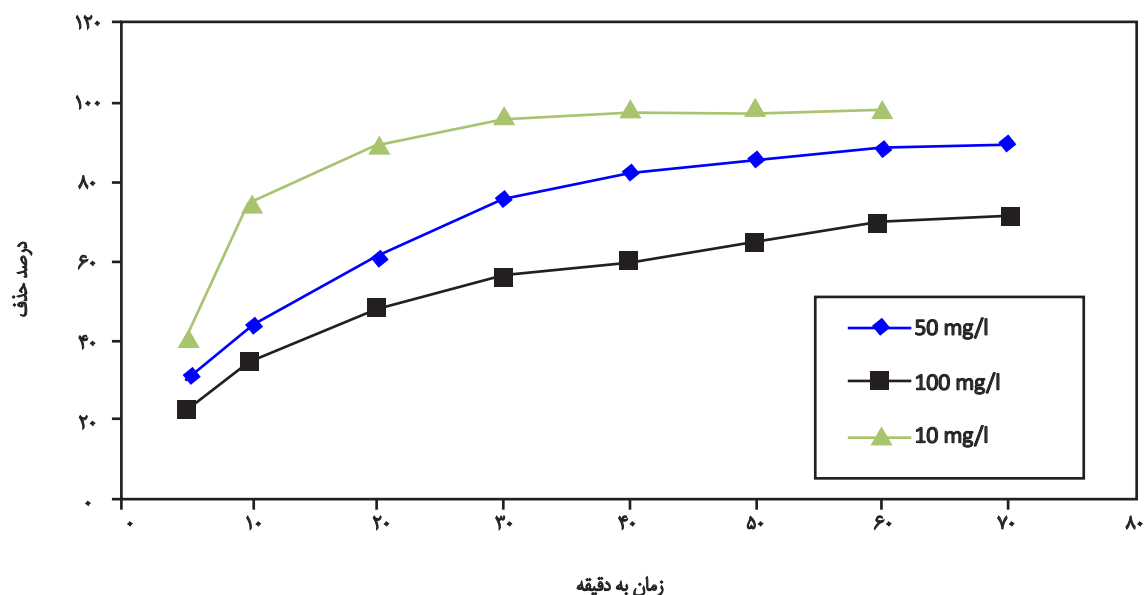
بررسی اثر غلظت انتاکاپون بر حذف و سینتیک واکنش

غلظت‌های مختلفی از انتاکاپون (۱۰ و ۵۰ و ۱۰۰ گرم بر لیتر) با مقدار معینی از کربن فعال مغناطیسی (۰/۶ گرم بر لیتر) با سرعت ۱۰۰ دور در دقیقه در مجاورت یکدیگر قرار گرفتند



تصویر ۴. نمودار تأثیر زمان تماس بر بازده حذف انتاکاپون.

محلول انتاکاپون (۵۰ mg/l)، کربن فعال مغناطیسی (۰/۶ گرم بر لیتر)، pH=۶.



تصویر ۵. تأثیر غلظت بر میزان جذب.

پژوهش‌های مهندسی و فناوری

جذب انتاکاپون، ۵۰ میلی‌لیتر محلول و ۰/۶ گرم از کربن فعال مغناطیسی با مقادیر مختلف (۵۰، ۱۰۰، ۲۰۰، ۳۰۰، ۴۰۰ و ۵۰۰ میلی‌گرم بر لیتر) از انتاکاپون (pH=۶) به مدت ۶ ساعت مخلوط شد. پس از سپری شدن زمان لازم نمونه‌ها فیلتر شده و مقدار انتاکاپون باقی‌مانده در محلول اندازه‌گیری شد.

مدل‌های ایزوترم لانگ‌مویر و فروندلیچ بر داده‌های حاصل از آزمایش‌های جذب ایزوترم برازش داده شدند. معادله ۳ ایزوترم جذب لانگ‌مویر را نشان می‌دهد.

