مجله مهندسی بهداشت محیط، تابستان ۱۳۹۸، سال ٦، شماره ٤: ۳۵٦-۳۷٤

بررسی کارایی جاذب نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی-متالیک در حذف آنتی بیوتیک تتراسایکلین از محلولهای آبی

مریم محمدی امینی[۱]، محمد نوری سپهر[۲و۳*]، عماد دهقانی فرد[۲و۳]

۱ـ کارشناسی ارشد رشته مهندسی محیط زیست (گرایش آب و فاضلاب)، دانشکده محیط زیست و انرژی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم تحقیقات تهران، تهران، ایران

۲- گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی البرز، کرج، ایران

۳- مرکز تحقیقات بهداشت، ایمنی و محیط (RCHSE)، دانشگاه علوم پزشکی البرز، کرج، ایران

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۷/٤/۱۰ ؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۷/۱۱/۱۱

چکیده

زمینه و هدف: آنتی بیوتیک ها از طریق آلودگی منابع آبی به فاضلابهای انسانی و صنعتی سبب بروز مشکلات مختلف بهداشتی و زیست محیطی می گردد و بنابراین به عنوان تهدید عمده برای سلامت انسان مطرح باشد. هدف این مطالعه، تعیین کارایی جاذب نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی-متالیک در حذف آنتی بیوتیک تتراسایکلین از محلولهای آبی می باشد.

روش تحقیق: در این مطالعه که از نوع مطالعات بنیادی-کاربردی بود آزمایش ها به وسیله دستگاه اسپکتروفتومتری انجام شد. در این مطالعه از نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی-متالیک به عنوان جاذب آنتی بیوتیک استفاده شد که کارایی نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی-متالیک با تغییر دادن متغیر هایی از قبیل دما، زمان، PH، غلظت نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی-متالیک، غلظت تتراسایکلین، غلظت های یونهای مداخله کلرور، سولفات، کربنات مورد بررسی قرار گرفت. سنتز نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی-متالیک به روش هم ترسیبی بود. برای تعیین ایزوترم و سینتیک جذب از معادلات ایزوترم فروندلیخ، لانگمیر و تمکین استفاده شد.

یافته ها: بهترین راندمان حذف آنتی بیوتیک در pH=٦ و در زمان ۹۰ دقیقه و برابر ۹۱/۲۳٪ بدست آمد. در pHهای قلیایی راندمان حذف تتراسایکلین به شدت کاهش یافت. با افزایش دوز جاذب از g/L ۰/۱ تا g/L ۰/۵، راندمان حذف آلاینده افزایش یافت و در زمان ۹۰ دقیقه، از ۷۱/۲٤٪ به ۹٦/۲٪ رسید. با افزایش غلظت آلاینده بین mg/L ۳۰-۵، راندمان حذف آلاینده از ۹۳/٤٪ به ۵۳/۷٪ کاهش یافت. حضور یونهای مداخله گر دارای اثر کاهشی بر راندمان حذف آلاینده تتراسایکلین داشته که راندمان حذف از ۹۱/۲۳٪ در زمان ۹۰ دقیقه (در حالت بدون حضور یونها) به ۷۰/۱۸٪ (برای یون کلرور)، ٦۵/۹٦٪ (برای یون کربنات) و ۵٤/۲٪ (برای یون سولفات) گردید.

نتیجه گیری: در نهایت، استفاده از جاذب نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک در حذف آنتی بیوتیک تتراسایکلین توصیه می شود.

کلمات کلیدی: جذب، نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی-متالیک، تتراسایکلین، منابع آبی.

* **نویسنده مسئول:** گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی البرز؛ مرکز تحقیقات بهداشت، ایمنی و محیط (RCHSE)، دانشگاه علوم پزشکی البرز، کرج، ایران
ایمیل: dr.nourisepehr@yahoo.com
تلفن تماس: ۰۲۶-۳۴۶۴۳۹۲۲

