

Research Paper

Efficient Removal of Omeprazole from Water Samples by Utilizing of Carbon Nanotubes as Powerful nanoadsorbent and Comprising with Graphite: Kinetic and Thermodynamic studies

Neda Sadeghpour¹, Mehdi Vadi^{2*}, Narges Bagheri³

1. Ph.D. graduated of Physical Chemistry, Department of Chemistry, Islamic Azad University of Firoozabad, Physical Chemistry, Firoozabad, Iran.

2. Full-professor of Physical Chemistry, Department of Chemistry, Islamic Azad University of Firoozabad, Physical Chemistry, Firoozabad, Iran.

3. Assistant Prof. of Physical Chemistry, Department of Chemistry, Islamic Azad University of Firoozabad, Physical Chemistry, Firoozabad, Iran.

Received: 2021/06/29

Revised: 2021/12/07

Accepted: 2022/03/05

Use your device to scan and read the article online



DOI:

10.30495/jnm.2022.28354.1925

Keywords:

Omeprazole, Adsorbent, Kinetic Isotherm, Thermodynamic.

Abstract

Introduction: Carbon nanotubes are widely used adsorbents in the removal of compounds such as drugs, metals, toxins and dyes in various industries. In addition to carbon nanotubes, graphite has also been used in the removal operation. The purpose of this study is to investigate the effect of parameters affecting the removal of omeprazole from aqueous samples by two adsorbents of carbon nanotubes and graphite.

Methods: In this study, 25 ml of omeprazole 20 mg / l solution was prepared and the effect of various parameters such as pH, adsorbent, time, ionic strength, and temperature were investigated. To evaluate the effect of pH, first the pH of omeprazole solution (20 mg / l) was adjusted in the range of 3 to 11, then 0.01 g of carbon and graphite nanotubes were added to the solution and the mixture was stirred at the laboratory temperature of $(20 \pm 2 \text{ }^\circ \text{C})$ for 60 minutes by an orbital shaker. At the end, the mixture was filtered through filter paper and an ultraviolet-visible spectroscope was used to determine the concentration of the residual drug. Similarly, the other parameters were examined by optimizing a factor in time.

Findings: Synthetic models were used to study the adsorption of omeprazole on carbon nanotubes and graphite. The results showed that the experimental data obtained with the second-order kinetic model were in good agreement for both adsorbents. The isotherm study demonstrated that the uptake of omeprazole by both adsorbents keeps in good agreement with the Langmuir equation. Ion strength data showed that the effect of this parameter on the adsorption of carbon nanotubes was, respectively, negligible and almost insignificant on the adsorption of graphite. Thermodynamic study was analyzed to find thermodynamic parameters which proved that the process of omeprazole adsorption on both adsorbents is endothermic.

Conclusion: From the obtained data, it can be concluded that the removal of omeprazole in aqueous solutions by carbon nanotube adsorbent is more effective than graphite adsorbent. The maximum adsorption capacity of omeprazole was obtained for the initial concentration of 20 mgL^{-1} , 166.70 mg.g^{-1} with carbon nanotube adsorbent and 16.32 mg.g^{-1} with graphite adsorbent. As can be seen, the adsorption capacity of carbon nanotubes is approximately 10 times higher than that of graphite adsorbents. The reason can also be attributed to the high effective level of carbon nanotubes.

Citation: Neda Sadeghpour, Mehdi Vadi, Narges Bagheri, Efficient Removal of Omeprazole from Water Samples by Utilizing of Carbon Nanotubes as Powerful nanoadsorbent and Comprising with Graphite: Kinetic and Thermodynamic studies, Quarterly Journal of New Materials. 2022; 12 (46): 1-18.

***Corresponding author:** Mehdi Vadi

Address: Department of Chemistry, Islamic Azad University of Firoozabad, Physical Chemistry, Firoozabad, Iran.

Tell: +989177167976

Email: Mehdi.vadi20@gmail.com

Extended Abstract

Introduction

Wastewater from industrial processes produces a large proportion of biodegradable compounds. These compounds include drugs, dyes, metals and toxins. These compounds are considered a serious problem for the environment and have become an important concern for humans. A large number of compounds enter the aquatic environment and groundwater aquifers. Due to the acute toxicity of these compounds in various sources can be effective on human health. In addition, the presence of these compounds in aquatic environments has been raised as another major concern regarding damage to ecosystems, as it alters the ecosystem potential. To solve this problem, a highly efficient wastewater treatment method is needed. The treatment reduces pollutants to an acceptable level, so that they can be released safely and safely into the environment.

Among the various methods of wastewater treatment such as adsorption, coagulation-flocculation, ozone oxidation, reverse osmosis, membrane filtration, biological degradation and chemical processes, the adsorption process based on the use of effective adsorbent, has been widely used. The above methods have disadvantages, including in the method of coagulation and flocculation, large amounts of sludge are produced. In reverse osmosis, the need for high pressure increases energy consumption. In photochemical oxidation, ultraviolet drugs in the presence of oxidizing agents such as peroxide, in addition to not being economically viable, produce other by-products, although Advanced oxidation processes can break down drug compounds into simpler molecules or mineralize them, but these methods are very difficult and expensive to completely remove hard compounds.

One of the most suitable physical techniques, adsorption methods are the most widely used among physical methods to remove organic compounds from industrial wastewaters. The performance and design of adsorption methods do not produce simple and toxic substances, they are also cheap. After the adsorption method, due to its effective and economical method, it is widely used, which causes the separation of organic compounds from water sources. To absorb organic matter, several materials such as activated carbon, fine materials and minerals have been extensively tested in the primary and modified form, but among the adsorbents, carbon adsorbents, especially carbon nanotubes, due to their pores. High and specific surface area and very high adsorption capacity have been used the most.

In this study, since very few studies have been performed on the removal of omeprazole by adsorbents, the effect of the adsorption type of carbon nanotubes and graphite on the removal of omeprazole has been investigated. Another purpose of this study was to investigate the effect of different environmental parameters on the removal of omeprazole by two adsorbents. In addition, the kinetics and isotherm of adsorption have been investigated in a closed method, in addition, the effect of adsorption mechanism has also been investigated.

Materials and Methods

All chemicals including soda, hydrochloric acid, omeprazole, ethanol, carbon nanotubes and graphite were purchased with degraded purity from Merck. Omeprazole was prepared in a stable pH range and the mother solution was dissolved by dissolving a certain amount of omeprazole in 20% ethanol / water solution. During the experiment, the concentration of omeprazole at 291 nm was determined based on the linear area of the calibration curve obtained. To adjust the pH of the

environment by adding hydrochloric acid or 0.1 N profit was adjusted by pH meter. Zeta potential of graphite and carbon nanotubes using a ZetaPlus analyzer with a 20 mg / L suspension for graphite and carbon nanotubes (0.01 wt%) with pH adjustment between pH 1 to 10 (adjusted with sodium and acid) Normal hydrochloride) was determined.

To evaluate the effect of different parameters, adjust the pH of omeprazole solution (20 mg / l) in the desired range, then add 0.01 g of carbon and graphite nanotubes to the solution and mix for 60 minutes with an orbital shaker at laboratory temperature. At the end of the mixture, it was filtered through filter paper and an ultraviolet-visible spectroscope was used to determine the concentration of the residual drug. In order to check all the parameters, the one-time optimization method has been used.

Findings and Discussion

Pseudo-quadratic, quasi-quadratic, Tamkin and Alovich models were used to investigate the adsorption kinetics of omeprazole on carbon nanotubes and graphite adsorbents. They have adsorbents for both. Examination of Langmuir, Freundlich and Tamkin isotherms on the obtained data showed that the adsorption of omeprazole by both adsorbents is in good agreement with the Langmuir equation. Ion strength data indicate that this parameter has little effect on the adsorption of carbon nanotubes and is almost ineffective for graphite adsorbents. Finally, by examining the thermodynamic study of thermodynamic parameters, it was found that the adsorption process of

omeprazole on both adsorbents was endothermic.

Conclusion

The obtained data showed that the removal of omeprazole in aqueous solutions by carbon nanotube adsorbent is more effective than graphite adsorbent. The maximum adsorption capacity of omeprazole was obtained for the initial concentration of 20 mg / l adsorbent, 166.70 mg / g for carbon nanotube adsorbent and 16.32 mg / g for graphite adsorbent. The adsorption capacity of carbon nanotubes is approximately 10 times higher than graphite adsorbent, the main reason for which can be attributed to the high effective level of carbon nanotubes. In addition to the above results, a valuable outcome can be mentioned that in the future, carbon nanotube adsorbent can be used effectively to carry omeprazole in the body.

Ethical Considerations compliance with ethical guidelines

The cooperation of the participants in the present study was voluntary and accompanied by their consent.

Funding

No funding.

Authors' contributions

Design experiments and perform: Neda Sadeghpour, Narges Bagheri;
Results and Data analysis: Mehdi Vadi, Narges Bagheri, Neda sadeghpour;
Supervision and final writing: Mehdi Vadi, Narges Bagheri;

Conflicts of interest

The authors declared no conflict of interest.