(معادله ۳)

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{bq_{max}} = \frac{C_e}{q_{max}}$$

در این رابطه C_e غلظت مواد باقی‌مانده در زمان تعادل، q_e همان

معادله شبه‌مرتبه دوم

(معادله ۲)

$$t/q_t = 1/k_2 q_e^2 + t/q_e$$

به‌منظور بررسی معادله شبه‌مرتبه دوم نمودار t/q_t برحسب t رسم شد. در این معادلات q_t ظرفیت جذب در زمان t و q_e ظرفیت جذب در زمان تعادل و K ثابت سرعت جذب است.

بررسی ایزوترم‌های جذب انتاکاپون توسط کربن فعال مغناطیسی

ایزوترم جذب رابطه‌ای ریاضی است که مقدار تعادلی ماده جذب‌شده به‌صورت شیمیایی یا فیزیکی روی سطح یک جامد معین را در دمای ثابت بیان می‌کند. برای بررسی ایزوترم

جدول ۱. بررسی سینتیک جذب.

برازش خطی سینتیک جذب		معادله خط به‌دست‌آمده از نمودار
شبه‌مرتبه دوم	شبه‌مرتبه اول	
$q_e=0/9$ $R^2=0/9962$ $k=1/47$	$q_e=2/92$ $R^2=0/9048$ $k=0/13$	غلظت ۱۰
$q_e=3/93$ $R^2=0/9962$ $k=0/06$	$q_e=42/52$ $R^2=0/8525$ $k=0/08$	غلظت ۵۰
$q_e=6/93$ $R^2=0/9911$ $k=0/11$	$q_e=100/52$ $R^2=0/8312$ $k=0/15$	غلظت ۱۰۰

پژوهش‌های مهندسی و فناوری

جدول ۲. بررسی ایزوترم واکنش.

نوع ایزوترم	متغیرها	مقادیر به دست آمده
لانگمویر	R^2	۰/۹۹۲۹
	q_{max}	۳۵۷/۱
	B	۰/۰۲۹
فروندلیچ	R^2	۰/۹۸۹۶
	k_f	۱/۴۴
	N	۰/۲۶۶

در این معادله k شدت جذب جاذب و n ظرفیت جذب است. باتوجه به معادله حاصل از رسم نمودار $\ln q_e$ برحسب $\ln C_e$ ، مقادیر N و k ، R^2 محاسبه و مقادیر حاصل در جدول شماره ۲ آورده شده است.

بحث

آزمایش‌ها نشان می‌دهد کربن فعال مغناطیسی مرک با ظرفیت جذب بالا جاذب مناسبی برای حذف انتاکاپون است که این امر به علت زیادبودن میزان BET (سطح ویژه) کربن فعال به مقدار ۱۰۲۴ است.

یکی از عوامل بسیار مهم در میزان جذب، pH محلول است؛ زیرا افزایش یا کاهش در pH موجب یونیزه شدن سطح جاذب می‌شود که این در فرایند جذب تأثیر گذار است [۲۰]. باتوجه به اینکه pH_{pzc} کربن فعال مرک ۷/۴ است، با افزایش PH تا ۶ جذب افزایش می‌یابد؛ چون در pH های کمتر از pH_{pzc} کربن بار مثبت دراد و مولکول‌های انتاکاپون ($pKa=4/5$) به علت داشتن بار منفی با افزایش pH محلول آزمایش به جذب کربن فعال تمایل پیدا می‌کند. همچنین در pH های بالای ۶ سطح کربن بار منفی پیدا

x/m ظرفیت جذب در حال تعادل، q_{max} ماکزیمم ظرفیت جذب برای تشکیل لایه کامل و b ثابت لانگمویر است. با رسم منحنی C_e/q_e برحسب C_e مقادیر q_{max} ، b و R^2 را می‌توان به دست آورد. باتوجه به شکل معادله به دست آمده از تصویر شماره ۶- الف و ب مقادیر q_{max} ، b و R^2 به ترتیب محاسبه شد و در جدول شماره ۲ آورده شده است.