مقاله پژوهشی

حذف موثر داروی امپرازول از محلول‌های آبی با استفاده از نانو لوله‌های کربنی چند دیواره به عنوان یک نانو جاذب قدرتمند و مقایسه با گرافیت: مطالعه سینتیک، ایزوترم و ترمودینامیک جذبی

ندا صادق پورا^۱، مهدی وادی^{۲*}، نرگس باقری^۳

۱- دانش‌آموخته دکتری رشته شیمی فیزیک، گروه شیمی، شیمی فیزیک، دانشگاه آزاد اسلامی واحد فیروزآباد، فارس، ایران

۲- استاد تمام، گروه شیمی، شیمی فیزیک، دانشگاه آزاد اسلامی واحد فیروزآباد، فارس، ایران

۳- استادیار، گروه شیمی، شیمی فیزیک، دانشگاه آزاد اسلامی واحد فیروزآباد، فارس، ایران

چکیده

مقدمه: نانو لوله های کربنی از جاذب های پرکاربرد در حذف ترکیبات از جمله داروها، فلزات، سموم و رنگ ها در صنایع مختلف می باشد. علاوه بر نانو لوله های کربنی از گرافیت نیز در عمل حذف استفاده شده است، هدف از انجام این تحقیق بررسی اثر پارامترهای موثر بر عمل حذف داروی امپرازول از نمونه های آبی توسط دو جاذب نانو لوله های کربنی و گرافیت می باشد.

روش: در این تحقیق ۲۵ میلی لیتر از محلول امپرازول ۲۰ میلی گرم بر لیتر تهیه شده و اثر پارامترهای مختلف از جمله pH، میزان جاذب، زمان، قدرت یونی و دما مورد بررسی قرار گرفت. جهت بررسی اثر pH، ابتدا pH محلول امپرازول (۲۰ میلی گرم بر لیتر) در محدوده ۳ تا ۱۱ تنظیم شد، سپس مقدار ۰/۰۱ گرم از نانو لوله های کربنی و گرافیت به محلول اضافه و مخلوط را به مدت ۶۰ دقیقه توسط شیکر اریبتالی در دمای آزمایشگاه (۲۰±۲ درجه سانتی گراد) هم زده شد، در پایان مخلوط توسط کاغذ صافی، صاف شده و برای تعیین غلظت داروی باقی مانده، از طیف‌سنج ماوراءبنفش - مرئی استفاده شد. به همین ترتیب بقیه پارامترها نیز به روش بهینه سازی یک فاکتور در زمان مورد بررسی قرار گرفت.

یافته‌ها: مدل های سینتیکی برای بررسی جذب امپرازول بر روی نانو لوله های کربنی و گرافیت به کار گرفته شد، نتایج نشان داد که داده‌های تجربی به دست آمده با مدل سینتیکی مرتبه دوم تطابق مطلوبی برای هر دو جاذب دارند. در بررسی مطالعه ایزوترم مشخص شد که جذب امپرازول توسط هر دو جاذب تطابق مطلوبی با معادله لانگمویر داشتند. داده های قدرت یونی نشان داد که اثر این پارامتر بر جاذب نانو لوله های کربنی ناچیز و برای جاذب گرافیت تقریباً بی اثر بود. مطالعه ترمودینامیک برای یافتن پارامترهای ترمودینامیکی آنالیز شد که نشان داد فرآیند جذب امپرازول بر روی هر دو جاذب گرماگیر است.

نتیجه‌گیری: از داده های بدست آمده می توان نتیجه گرفت که حذف داروی امپرازول در محلول های آبی توسط جاذب نانو لوله های کربنی نسبت به جاذب گرافیت بطور موثر تری انجام می شود. بطوریکه بیشینه ظرفیت جذب امپرازول برای غلظت اولیه ۲۰ میلی گرم بر لیتر، ۱۶۶/۷۰ میلی گرم بر گرم با جاذب نانو لوله های کربنی و ۱۶/۳۲ میلی گرم بر گرم با جاذب گرافیت به دست آمد. همانطور که مشاهده می شود ظرفیت جذب نانو لوله های کربنی تقریباً ۱۰ مرتبه بیشتر از جاذب گرافیت می باشد. دلیل آن را نیز می توان به بالا بودن سطح موثر نانو لوله های کربنی نسبت داد.

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۰۴/۰۸

تاریخ داوری: ۱۴۰۰/۰۹/۱۶

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۱۲/۱۴

از دستگاه خود برای اسکن و خواندن مقاله به صورت آنلاین استفاده کنید



DOI:

[10.30495/jnm.2022.28354.1925](https://doi.org/10.30495/jnm.2022.28354.1925)

واژه‌های کلیدی:

امپرازول، جذب، سینتیک، ایزوترم، ترمودینامیک.

* نویسنده مسئول: مهدی وادی

نشانی: گروه شیمی، شیمی فیزیک، دانشگاه آزاد اسلامی واحد فیروزآباد، فارس، ایران.

تلفن: +۹۸۹۱۷۷۱۶۷۹۷۶

پست الکترونیکی: Mehdi.vadi 20@gmail.com

فراایندهای اکسیداسیون پیشرفته می‌توانند سبب تجزیه ترکیبات دارویی به ملکول‌های ساده تر یا معدنی سازی می‌شوند ولی این روش‌ها برای حذف کامل ترکیبات سخت، بسیار مشکل و گران قیمت می‌باشند [۹،۱۰]. جذب از مناسب‌ترین تکنیک‌های فیزیکی برای تصفیه داروها به حساب می‌آید. روش‌های جذب، کاربری بالاتری را در بین روش‌های فیزیکی برای حذف ترکیبات آلی از فاضلابهای صنعتی دارد [۱۱] عملکرد و طراحی روش جذب ساده و مواد سمی تولید نمی‌کنند، همچنین ارزان هستند [۱۲]. بنابراین، از روش جذب به دلیل روشی تاثیر گذار و اقتصادی بطور وسیعی به کار گرفته می‌شود که موجب جداسازی ترکیبات آلی از منابع آب می‌گردند. برای جذب مواد آلی تاکنون از چند ماده از جمله کربن فعال، مواد دور ریز و مواد معدنی به شکل اولیه و اصلاح شده بسیار وسیع مورد آزمایش قرار گرفته است؛ بسیاری از مطالعات صورت گرفته حذف دارو، رنگ و فلزات توسط جاذب عبارت‌اند از استفاده از جاذب پلی‌اکریل امید اصلاح شده پنتا آزا تترا اتیلن^۲ [۱۳]، کلاله ذرت^۳ [۱۴]، پسماند گیاه سنگ [۱۵]، کاکل^۴ [۱۶]، پودر چوب ذرت [۱۷] و پلیمر اصلاح شده [۱۸]. اما از بین جاذب‌ها، جاذب‌های کربنی به علت داشتن منافذ زیاد، سطح مخصوص و ظرفیت جذب بسیار بالا بیشترین استفاده را داشته است [۱۰]. بطور کلی نانو لوله‌های کربنی به عنوان یک گزینه مناسب جهت فرایند جذب مورد توجه قرار گرفته‌اند، که در حقیقت علت آن قیمت پایین و کیفیت بالای این جاذب‌ها می‌باشد [۱۹].

امپرازول با فرمول شیمیایی $C_{17}H_{19}N_3O_3S$ از مشتقات بنزولایمیدازول می‌باشد. ساختار ملکولی امپرازول و خواص شیمیایی آن در جدول ۱ نشان داده شده است.

امپرازول یک بلوک‌کننده پمپ پروتون بوده و از طریق مهار سیستم آنزیمی $H^+/K^+/ATPase$ در سطح ترش‌حی سلول پاریتال معده، باعث مهار ترشح اسید معده می‌شود. جذب دارو سریع است و دارو با کاهش اسید معده به جذب خود کمک می‌کند. متابولیسم آن کبدی است و از راه کلیه دفع می‌گردد. نیمه عمر آن بین ۱-۰/۵ ساعت می‌باشد. از عوارض شایع این دارو می‌توان سردرد، اسهال، بثورات جلدی، کهیر و سرگیجه را نام برد. این دسته از داروها در پساب تصفیه خانه‌های فاضلاب و منابع آبی و محیط‌های خاک مشاهده شده است.

به منظور برآورد نسبی سینتیک، مدل‌های مختلف سینتیک بررسی شد. معادله آن به صورت رابطه (۱) بیان می‌شود [۲۰]:

$$\log(q_e - q_t) = \log q_e - \frac{K_1 \cdot t}{2.303} \quad (1)$$

در این معادله q_e و q_t به ترتیب میزان گونه‌های جذب شده بر روی واحد جرم جاذب ($mg \cdot g^{-1}$) در زمان تعادل و در هر زمان (t) بوده و K_1 ثابت سرعت جذب شبه درجه اول (min^{-1}) می‌باشد.