R_L توانایی جاذب برای جداسازی آلاینده‌هاست و از معادله ۴ به دست می‌آید. در این آزمایش $R_L > 1$ است.

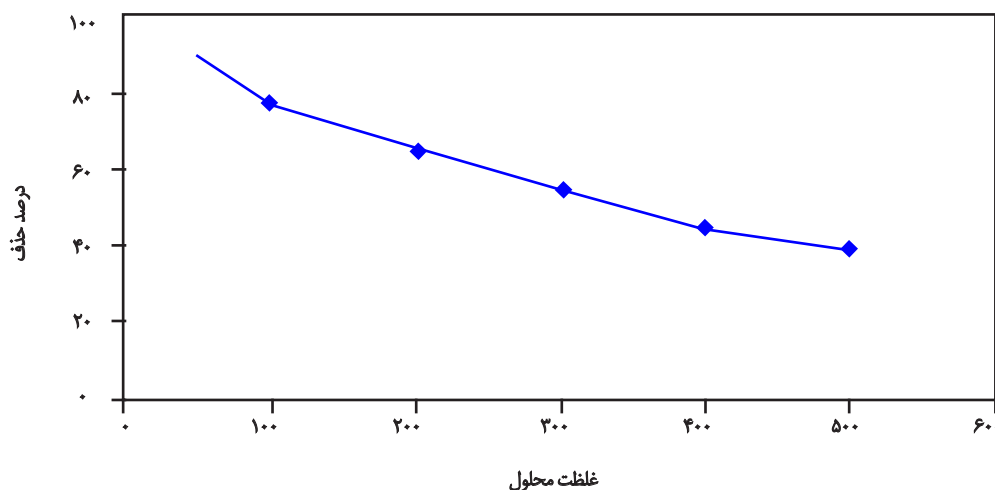
(معادله ۴)

$$R_L = \frac{1}{1+bC_0}$$

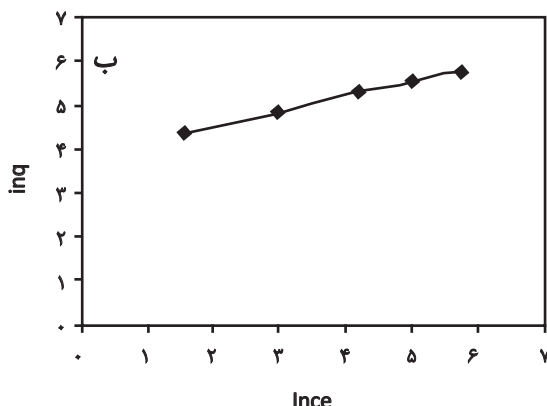
مدل جذب فروندلیچ

در سال ۱۹۲۶ میلادی فروندلیچ جذب مواد را روی زغال چوب بررسی کرد. معادله ۵ ایزوترم جذب فروندلیچ را نشان می‌دهد.

$$\ln q_e = \ln k_f + 1/n \ln C_e \quad (\text{معادله ۵})$$



تصویر ۲۲. نمودار بررسی‌های جذب انتاکاپون توسط کربن فعال مغناطیسی در غلظت‌های بالا.



تصویر ۶. ب) بررسی ایزوترم فروندلیچ.

مشابه میزان ماکزیمم ظرفیت جذب را در معادله لانگ‌مویر ۲/۰۴ تا ۱/۰۴ میلی‌مول به‌ازای هر گرم کربن نشان می‌دهند [۲۳].