فاضلاب حاصل از فرایندهای صنعتی بخش عمده‌ای از ترکیبات غیر قابل تجزیه زیستی را تولید می‌کنند. داروها یکی از این منابع بوده و از عناصر مهم و گره خورده با زندگی مدرن امروزی هستند که برای درمان بیماری‌های انسان و حیوانات به کار گرفته می‌شوند. داروها در واقع جزء آلاینده‌های محیط زیست به حساب می‌آیند. این فاضلاب‌های دارویی حاوی ترکیباتی هستند که می‌تواند برای محیط زیست و موجودات زنده زیان آور باشند. ترکیبات تولید شده یک مشکل جدی برای محیط زیست به حساب می‌آیند. که باعث شده این ترکیبات را تبدیل به یک نگرانی مهم برای بشر کنند. بخش وسیعی از ترکیبات فعال دارویی بدون تغییر یا به صورت متابولیت دفع شده، که بعد از دفع، حدود ۹۰٪ از آن‌ها بدون تغییر در سیستم تصفیه فاضلاب شهری وارد محیط زیست آبی و سفره‌های آب‌های زیرزمینی می‌شوند [۲۰]. اگر چه دفع داروهای مراقبت پزشکی انسان و حیوان، منبع اصلی آلودگی آب و خاک توسط ترکیبات فعال دارویی (PhACs) می‌باشند، در واقع منابع دیگر مثل نشر از مکان‌های تولید، نشت‌های تصادفی کارخانه‌ها، دفع مستقیم داروهای اضافی در خانه‌ها، نشت‌های زیرزمینی از تاسیسات فاضلاب، درمان دارویی احشام از منابع مهم نیز به حساب می‌آیند [۳،۴]. بیشتر مواد دارویی طوری طراحی شده‌اند که مسیر متابولیسم مشخصی در بدن انسان و حیوانات اهلی داشته باشند، اما تاثیر آن‌ها بر روی ارگانیسم‌های غیر هدف ممکن است حتی در غلظت‌های پایین زیان آور باشد [۵،۶]. این مسئله از طریق میزان سمیت حاد آن‌ها در آب سطحی (بر حسب $\mu g/L$) مشخص شده است که دلالت بر پتانسیل آن‌ها برای فعالیت‌های بیولوژیکی و عوارض سلامتی مضر در آب آشامیدنی دارد. حضور داروها در محیط‌های آبی به عنوان یک نگرانی اصلی دیگر در ارتباط با آسیب به اکوسیستم‌ها مطرح شده است، زیرا پتانسیل اکوسیستم را دچار دگرگونی می‌نماید [۷]. برای حل این مشکل، از روش تصفیه پساب با کارآمدی بالا نیاز است، زیرا عمل تصفیه، باعث کاهش آلاینده‌ها تا سطح قابل قبول می‌شوند، تا به توان آن‌ها را ایمن و بی‌خطر در محیط زیست رها سازی کرد [۸].

در میان روش‌های مختلف تصفیه فاضلاب از جمله روش جذب، انعقاد-لخته‌سازی، اکسیداسیون با اوزون، اسمز معکوس، فیلتراسیون با غشاء، تخریب بیولوژیکی و فرایندهای شیمیایی [۱-۳]، فرایند جذب بر پایه به کارگیری جاذب مؤثر، به‌طور گسترده استفاده شده است [۴-۷]. روش‌های فوق دارای معایبی، از جمله در روش انعقاد و لخته‌سازی، مقادیر زیادی لجن تولید می‌شود. در اسمز معکوس نیاز به فشار بالاست که مصرف انرژی را افزایش می‌دهد، در اکسیداسیون فتوشیمیایی داروها با اشعه ماوراءبنفش در حضور عوامل اکسید کننده مانند پراکسید، علاوه بر اینکه از نظر اقتصادی قابل صرفه نیست، محصولات ثانویه ی دیگر نیز تولید می‌کند، اگر چه

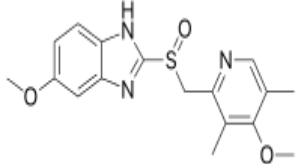
3- Corn Silk

4- Tassel

1- Pharmaceutically active compounds

2- Pentaazatetraethylene supported polyacrylamide

جدول ۱- ساختار ملکولی و خواص شیمیایی داروی مورد مطالعه

نام ترکیب	ساختار ملکولی	وزن ملکولی (گرم بر مول)	حلالیت در آب (گرم بر لیتر در ۲۵°C)	pKa (Strongest Acidic)	pKa (Strongest Basic)
امپرازول		۳۴۵/۴۲	۰/۱۲۵	۹/۲۹	۴/۷۷

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

در این معادله q_e میزان جذب در واحد سطح جاذب در زمان تعادل (mg g^{-1})، C_e غلظت تعادلی ماده حل شده در محلول (mg L^{-1})، q_{\max} بیشینه ظرفیت جذب (mg g^{-1}) ماده حل شده و K_L ثابت تعادل جذبی لانگمیر (وابسته به انرژی جذب) می‌باشد.

در مدل ایزوترم فرنلیچ جایگاه‌های موجود بر روی سطح جاذب، یکنواخت نبوده و قدرت جذب متفاوتی دارند. معادله خطی جذب فرنلیچ [۲۴] در رابطه ۶ آورده شده است.

$$\log q_e = \log K_F + \frac{1}{n} \log C_e \quad (6)$$

که در این معادله K_F ثابت تعادل جذب است که میزان ظرفیت جذب را نشان می‌دهد و (n بدون واحد) ترم انرژی است و برای هر سیستم خاص در دمای مشخص تعیین می‌شود.

مدل ایزوترم تمکین [۲۵] نیز استفاده شده است. این مدل بر هم کنش غیر مستقیم جاذب و جذب شونده، همچنین انرژی جذب را توصیف می‌کند. رابطه ایزوترم تمکین در معادله ۷ بیان شده است.

$$q_e = B_1 \ln k_T + B_1 \ln C_e \quad (7)$$

که در این رابطه $B_1 = RT/b$

که R ، T به ترتیب ثابت گازها و دما بوده، b ثابت تمکین است که به انرژی جذب (kJ mol^{-1}) وابسته است، B_1 ثابت انرژی ایزوترم تمکین (L mol^{-1}) که به گرمای جذب وابسته است و K_T ثابت ایزوترم تمکین ($1/\text{min}$) می‌باشد.

در این مطالعه، از آنجا که بررسی‌های خیلی کمی در حذف داروی امپرازول توسط جاذب‌ها شده است، به بررسی اثر نوع جاذب‌های

مدل دیگری که برای آنالیز سینتیک جذب وجود دارد، مدل شبه مرتبه دوم است. معادله شبه درجه دوم مطابق رابطه ۲ می‌باشد [۲۱]:

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{K_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (2)$$

که K_2 ($\text{g mg}^{-1} \text{min}^{-1}$) نشان دهنده ثابت سرعت شبه درجه دو است.

از دیگر مدل‌های متداول برای ارزیابی سینتیک یک فرایند جذبی مدل نفوذ درون ذره‌ای است [۲۲]. که با رابطه زیر بیان می‌شود.

$$q_t = K_{dif} t^{1/2} + c \quad (3)$$

که در آن C ضخامت لایه مرزی و K_{dif} (mg g^{-1})، ثابت سرعت نفوذ درون ذره‌ای ($\text{mg g}^{-1} \text{min}^{-1/2}$) می‌باشد.

معادله ایلوویچ یکی دیگر از معادلات سرعت بر اساس ظرفیت جذب است که معادله خطی آن در رابطه ۴ آورده شده است.

$$q_t = \frac{1}{\beta} \ln(\alpha\beta) + \frac{1}{\beta} \ln(t) \quad (4)$$

که در این رابطه α : سرعت جذب اولیه و β ثابت واجذب طی آزمایش (g/mg) می‌باشد.

جهت بررسی ایزوترم، از ایزوترم‌های مختلفی استفاده شده است. ایزوترم لانگمیر که بیشتر برای جذب‌های تک لایه معتبر است. در این نوع ایزوترم، یک لایه از مولکول‌های حل شده، جذب جاذب و در تمامی سطوح جاذب، مقدار انرژی جذب یکسان و پیوندهای جذب برگشت پذیر فرض می‌شوند. که معادله خطی لانگمیر [۲۳] به صورت رابطه ۵ ذکر می‌شود:

1- Temkin isotherm

$$RSD = SD \times \frac{100\%}{X(\text{average})} \quad (8)$$

که در این رابطه (8) SD: انحراف استاندارد داده‌ها

X (average): میانگین داده‌های به دست آمده، می‌باشد.

برای محاسبه درصد راندمان جذب از رابطه ۱۲ و ۱۳ استفاده شده است [26].

$$\%R = \frac{C_0 - C_e}{C_0} \times 100 \quad (9)$$

$$q = (C_0 - C_e) \times \left(\frac{V}{m}\right) \quad (10)$$

q: میزان جذب ماده حل شده در واحد جرم جاذب (mgL^{-1})

C_0 : غلظت اولیه ماده حل شده (mgL^{-1})

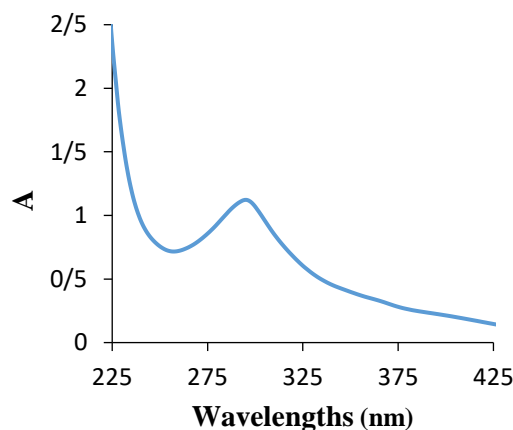
C_e : غلظت تعادلی ماده حل شده (mgL^{-1})

V: حجم محلول (Lit)

m: جرم جاذب (g)

نتایج

شکل ۱ طیف جذب داروی امپرازول را نشان می‌دهد، همان گونه که در شکل ۱ مشاهده می‌گردد، ماکزیمم جذب داروی امپرازول در طول موج ۲۹۱ نانومتر می‌باشد.



شکل ۱- طیف اسپکتروفتومتر ماوراء بنفش- مرئی محلول ۲۰ میلی گرم بر لیتر امپرازول

نانو لوله کربنی و گرافیت در حذف داروی امپرازول پرداخته شده است. از اهداف دیگر این مطالعه بررسی اثر پارمترهای مختلف محیطی بر حذف امپرازول توسط این دو جاذب بوده است. علاوه بر این سینتیک و ایزوترم جذب به روش بسته^۱ مورد بررسی قرار گرفته است. همچنین اثر مکانیسم جذب نیز مورد بررسی قرار داده شده است.