مطالعات سینتیکی

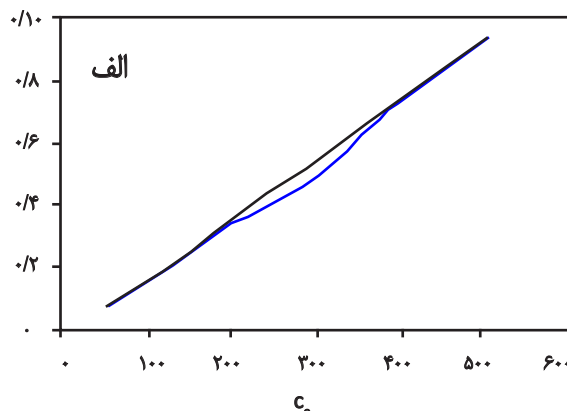
نتایج به‌دست‌آمده حاکی از این است که فرایند جذب برای هردو جذب از سینتیک شبه‌درجه دوم پیروی می‌کند که نشان می‌دهد فرایند جذب وابسته به غلظت جذب‌شونده است [۲۴]. هیندال الجوهری و همکاران (۲۰۱۱) نیز جذب آنیلین را روی نانولوله‌های کربنی چندجداره کربن بررسی کردند و با بررسی‌های سینتیکی دریافتند که آنیلین روی نانولوله از معادله سینتیکی شبه‌درجه دوم پیروی کرده و واکنش‌های شیمیایی تعیین‌کننده سرعت است [۲۵].

نتایج نشان داد $pH=6$ ، غلظت جذب ۰/۶ گرم بر لیتر و زمان تماس ۵۰ دقیقه مناسب‌ترین وضعیت برای حذف انتاکاپون است. در این شرایط کربن فعال مغناطیسی توانست ۹۰ درصد انتاکاپون با غلظت ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر را حذف کند. حداکثر ظرفیت جذب به‌دست‌آمده $1/357 \text{ mg/g}$ است.

نتایج به‌دست‌آمده حاکی از این است که کربن فعال مغناطیسی مرکب جذب بالایی دارد و می‌توان از آن با اعمال شرایط بهینه به‌عنوان جاذب مناسب برای حذف ترکیبات آلی از جمله داروها استفاده کرد.

تشکر و قدردانی

این مطالعه حاصل پروژه پایان‌نامه دوره کارشناسی ارشد است که به‌طور مشترک در آزمایشگاه تحقیقاتی شیمی تجزیه دانشگاه حکیم سبزواری و آزمایشگاه تحقیقاتی شیمی و محیط‌زیست دانشگاه علوم پزشکی سبزواری اجرا شد. بدین‌وسیله از زحمات کارکنان این دو آزمایشگاه تشکر و قدردانی می‌شود. کد اخلاق این مقاله IR.MEDSAB.REC.1393.101 است.



تصویر ۶. الف) بررسی ایزوترم لانگ‌مویر.

می‌کند و تمایل جذب کربن فعال مغناطیسی و انتاکاپون به‌علت هم‌باربودن کاهش می‌یابد. نتایج با مطالعات بین‌تانگ [۲۲] که pH بهینه برای حذف آنیلین با استفاده از کربن فعال گرانولی را ۵/۵ گزارش کرد، مطابقت دارد [۲۲].

یکی دیگر از عوامل تأثیرگذار بر میزان جذب دز جاذب است. باتوجه‌به نتایج به‌دست‌آمده از مطالعه حاضر با افزایش غلظت کربن فعال مغناطیسی در محلول حاوی انتاکاپون میزان جذب افزایش می‌یابد. این میزان در ۰/۶ گرم در لیتر از کربن به مقدار بهینه خود رسیده و حذف را به ۷۶ درصد می‌رساند. بعداً این مقدار با افزایش میزان کربن در محیط روند افزایشی کاهش می‌یابد و افزایش بیشتر جاذب میزان جذب را به ۱۰۰ درصد نیز می‌رساند؛ ولی استفاده از این مقدار جاذب صرفه اقتصادی ندارد. جذب سریع انتاکاپون با افزایش مقدار کربن فعال مغناطیسی به‌علت افزایش سطح جذب و دسترسی بیشتر مولکول‌های انتاکاپون به نقاط جذب در سطح کربن فعال است. با افزایش دز جاذب به‌علت کاهش آلاینده‌های در دسترس برای ایجاد حداکثر پوشش سطح، روند جذب کاهش می‌یابد.