مواد و روش‌ها

همه مواد شیمیایی شامل سود، اسید کلریدریک، امپرازول، اتانول، نانو لوله های کربنی^۲ (MWCNTs) و گرافیت^۳ (GR) با درجه خلوص تجزیه‌ای از شرکت مرک^۴ خریداری شد. امپرازول در دامنه pH مورد مطالعه پایدار بود و محلول مادر از حل کردن مقدار مشخص از امپرازول در محلول ۲۰ درصد اتانول/آب تهیه شد. در طول آزمایش غلظت امپرازول در طول موج ۲۹۱ نانومتر (با استفاده از دستگاه طیف نورسنج ماوراءبنفش- مرئی مدل Lambda 45، آمریکا) بر اساس ناحیه خطی منحنی کالیبراسیون به دست آمده تعیین شد. جهت تنظیم pH محیط با اضافه کردن اسید کلریدریک یا سود ۰/۱ نرمال توسط pH متر مدل ۸۲۷ ساخت شرکت Metrohm سوئیس تنظیم گردید. پتانسیل زتای گرافیت و نانو لوله کربنی با استفاده از یک آنالایزر زتا پلاس^۵ (Malvern Zetasizer Nano, ZEN3600، انگلیس) با یک سوسپانسیون ۲۰ میلی گرم/لیتر برای گرافیت و نانو لوله کربنی (۰/۱) درصد وزنی) با تنظیم pH بین pH های ۱ تا ۱۰ (تنظیم شده با سود و اسید کلریدریک نرمال) تعیین شد.

جهت بررسی اثر pH، ابتدا pH محلول امپرازول (۲۰ میلی‌گرم بر لیتر) در محدوده ۳ تا ۱۱ تنظیم شد، سپس مقدار ۰/۱ گرم از MWCNT و GR به محلول اضافه و مخلوط را به مدت ۶۰ دقیقه توسط شیکر اریبتالی^۶ (مدل S 101 ساخت شرکت Firstek) در دمای آزمایشگاه (۲۰±۲ درجه سانتی‌گراد) هم زده شد، در پایان مخلوط توسط کاغذ صافی، صاف شده و برای تعیین غلظت داروی باقی مانده، از طیف‌سنج ماوراءبنفش- مرئی استفاده شد.

برای بررسی اثر زمان تماس بر میزان حذف امپرازول ۰/۱ گرم جاذب GR به ۲۵ میلی‌لیتر محلول امپرازول با غلظت ۳۰ میلی‌گرم بر لیتر افزوده و مخلوط مورد نظر به مدت زمان‌های مختلف در دمای آزمایشگاه قرار داده شد و سپس برای تعیین غلظت دارو باقی مانده از دستگاه طیف‌سنج ماوراءبنفش- مرئی استفاده شد. تمام آزمایش‌ها سه مرتبه تکرار شدند و مقادیر گزارش شده، میانگین نتایج به دست آمده با انحراف استاندارد نسبی^۷ (۱۱) کمتر از ۵ درصد بود.

5- Zetaplus analyzer

6- Orbital shaker

7- Relative Standard Deviation

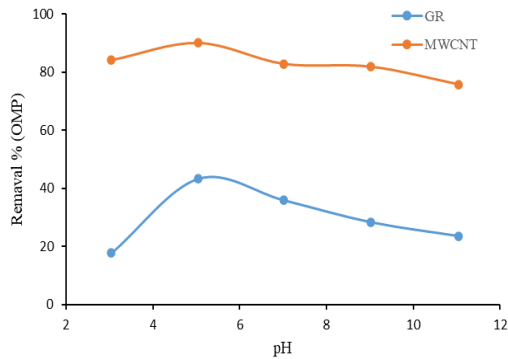
1- Batch

2- Multi Wall Carbon Nano Tubes

3- Graphite

4- Merck

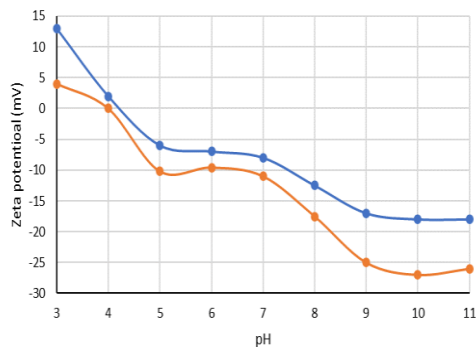
پروتونه شده و در رقابت با یون های هیدروژن محیط میزان جذب دارو کاهش می یابد. در pH های قلیایی نیز به دلیل تشکیل آنیون مربوط به داروی امپرازول دافعه الکترواستاتیک بین این آنیون و سطح آنیونی جاذب، باعث کاهش میزان جذب می شود [27,28]. از این رو بیشترین میزان جذب در pH=5.02 دیده می شود، بنابراین pH=5.02 به عنوان pH بهینه انتخاب شد.



شکل ۳- اثر pH بر حذف امپرازول، غلظت محلول امپرازول ۲۰ میلی گرم بر لیتر، حجم محلول ۲۵ میلی لیتر، وزن جاذب ها ۰/۰۱ گرم و مدت زمان تماس ۶۰ دقیقه

بدلیل اهمیت مکانیسم جذب، بار سطح نانو لوله های کربنی و گرافیت برای تعیین مکانیسم جذب تعیین گردید. زتا پتانسیل پراکندگی گرافیت و نانو لوله کربنی به عنوان تابعی از pH در شکل ۴ نشان داده شده است. واضح است که نانو لوله های کربنی دارای بار منفی هستند، که با نتایج گزارش شده قبلی مطابقت دارد [۲۱]. همانطور که مشخص است، این نشان می دهد که نانو لوله های کربنی خالص سازی شده توسط اصلاح اسیدی، حاوی برخی محل های اسیدی هستند که می توانند در محلول های قلیایی تفکیک شوند.

همانطور که مشاهده می شود گرافیت در pH های حدود ۴/۲ دارای بار صفر بوده و اما در pH های کمتر دارای مثبت و در pH های بالاتر دارای بار منفی می باشد [۲۲]. که این رفتار با توضیحات داده شده در بالا هم خوانی دارد.

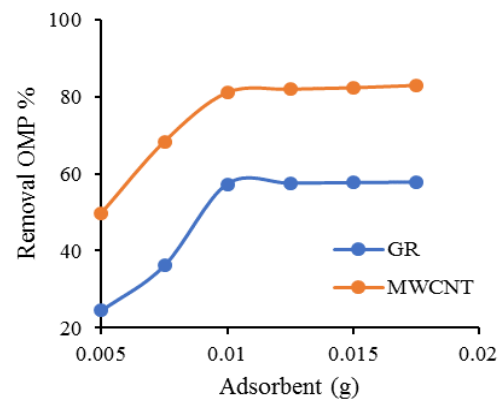


شکل ۴- اندازه گیری پتانسیل زتا در pH های مختلف برای نانو لوله های کربنی و گرافیت اثر زمان تماس بر روی جذب

بررسی اثر مقدار جاذب

۲۵ میلی لیتر از محلول ۲۰ میلی گرم بر لیتر امپرازول با pH=5.02 به یک بشر انتقال داده شد، سپس مقادیر مختلف از جاذب گرافیت با وزن های ۰/۵، ۷/۵، ۱۰/۰، ۱۲/۵، ۱۵/۰ و ۱۷/۵ میلی گرم به ظرف اضافه گردید، آن گاه به مدت ۶۰ دقیقه توسط هم زن به هم زده شد. بعد از آن محلول توسط کاغذ صافی فیلتر شده و غلظت محلول اولیه و ثانویه توسط دستگاه اسپکتروفوتومتر اندازه گیری و درصد حذف دارو محاسبه گردید. جهت بررسی حذف امپرازول توسط جاذب نانو لوله های کربنی همه شرایط یکسان بوده و تنها غلظت امپرازول اولیه ۳۰ میلی گرم بر لیتر انتخاب شده است. نتایج اثر میزان جاذب در شکل ۲ نشان داده شده است.

همانگونه که در شکل ۲ دیده می شود در ابتدا با افزایش میزان جاذب مقدار جذب افزایش می یابد و این امری طبیعی است زیرا سایت های فعال برای جذب افزایش می یابند، اما بعد از افزودن جاذب بیش از ۰/۰۱ برای هر دو جاذب تغییر چندانی در حذف مشاهده نمی گردد، و دلیل این امر می تواند اشباع شدن سایت ها باشد. بنابر این در ادامه کار میزان ۰/۰۱ گرم جاذب به عنوان مقدار بهینه انتخاب گردیده است.

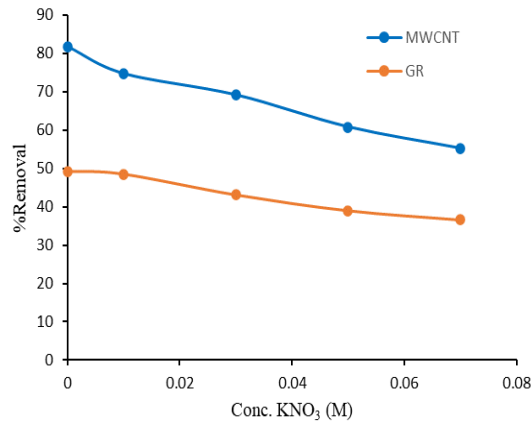


شکل ۲- اثر مقدار جاذب بر حذف امپرازول، غلظت محلول امپرازول ۲۰ میلی گرم بر لیتر (برای جاذب گرافیت) و ۳۰ میلی گرم بر لیتر برای جاذب نانو لوله های کربنی، pH=5.02، حجم محلول ۲۵ میلی لیتر، وزن های جاذب ۰/۵، ۷/۵، ۱۰/۰، ۱۲/۵، ۱۵/۰ و ۱۷/۵ میلی گرم و مدت زمان تماس ۶۰ دقیقه

بررسی اثر pH بر جذب

pH سیستم اثر مهمی بر روی طبیعت و خصوصیات سطح جاذب، یونیزاسیون و تفکیک مولکول های جاذب دارد. برهمکنش الکترو استاتیک میان گروه های عاملی بر روی MWCNT و جاذب GR و گروه های عاملی موجود در دارو، تئوری نرم-نرم و برهم کنش میان گروه های عاملی جاذب احتمالاً مکانیسم جذب داروی امپرازول را بر روی جاذب MWCNT و جاذب GR توجیه می کند. شکل ۳، اثر pH بر حذف داروی امپرازول توسط جاذب MWCNT و GR در محلول آبی را نشان می دهد. بیشترین مقدار حذف داروی امپرازول در pH=5.02 رخ داده است. در pH های اسیدی داروی امپرازول

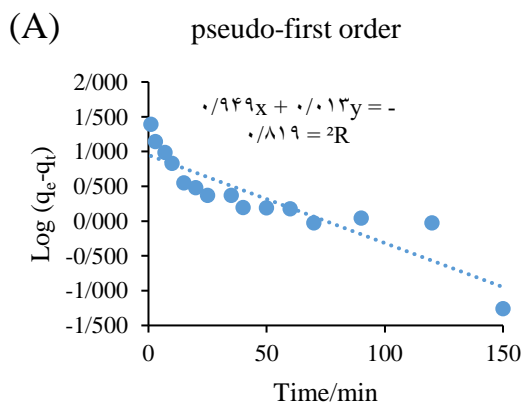
گرافیت مشاهده نمی‌شود زیرا گرافیت، بار سطحی خالص ندارد [۳۲] (شکل ۶).



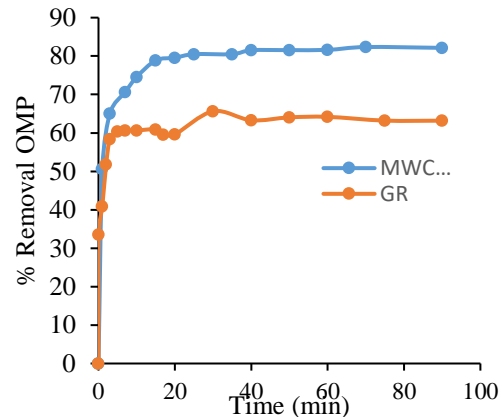
شکل ۶- بررسی اثر قدرت یونی بر حذف امپرازول، غلظت محلول امپرازول ۳۰ میلی گرم بر لیتر، ۰/۰۱ گرم جاذب، حجم محلول ۲۵ میلی لیتر و pH=5.02

بررسی مدل‌ها و پارامترهای سینتیکی جذب یک فرآیند چند مرحله‌ای شامل انتقال مولکول‌های جذب شونده از فاز محلول به سطح جاذب و سپس نفوذ ذرات حل شونده به منافذ درونی می‌باشد. مدل‌های سینتیکی شبه درجه اول، شبه درجه دوم، انتشار درون ذره ای و الویج برای بیان کمی سینتیک جذب به کار برده شد. شکل ۷ نتایج حاصل از مطالعه پارامترهای سینتیکی را به صورت نمودارهای رسم شده حاصل از $\log(q_e - q_t)$ و t/q_t بر حسب t برای زمان‌های تماس از صفر تا ۹۰ دقیقه را نشان می‌دهد. همان‌گونه که در شکل ۷ دیده می‌شود، جذب داروی امپرازول در سطح MWCNT و GR مورد بررسی و با توجه به ضریب تعیین^۱ $(R^2=0.999)$ توسط مدل سینتیکی شبه درجه دو توضیح داده می‌شود.

پارامترهای سینتیکی به دست آمده از شکل ۷ و معادلات سینتیکی، در جدول ۲ گزارش شده است.



زمان تماس یکی دیگر از پارامترهای مؤثر در میزان جذب است. بر اساس مطالعات انجام شده، فرآیند جذب در سه مرحله انجام می‌شود، مرحله اول که فرآیند جذب امپرازول به سرعت انجام می‌شود و در مرحله دوم تقریباً سرعت جذب امپرازول نسبت به مرحله اول کاهش می‌یابد و در مرحله پایانی تقریباً سرعت جذب امپرازول، ثابت است. در مرحله اول به دلیل آزاد بودن مکان‌های روی سطح، امپرازول با سرعت بالا جذب می‌شود، اما با گذشت زمان مکان‌ها روی سطح یکی بعد از دیگری پر شده و در نتیجه سرعت جذب امپرازول کاهش یافته تا جاییکه این مقدار بعد از پر شدن کامل مکان‌های MWCNT و GR ثابت خواهد شد (شکل ۵). بنابراین جهت انجام مراحل بعدی آزمایش‌ها از زمان ۲۵ دقیقه برای MWCNT و ۳۰ دقیقه برای GR به عنوان مقدار بهینه استفاده شده است. کاهش میزان ظرفیت جذب، احتمالاً به دو دلیل است: اولاً افزایش مقدار جاذب در حجم و غلظت ثابت محلول باعث اشباع شدن مکان‌های جاذب سطحی در طول فرآیند جذب خواهد شد [۲۹،۳۰]. دوماً به دلیل برهم کنش ذرات، برای مثال تجمع ذرات ناشی از غلظت بالای جاذب می‌باشد.

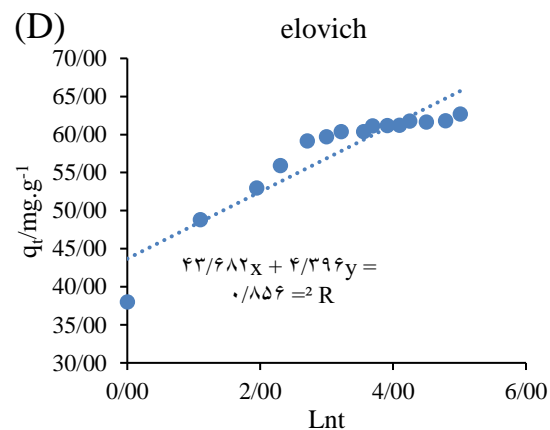
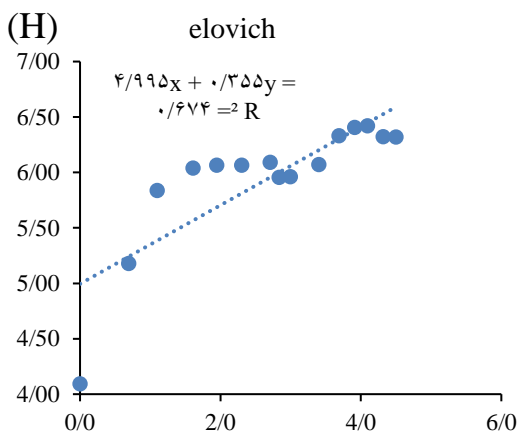
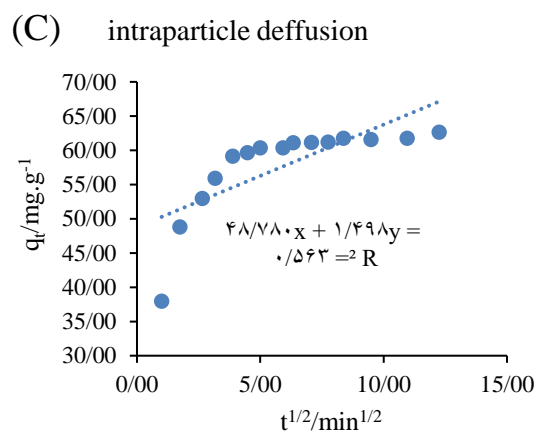
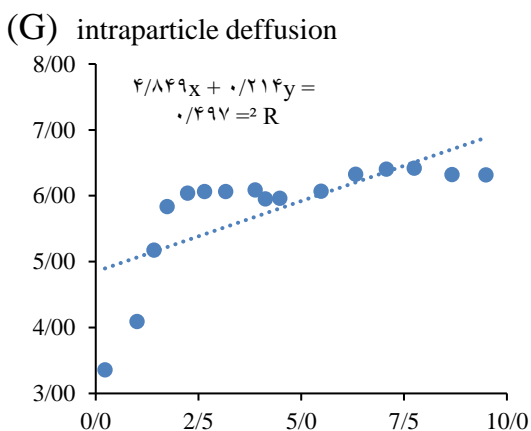
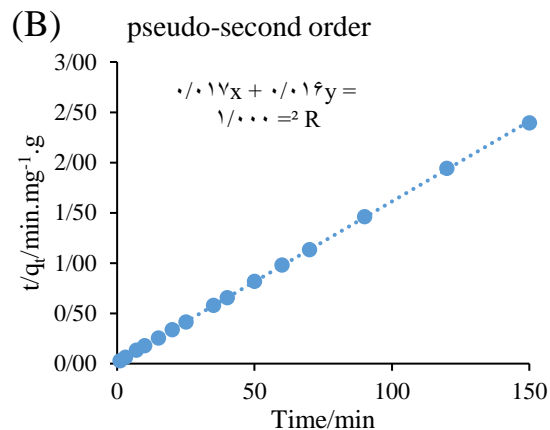
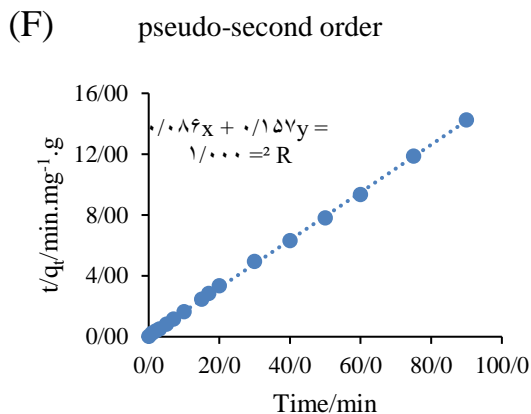