طبق بررسی‌های صورت‌گرفته با افزایش غلظت انتاکاپون در محلول آزمایشی، میزان حذف آن توسط کربن فعال مغناطیسی کاهش می‌یابد که این امر به پُرشدن محل‌های فعال موجود در کربن فعال مغناطیسی نسبت داده می‌شود. با این حال به‌دلیل افزایش برخورد بین جاذب و انتاکاپون ظرفیت جذب کربن فعال مغناطیسی افزایش می‌یابد.

بررسی‌های ایزوترم‌های جذب لانگ‌مویر و فروندلیچ نشان داد که سرعت جذب کربن فعال نسبتاً بالاست. مدل جذب در این بررسی از مدل لانگ‌مویر تبعیت می‌کند و میزان q_m (ظرفیت جذب) برای این کربن ۳۵۷/۱ است. این میزان باتوجه‌به بررسی‌های مشابه میزان قابل‌توجهی است. ریورا و همکاران (۲۰۰۹) در تحقیقی

References

- [1] Alahabadi A, Moussavi Gh, Yaghmaeian K, Karemisan H. [Adsorption potential of the granular activated carbon for the removal of amoxicillin from water (Persian)]. *Journal of Sabzevar University of Medical Sciences*. 2013; 20(4):573-82.
- [2] Ahmadi M, Sharifi M. [Treatments of Parkinson's disease, epilepsy and obsessive compulsive disorder with deep brain stimulation (Persian)]. *Neuroscience Journal of Shefaye Khatam (Shefaye Khatam)*. 2014; 2(1):95-100.
- [3] Lau L, Breteler M. Epidemiology of Parkinson disease (Review). *Lancet Neurology*. 2006; 749(163):525-35. doi: 10.1016/s1474-4422(06)70471-9
- [4] Abdullah R, Basak I, Patil, KS, Alves G, Larsen JP, Møller SG. Parkinson's disease and age: the obvious but largely unexplored link. *Experimental Gerontology*. 2015; 68:33-38. doi: 10.1016/j.exger.2014.09.014
- [5] Bugamelli F, Marcheselli C, Barba E, Raggi MA. Determination of l-dopa, carbidopa, 3-O-methyldopa and entacapone in human plasma by HPLC-ED. *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*. 2011; 54(3):562-67. doi: 10.1016/j.jpba.2010.09.042
- [6] Nuijten M, Iperen P, Palmer C, Hilten B, Snyder E. Cost-effectiveness analysis of entacapone in Parkinson's disease: a Markov process analysis. *Value in Health*. 2001; 4(4): 316-28. doi: 10.1046/j.1524-4733.2001.004004316.x
- [7] Lustosa K, Menegatti R, Braga R, Lião L, Oliveira V. Microbial β -glycosylation of entacapone by *Cunninghamella echinulata* ATCC 9245. *Journal of Bioscience and Bioengineering*. 2012; 113(5):611-13. doi: 10.1016/j.jbiosc.2012.01.004
- [8] Jain R, Kumar Yadav R, Dwivedi A. Square-wave adsorptive stripping voltammetric behaviour of entacapone at HMDE and its determination in the presence of surfactants. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 2010; 359:25-30. doi: 10.1016/j.colsurfa.2010.01.047
- [9] Dirany A, Sirés I, Oturan N, Oturan M. Electrochemical abatement of the antibiotic sulfamethoxazole from water. *Chemosphere*. 2010; 81(5): 594-602.
- [10] Sayadi AR, Asadpour M, Shabani Z, Sayadi MH. [Pharmaceutical pollution of the eco-system and its detrimental effects on public health (Persian)]. *Journal of Rafsanjan University of Medical Sciences*. 2011; 11(3):269-84.
- [11] Elmolla E, Chaudhuri M. Photocatalytic degradation of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution using UV/TiO₂ and UV/H₂O₂/TiO₂ photocatalysis. *Desalination*. 2010; 252(1-2):46-52. doi: 10.1016/j.desal.2009.11.003
- [12] Klavarioti M, Mantzavinos D, Kassinos D. Removal of residual pharmaceuticals from aqueous systems by advanced oxidation processes-review. *Environment International*. 2009; 35(2):402-17. doi: 10.1016/j.envint.2008.07.009