شکل ۵- اثر زمان بر حذف امپرازول، ۰/۰۱ گرم جاذب، حجم محلول ۲۵ میلی لیتر و pH=5.02: الف: غلظت محلول امپرازول ۲۰ میلی گرم بر لیتر (GR) ب: غلظت محلول امپرازول ۳۰ میلی گرم بر لیتر (MWCNT)

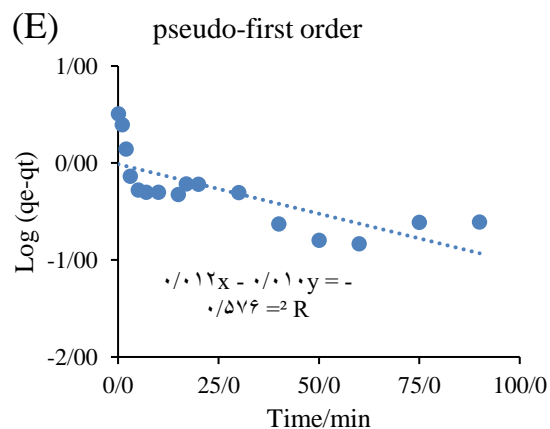
اثر قدرت یونی بر روی جذب

قدرت یونی عامل مهم و تاثیر گذار بر تعادل گونه‌های جذب شده و جاذب در فاز محلول است. بطور کلی با افزایش قدرت یونی محلول میزان جذب گونه کاهش پیدا می‌کند [۳۱]. همان‌طور که در مشاهده می‌شود با افزایش قدرت یونی میزان حذف امپرازول کاهش یافته که دلیل این امر به احتمال زیاد ایجاد تداخل بر نیروی الکترواستاتیک بین گروه‌های آمین کاتیونیزه شده امپرازول و گروه‌های کربوکسیل دیپروتونه شده نانو لوله کربنی خواهد شد، که این امر بدلیل ایجاد بار الکتریکی ایجاد شده بر روی سطح توسط اضافه شدن یون‌های پتاسیم می‌باشد. از سوی دیگر، هیچ روند واضحی از اثرات قدرت یونی برای

¹ Regression coefficient



شکل ۷- مدل های سنتیکی برای حذف امپرازول با الف: نانو لوله های کربنی (A) شبه درجه اول، (B) شبه درجه دوم، (C) نفوذ درون ذره ای و (D) الوویچ بی: جاذب (E) شبه درجه اول، (F) شبه درجه دوم، (G) نفوذ درون ذره ای و (H) الوویچ، در شرایط بهینه

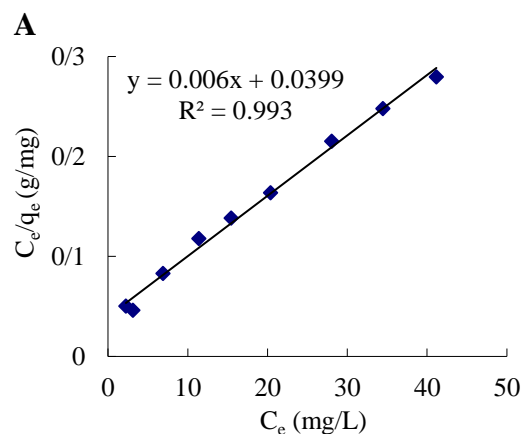
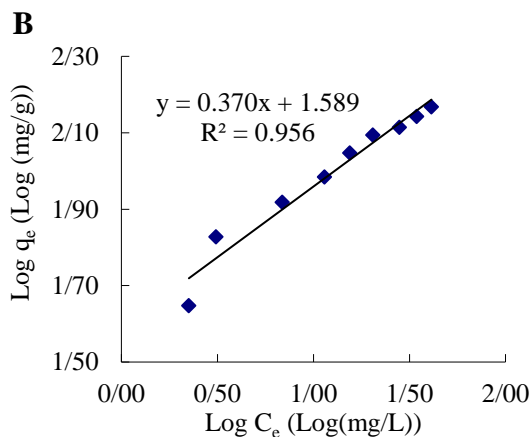


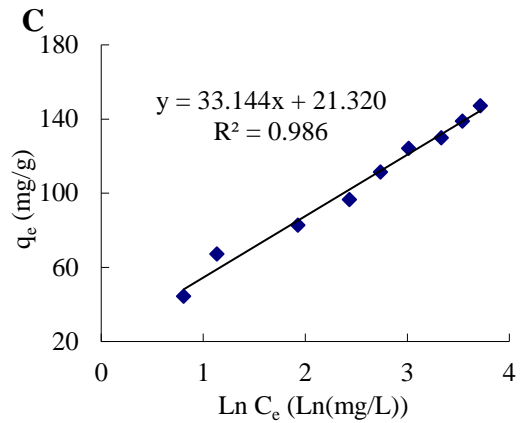
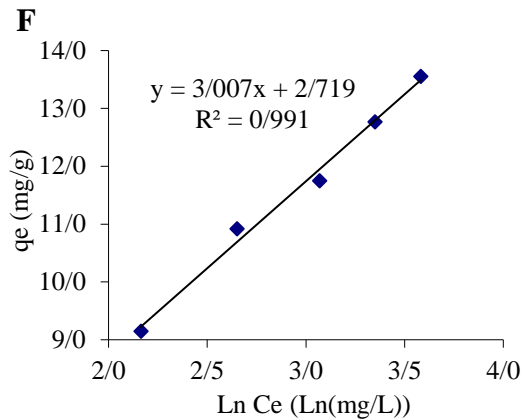
جدول ۲- پارامترهای سنتتیک جاذب امپرازول توسط MWCNT و GR در شرایط بهینه

جاذب	پارامترها	معادله	مدل
پودر گرافیت	نانولوله های کربنی		
۶۲/۷۱	۶۲/۷۱	$q_{e,exp} (mg\ g^{-1})$	
۰/۴۰	۰/۰۲۹	$K_1 (min^{-1})$	شبه درجه اول
۰/۶۶	۸/۸۹	$q_{e,cal.} (mg\ g^{-1})$	
۰/۵۷۶	۰/۸۱۹	R^2	
۰/۳۷۵	۰/۰۱۴	$K_2 (min^{-1})$	
۶/۳۸	۶۲/۵	$q_{e,cal.} (mg\ g^{-1})$	شبه درجه دوم
۱/۰۰۰	۱/۰۰۰	R^2	
۰/۲۱۹	۱/۴۹۸	$K_{id} (mg\ g^{-1} min^{-1/2})$	انتشار درون ذره ای
۴/۸۶	۴۸/۷۸	$C (mg\ g^{-1})$	
۰/۴۹۷	۰/۵۶۳	R^2	
۲/۷۱۷	۰/۲۲۷	$\beta (mg\ g^{-1})$	الویج
$۸/۹ \times 10^4$	$۲/۸۵ \times 10^5$	$\alpha (mg\ g^{-1})$	
۰/۶۷۴	۰/۸۵۶	R^2	

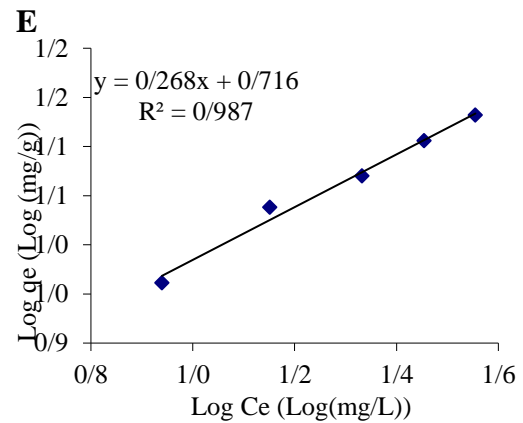
بررسی ایزوترم‌های جاذب

مقادیر پارامترها حاصل از این سه ایزوترم لانگمویر، فرندلیج و تمکین (شکل ۸) در جدول ۳ گزارش شده است.

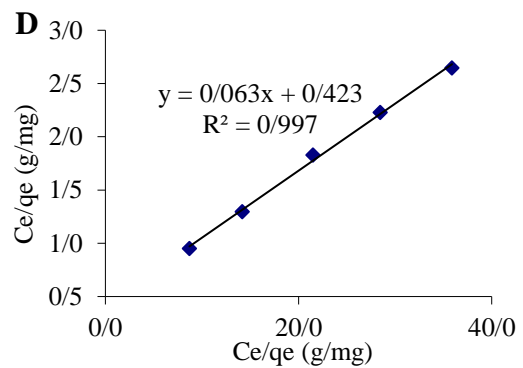




شکل ۸- الف: منحنی درصد حذف امپرازول بر حسب غلظت اولیه امپرازول (A) و منحنی های ایزوترم های لانگمویر (B)، فرندلیچ (C) و الویج (D) برای جاذب MWCNT منحنی درصد حذف امپرازول بر حسب غلظت اولیه امپرازول و منحنی های ایزوترم های لانگمویر (E)، فرندلیچ (G) و الویج (H) برای جاذب GR در شرایط بهینه



پارامترها و ضریب تعیین نشان داده شده در جدول ۳ مشخص می کند که رفتار جذبی امپرازول بر سطح MWCNT و GR بهترین توافق را با مدل ایزوترمی لانگمویر دارد (مطابق ضریب تعیین به دست آمده).



جدول ۳- پارامترهای ایزوترم امپرازول بر روی MWCNT و GR در شرایط بهینه

ایزوترم	معادلات	پارامترها	جاذب	
			CNT	G R
لانگمویر	$Ce/qe = 1/KaQm + Ce/Qm$	$Q_m (mg g^{-1})$	۱۶۶/۷۰۶	۱۶/۳۲۱
		$K_a (L mg^{-1})$	۰/۱۵۱	۱/۵۳۵
		R^2	۰/۹۹۳	۰/۹۹۷
فرندلیچ	$Ln qe = ln KF + (1/n) ln Ce$	$1/n$	۰/۳۷۱	۰/۲۶۸
		$K_F (L mg^{-1})$	۴/۳۱۹	۱/۹۴۶
		R^2	۰/۹۵۶	۰/۹۸۶
تمکین	$qe = B_1 ln KT + B_1 ln Ce$	B_1	۳۳/۱۴۴	۳/۰۰۷
		$K_T (L mg^{-1})$	۱/۷۴۸	۲/۴۵۷
		R^2	۰/۸۹۵	۰/۹۹۱

بعد از بدست آمدن ظرفیت جذب، جاذب‌ها در جدول ۴ به طور خلاصه، تحقیقات در مورد حذف مواد دارویی توسط جاذب نانو لوله کربنی چند دیواره گزارش داده شد. بسیاری از چالش‌ها باقی مانده است که باید مورد توجه قرار گیرد، و تحقیقات بیشتری با توجه به طراحی و تهیه جاذب‌های جدید با خواص جذب و بازسازی خوب مورد نیاز است.

جدول ۴- مقایسه جاذب نانو لوله کربنی در حذف ترکیبات دارویی مختلف

مرجع	ترکیب داروی حذف شده	اثر جذب	روش اصلاح	نوع کربن نانولوله
[۳۳]	سفلاکسین	رنج بین ۹۵/۲ تا ۹۷/۶٪	بدون اصلاح	نانو لوله کربنی چند دیواره
[۳۴]	تتراسایکلین	ماکزیمم ظرفیت جذب ۲۹۶/۵ میلی گرم بر گرم	بدون اصلاح	نانو لوله کربنی چند دیواره
[۳۵]	الاکوئیندوکس ^۱	اثر جذب ۹۹/۷٪	بدون اصلاح	نانو لوله کربنی چند دیواره
[۳۶]	کافئین، دیکونفناک، اتنولول و	ارائه نشده است.	بدون اصلاح	نانو لوله کربنی چند دیواره
[۳۷]	گلیمی پرید ^۲	۲۷۵/۳	بدون اصلاح	نانو لوله کربنی چند دیواره
	تتراسایکلین	۱۴۸	بدون اصلاح	نانو لوله کربنی چند دیواره
[۳۸]	تی لوسین ^۳	۲۷۰	اصلاح با پتاسیم هیدروکسید	نانو لوله کربنی چند دیواره
	کاربامازپین ^۴	۴۱/۴	اصلاح با پتاسیم هیدروکسید	نانو لوله کربنی چند دیواره
[۳۹]	کاربامازپین ^۵ دورزول آمید ^۶	۲۲۴/۶ میلی گرم بر گرم ۷۸/۸ میلی گرم بر گرم	بدون اصلاح	نانو لوله کربنی چند دیواره

مطالعات ترمودینامیک^۷

که از یک واکنش خودبخودی انتظار می رود، افزایش در انرژی آزاد گیبس ΔG با افزایش دما مقدار جذب را بیشتر می کند و مقدار منفی آنتروپی ΔS تمایل جاذب را برای جذب امپرازول در محلول های آبی را نشان می دهد.

ابتدا نمودار $\ln(q_e/C_e)$ بر حسب T را رسم شد. شیب این نمودار مقدار $-\Delta H/R$ و عرض از مبدا آن مقدار $\Delta S/R$ را می دهد. پارامترها و ضریب تعیین نشان داده شده در جدول ۵ و ۶ مشخص می کند که مقدار منفی برای ΔH نشان دهنده این است که فرآیند جذب گرماده است. تغییرات انرژی آزاد گیبس ΔG به صورت منفی است. همانطور

- 1- Olaquinox
- 2- glimepiride
- 3- Tylosin
- 4- Carbamazepine
- 5- Carbamazepine
- 6- Dorzolamide
- 7- Thermodynamic

جدول ۵- پارامترهای ترمودینامیکی جذب امپرازول توسط MWCNT در شرایط بهینه

پارامترهای ترمودینامیکی			
دما (کلوین)	ΔG° (kj mol ⁻¹)	ΔS° (j mol ⁻¹ k ⁻¹)	ΔH° (kj mol ⁻¹)
۲۹۷/۱۵	-۸۴۰۰/۳۵		
۳۱۵/۱۵	-۸۰۹۴/۶۶		
۳۱۹/۱۵	-۸۰۳۰/۴۰	-۴/۹۴	-۱۰۶۹۴/۳
۳۴۳/۱۵	-۷۶۲۶/۸۲		

جدول ۶- پارامترهای ترمودینامیکی جذب امپرازول توسط GR در شرایط بهینه

پارامترهای ترمودینامیکی			
دما (کلوین)	ΔG° (kj mol ⁻¹)	ΔS° (j mol ⁻¹ k ⁻¹)	ΔH° (kj mol ⁻¹)
۲۹۱/۱۵	-۸۵۰۱/۲۴		
۲۹۳/۱۵	-۸۴۶۷/۶۲		
۳۱۴/۱۵	-۸۱۱۴/۴۸	-۱۶/۸۱	-۱۳۳۹۷/۲
۳۳۶/۶۵	-۷۷۳۶/۱۲		

نتیجه گیری

دوم ($R^2 = ۱/۰۰۰$) تطابق مطلوبی دارد. مطالعه ایزوترم تعادلی به وسیله معادلات لانگمیر، فرنلیدج و تمکین بررسی شد و با توجه به مقادیر ضریب تعیین به دست آمده مشخص گردید که جذب امپرازول توسط نانو لوله کربنی و جاذب گرافیت تطابق مطلوبی با معادله لانگمیر با مقدار ضریب تعیین ($R^2 = ۰/۹۹۳$) برای جاذب نانو لوله کربنی و مقدار ضریب تعیین ($R^2 = ۰/۹۹۷$) برای جاذب گرافیت تطابق مطلوبی دارد. با توجه به مدت زمان ۲۵ دقیقه با جاذب نانو لوله کربنی و ۳۰ دقیقه با جاذب گرافیت مقدار ظرفیت جذب به دست آمده (۱۶۶/۷۰) برای جاذب نانو لوله کربنی و مقدار ظرفیت جذب به دست آمده برای جاذب گرافیت، (۱۶/۳۲) بدست آمد، که این داده ها نشان می دهد که جاذب نانو لوله کربنی به طور مؤثری قادر به کاهش غلظت امپرازول را دارا می باشد. بررسی ترمودینامیک جذب نشان می دهد که تغییرات انرژی آزاد گیبس ΔG به صورت منفی است که با افزایش دما مقدار جذب افزایش می یابد و فرآیند جذب فرآیندی گرماگیر است. علاوه بر نتایج فوق می

هدف از انجام این پژوهش، بررسی بازده جذب و بهینه کردن شرایط جهت فرایند جذب داروی امپرازول از محلول های آبی توسط جاذب های نانو لوله های کربنی چند دیواره و گرافیت بوده است. پارامترهای مختلفی از جمله pH محلول، مقدار جاذب، زمان تماس، قدرت یونی محلول توسط دو جاذب نانو لوله کربنی و گرافیت مورد بررسی قرار گرفت. جاذب نانو لوله کربنی همان طور که مشاهده شد که بعد از ۲۵ دقیقه به تعادل رسیده و جاذب گرافیت بعد از ۳۰ دقیقه به تعادل رسیده است، که نشان از سرعت بیشتر نانو لوله کربنی در جذب می باشد. مقدار بیشینه جذب امپرازول برای هر دو جاذب تقریباً در مقدار $pH = ۵/۰۲$ حاصل شد. داده های تجربی به دست آمده با مدل های سینتیکی مختلف شامل مرتبه درجه اول، درجه دوم، نفوذ درون ذره ای و الوویج مورد بررسی قرار گرفت و با توجه به مقادیر ضریب تعیین به دست آمده مشخص گردید که نتایج داده ها برای دو جاذب با مدل سینتیکی مرتبه

مشارکت نویسندگان

انجام آزمایش‌ها: ندا صادق پور، نرگس باقری؛
تحلیل داده‌ها و نتایج: مهدی وادی، نرگس باقری، ندا صادق پور؛
نگارش نهایی: مهدی وادی، نرگس باقری.

تعارض منافع

بنابر اظهار نویسندگان، مقاله حاضر فاقد هرگونه تعارض منافع بوده است.

توان به نتیجه ارزشمندی اشاره کرد که می‌توان از جاذب نانو لوله کربنی بطور موثر در حمل داروی امپرازول در بدن استفاده کرد.

ملاحظات اخلاقی پیروی از اصول اخلاق پژوهش

همکاری مشارکت‌کنندگان در تحقیق حاضر به صورت داوطلبانه و با رضایت آنان بوده است.

حامی مالی

هزینه تحقیق حاضر توسط نویسندگان مقاله تامین شده است.