- [13] Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices: a review. *Journal of Environmental Management*. 2011; 92(10):2304-347. doi: 10.1016/j.jenvman.2011.05.023
- [14] Lin SH, Juang RS. Adsorption of phenol and its derivatives from water using synthetic resins and low-cost natural adsorbents: a review. *Journal of Environmental Management*. 2009; 90(3):1336-349. doi: 10.1016/j.jenvman.2008.09.003
- [15] Han R, Ding D, Xu Y, Zou W, Wang Y, Li Y, et al. Use of rice husk for the adsorption of congo red from aqueous solution in column mode. *Bioresource Technology*. 2008; 99(8):2938-946. doi: 10.1016/j.biortech.2007.06.027
- [16] Gholizadeh A, Kermani M, Gholami M, Farzadkia M, Esrafil A. [Comparative investigation of 2-Chlorophenol and 4-Chlorophenol removal using granulated activated Carbon and Rice Husk Ash (Persian)]. *Toloo-e-Behesht*. 2012; 11(3):66-78.
- [17] Moussavi Gh, Alahabadi A, Yaghmaeian K, Eskandari M. Preparation, characterization and adsorption potential of the NH₄Cl-induced activated carbon for the removal of amoxicillin antibiotic from water. *Chemical Engineering Journal*. 2013; 217:119-28. doi: 10.1016/j.cej.2012.11.069
- [18] Mansoorian H, Mahvi AH, Kord Mostafapour F, Alizadeh M. [Equilibrium and synthetic studies of methylene blue dye removal using ash of walnut shell (Persian)]. *Health in the Field*. 2013; 1(3):48-55.
- [19] Kakavandi B, Rezaei Kalantary R, Jonidi Jafari, Esrafil A, Gholizadeh A, Azari A. [Efficiency of powder activated carbon magnetized by Fe₃O₄ nanoparticles for moxycillin removal from aqueous solutions: equilibrium and kinetic studies of adsorption process (Persian)]. *Iranian Journal of Health & Environment*. 2014;7(1):21-34.
- [20] Bahmaie M, Abbasi L, Faraji M. [Synthesis of iron nanoparticles Fe₃O₄ and its application to the extraction and pre-concentration of the drug environmental samples (Persian)]. *Journal of Applied Chemistry Semnan University*. 2013; 8(4):29-38.
- [21] Khatiria R, Reyhanic AZ, Mortazavid S, Hossainilipour M. Preparation and characterization of Fe₃O₄ / SiO₂ / APTES core-shell nanoparticles. Paper presented at: The 4th International Conference on Nanostructures; 2012 Mar 12-14; Kish, Iran.
- [22] Tang B, Lin Y, Yu P, Luo Y. Study of aniline-caprolactam mixture adsorption from aqueous solution onto granular activated carbon: kinetics and equilibrium. *Chemical Engineering Journal*. 2012; 187:69-78. doi: 10.1016/j.cej.2012.01.088
- [23] 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. doi: 10.1016/j.jhazmat.2009.04.096
- [24] Kanadasan G, Vadivelu V, Mat Don M. Adsorptive removal of methylene blue using novel adsorbent from palm oil mill effluent waste activated sludge: equilibrium, thermodynamics and kinetic studies. *Chemical Engineering Journal*. 2011; 171:1246-252. doi: 10.1016/j.cej.2011.05.036
- [25] Al-Johani H, Abdel Salam M. Kinetics and thermodynamic study of aniline adsorption by multi-walled carbon nanotubes from aqueous solution. *Journal of Colloid and Interface Science*. 2011; 360(2):760-67. doi: 10.1016/j.jcis.2011.04.097