References:

1. Heberer T. Occurrence, fate, and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data. *Toxicol Lett. Elsevier*; 2002;131:5–17.
2. Zhang Y, Geißen S-U, Gal C. Carbamazepine and diclofenac: Removal in wastewater treatment plants and occurrence in water bodies. *Chemosphere [Internet]*. 2008;73:1151–61. Available from: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S004565350800996X>
3. Heberer T. Tracking persistent pharmaceutical residues from municipal sewage to drinking water. *J Hydrol [Internet]*. 2002;266:175–89. Available from: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0022169402001658>
4. NARVAEZ V. JF, JIMENEZ C. C. PHARMACEUTICAL PRODUCTS IN THE ENVIRONMENT: SOURCES, EFFECTS AND RISKS. *Vitae. scieloco*; 2012. p. 93–108.
5. Daughton CG, Ternes TA. Pharmaceuticals and personal care products in the environment: agents of subtle change? *Environ Health Perspect [Internet]*. Environmental Health Perspectives; 1999;107:907–38. Available from: <https://doi.org/10.1289/ehp.99107s6907>
6. Szabó RK. Decomposition of some pharmaceuticals by Advanced Oxidation Processes. *Univ Szeged*. 2010;
7. Masters RW. Pharmaceuticals and endocrine disruptors in rivers and on tap. *J Contemp Water Res Educ*. 120:1.
- 8- کافی موسوی، مائده میرزایی، روح اله. مروری بر روش‌های حذف ترکیبات دارویی از پساب با تاکید بر روش جذب سطحی. *گنبد کاووس [Internet]*. 1398. p. 28–32. Available from: <https://civilica.com/doc/962397>
9. 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 [Internet]*. 2011;187:24–36. Available from: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304389411000793>
10. Moussavi G, 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. *Chem Eng J. Elsevier*; 2013;217:119–28.
11. Lin S-H, Juang R-S. Adsorption of phenol and its derivatives from water using synthetic resins and low-cost natural adsorbents: a review. *J Environ Manage. Elsevier*; 2009;90:1336–49.
12. 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. *Bioresour Technol.* 2008;99:2938-46.

13. Zare MA, Husain SW, Tehrani MS, Azar PA. Pentaazatetraethylene supported polyacrylamide (PAA-N5) as a novel adsorbent for the efficient removal of industrial dyes from aqueous solutions: adsorption isotherms and kinetics. *Monatshefte für Chemie-Chemical Mon.* Springer; 2017;148:191-7.

۱۴- کریمی، معروفی، صفر، زارع. حذف سرب از آب های آلوده توسط کلاله ذرت به عنوان یک بیوجاذب ارزان قیمت. *مجله تحقیقات سلامت در جامعه.* مجله تحقیقات سلامت در جامعه; ۲۰۱۸; ۳۵:۴-۴۸.

۱۵- کریمی ی. بازیافت فاضلاب با استفاده از مواد جاذب زیستی- شیمیایی. [Internet]. دولتی - وزارت علوم، تحقیقات، و فناوری - دانشگاه بوعلی سینا; ۱۳۹۴. Available from: [https://ganj.irandoc.ac.ir/#/search?keyword=](https://ganj.irandoc.ac.ir/#/search?keyword=بازیافت)

۱۶- زارع مع، عمادی م، ایرانپور م، بازرگان لاری ر. بررسی حذف رنگ متیلن بلو از آب های آلوده توسط کاکل ذرت به عنوان یک بیو جاذب ارزان قیمت. فصلنامه علمی - پژوهشی مواد نوین. [Internet]. مری گروه شیمی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد مرودشت، مرودشت، ایران; ۲۰۱۴; ۴۱:۹۸-۴۱۴. Available from: http://jnm.miau.ac.ir/article_425.html

۱۷- وفاخواه س، بحرالعلوم ما، بازرگان لاری ر، سعیدی خانی م. بررسی رفتار جذب یون های مس از محلول پساب های صنعتی توسط پودر چوب ذرت. فصلنامه علمی - پژوهشی مواد نوین. [Internet]. دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی مواد، دانشکده مهندسی دانشگاه شیراز، شیراز، ایران; ۲۰۱۳; ۳۵:۴۶-۴۶. Available from: http://jnm.miau.ac.ir/article_95.html

۱۸- کریمی سی، معروفی ص، زارع مع. حذف سم پروپارزیت از محلول های آبی با استفاده از پنتا آزا تترا اتیلن پلی آکریل آمید (PAA-N5) به عنوان یک جاذب جدید. فصلنامه علمی - پژوهشی مواد نوین. [Internet]. گروه کشاورزی، مهندسی آب، دانشگاه ابو علی سینا، همدان، ایران; ۲۰۲۰; ۱۰۹:۱۰۹-۲۴. Available from: http://jnm.miau.ac.ir/article_3905.html

19. Sadeghpour N, Vadi M, Bagheri N. UTILIZING CARBON NANOTUBES AS EFFICIENT NANOADSORBENT FOR PANTOPRAZOLE REMOVAL FROM AQUEOUS SAMPLES: KINETICS, ISOTHERM, AND THERMODYNAMIC STUDIES. *J Chil Chem Soc.* 2021;66:5324-31.

20. LAGERGREN, S. Zur theorie der sogenannten adsorption gelöster stoffe. *K Sven Vetenskapsakademiens Handl* [Internet]. 1898 [cited 2018 Apr 16];24:1-39. Available from: <http://ci.nii.ac.jp/naid/10027970486/en/>

21. Ho Y-S, McKay G. Kinetic models for the sorption of dye from aqueous solution by wood. *Process Saf Environ Prot.* Elsevier; 1998;76:183-91.

22. Ho YS, McKay G. Batch lead (II) removal from aqueous solution by peat: equilibrium and kinetics. *Trans IChemE.* Citeseer; 1999;77:165-73.

23. Langmuir I. The adsorption of gases on plane surfaces of glass, mica and platinum. *J Am Chem Soc.* ACS Publications; 1918;40:1361-403.

24. Choy KKH, McKay G, Porter JF. Sorption of acid dyes from effluents using activated carbon. *Resour Conserv Recycl.* Elsevier; 1999;27:57-71.

25. Aharoni C, Ungarish M. Kinetics of activated chemisorption. Part 2.— Theoretical models. *J Chem Soc Faraday Trans 1 Phys Chem Condens Phases.* Royal Society of Chemistry; 1977;73:456-64.

26. Metcalf E, Eddy E. *Wastewater engineering: treatment and reuse*, McGrawHill. Inc, New York. 2003;

27. Shokrollahi A, Alizadeh A, Malekhosseini Z, Ranjbar M. Removal of bromocresol green from aqueous solution via adsorption on *Ziziphus nummularia* as a new, natural, and

- low-cost adsorbent: kinetic and thermodynamic study of removal process. *J Chem Eng Data*. ACS Publications; 2011;56:3738-46.
28. Ghaedi M, Khajesharifi H, Yadkuri AH, Roosta M, Sahraei R, Daneshfar A. Cadmium hydroxide nanowire loaded on activated carbon as efficient adsorbent for removal of Bromocresol Green. *Spectrochim Acta Part A Mol Biomol Spectrosc*. Elsevier; 2012;86:62-8.
29. Shukla A, Zhang Y-H, Dubey P, Margrave JL, Shukla SS. The role of sawdust in the removal of unwanted materials from water. *J Hazard Mater*. Elsevier; 2002;95:137-52.
30. Özacar M, Şengil İA. Adsorption of metal complex dyes from aqueous solutions by pine sawdust. *Bioresour Technol*. Elsevier; 2005;96:791-5.
31. Garcia Sanchez A, Alvarez Ayuso E, Jimenez de Blas O. Sorption of heavy metals from industrial waste water by low-cost mineral silicates. *Clay Miner. Mineralogical Society of Great Britain and Ireland*; 1999;34:469-77.
32. Ji L, Chen W, Bi J, Zheng S, Xu Z, Zhu D, et al. Adsorption of tetracycline on single-walled and multi-walled carbon nanotubes as affected by aqueous solution chemistry. *Environ Toxicol Chem*. Wiley Online Library; 2010;29:2713-9.
33. Jafari M, Aghamiri SF. Evaluation of carbon nanotubes as solid-phase extraction sorbent for the removal of cephalexin from aqueous solution. *Desalin Water Treat*. Taylor & Francis; 2011;28:55-8.
34. Zhang L, Song X, Liu X, Yang L, Pan F, Lv J. Studies on the removal of tetracycline by multi-walled carbon nanotubes. *Chem Eng J*. Elsevier; 2011;178:26-33.
35. Zhang L, Xu T, Liu X, Zhang Y, Jin H. Adsorption behavior of multi-walled carbon nanotubes for the removal of olaquinox from aqueous solutions. *J Hazard Mater*. Elsevier; 2011;197:389-96.
36. Sotelo JL, Rodríguez AR, Mateos MM, Hernández SD, Torrellas SA, Rodríguez JG. Adsorption of pharmaceutical compounds and an endocrine disruptor from aqueous solutions by carbon materials. *J Environ Sci Heal Part B*. Taylor & Francis; 2012;47:640-52.
37. Zha Y, Wang Y, Liu S, Liu S, Yang Y, Jiang H, et al. Adsorption characteristics of organics in the effluent of ultra-short SRT wastewater treatment by single-walled, multi-walled, and graphitized multi-walled carbon nanotubes. *Sci Rep. Nature Publishing Group*; 2018;8:1-12.
38. Ji L, Shao Y, Xu Z, Zheng S, Zhu D. Adsorption of monoaromatic compounds and pharmaceutical antibiotics on carbon nanotubes activated by KOH etching. *Environ Sci Technol*. ACS Publications; 2010;44:6429-36.
39. Ncibi MC, Sillanpää M. Optimizing the removal of pharmaceutical drugs Carbamazepine and Dorzolamide from aqueous solutions using mesoporous activated carbons and multi-walled carbon nanotubes. *J Mol Liq*. Elsevier; 2017;238:379-88.