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

مقدمه

از میان انواع مختلف آنتی بیوتیک ها، تتراسایکلین ها دومین گروه شایع آنتی‌بیوتیک‌ها از نظر تولید و مصرف در سراسر جهان می باشند که به صورت طبیعی از تخمیر برخی از قارچ ها یا بوسیله فرایندهای نیمه سنتتیک به دست می آیند و امروزه به طور بی رویه و مکرر برای درمان انواع بیماری های عفونی مورد استفاده قرار می گیرند. تتراسایکلین ها آنتی‌بیوتیک‌هایی وسیع الطیف هستند و بر روی باکتری های گرم مثبت و گرم منفی و تا حدودی مایکوپلاسماها و برخی از قارچ ها تاثیر دارند. این دارو در درمان برونشیت مزمن، عفونت های ناشی از بروسلا، کلامیدیا، مایکوپلاسما و ریکتزیا و نیز در درمان جوش و آکنه و لگاریس و افوزیون پلورال ناشی از سیروز یا بیماری های بدخیم مصرف می شود[1و2]. آنتی‌بیوتیک‌های تتراسایکلین به دلیل هزینه کمتر و فعالیت ضد میکروبی بالاتر به طور گسترده ای در پزشکی و دامپزشکی و آبزی پروری به منظور پیشگیری یا درمان عفونت های میکروبی استفاده می شوند. همچنین این ترکیبات به صورت افزودنی به خوراک به منظور محرک رشد در حیوانات نیز استفاده می شوند. میزان مصرف این آنتی بیوتیک در دام بیشتر است. بعنوان مثال در طیور: ۳۰- ۲۰ میلی گرم به ازای هر کیلو وزن بدن مصرف می شود[3،4]. ایالات متحده امریکا بزرگترین مصرف کننده آنتی‌بیوتیک‌های تتراسایکلین با ۳۲۰۰ تن در سال بوده و متعاقب آن کشور کره با ۷۲۳ تن در سال قرار دارد. بالا بودن میزان مصارف آنتی‌بیوتیک‌های تتراسایکلین در این دو کشور در مقایسه با اکثر کشورهای اروپایی به دلیل بالا بودن تعداد دام و همچنین رایج بودن مصرف تتراسایکلین به عنوان مکمل خوراک دام در این کشورها می باشد[5]. جذب تتراسایکلین ها پس از مصرف توسط انسان و حیوانات بسیار ضعیف، نامنظم و متغیر بوده و بیش از ۷۰ ٪ این ترکیبات پس از مصرف به صورت ترکیبات اولیه و فعال از طریق مدفوع و ادرار به فاضلاب خانگی دفع می شوند و در نهایت منجر به آلودگی محیط زیست و منابع آبی می گردد. ثابت هنری نسبتا پایین این آنتی‌بیوتیک‌ها نشان می دهد که این ترکیبات به سختی بوسیله تبخیر از بین می روند. حلالیت بالا و ضریب جداسازی آب-اکتانول پایین تر این ترکیبات، خصوصیات آب دوست بودن آن ها را نشان می دهد[6]. به دلیل استفاده گسترده و قابلیت جذب بالاتر، حضور آنتی‌بیوتیک‌های تتراسایکلین در ماتریکس های مختلف زیست محیطی از جمله آب سطحی،آب زیر زمینی[7]، فاضلاب شهری[8و9]، خاک و رسوبات[3،10،11] گزارش شده است. بنابر این واحدهای متداول تصفیه فاضلاب توانایی حذف کامل این میکرو آلاینده ها را ندارند. راند مان حذف تتراسایکلین در واحد های تصفیه فاضلاب از ۱۲٪ تا ۸۰٪ متغییر است[12و13]. با توجه به خطرات ناشی از حضور این آنتی بیوتیک ها در اکوسیستم، ضورت توسعه فرایندهای تصفیه موثر و کارآمد برای حذف این ترکیبات از آبهای آلوده و به حداقل رساندن خطرات زیست محیطی آنها احساس می شود.

فرایندهای متعارف تصفیه آب و فاضلاب برای حذف مقادیر جزئی مواد شیمیایی از قبیل آنتی‌بیوتیک‌ها طراحی نشده اند و با توجه به افزایش تعداد گزارش ها از وجود این ترکیبات در محیط زیست، توسعه فرایندهای تصفیه موثر، کارآمد و مقرون به صرفه برای حذف این ترکیبات از آبهای آلوده و به حداقل رساندن خطرات زیست محیطی آنها از اهمیت بیشتری برخوردار است[14].

در تصفیه خانه های فاضلاب عمدتا فرایند های بیولوژیکی، فیلتراسیون/ انعقاد/لخته سازی/ته نشینی به کار می روند. در بین سیستم های بیولوژیکی فناوری لجن فعال در سطح وسیعی به ویژه در تصفیه پساب صنایع به کار رفته است.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

سمیت بالای بسیاری از ترکیبات از کاربرد این فرایند در پساب های با غلظت بالای آلاینده ها جلوگیری می کند. بهر حال فرایند لجن فعال برای نرخ های بالای جریان پساب قابل کاربرد است و این روش بیشتر در مواردی که میزان دبی فاضلاب بالاست استفاده می شود در ده سال اخیر فرایندهای متداول متعددی در حذف آنتی‌بیوتیک‌ها از ماتریس های زیست محیطی مورد بررسی قرار گرفته است. در مواقعی که سمیت این آلاینده ها بر روی میکرو ارگانیسم های موجود در سیستم های بیولوژیکی خیلی ناچیز باشد، روش های بیولوژیکی می تواند بهترین گزینه برای حذف آنتی بیوتیک باشد. کاربرد فرایند بی هوازی در حذف آنتی‌بیوتیک‌های ماکرولید و تتراسایکلین توسط محققین متعددی مورد بررسی قرار گرفته است. نتایج این مطالعات راندمان حذف بالای این آلاینده ها (۹۰ ٪ برای ماکرولیدها و ۷۵٪ برای تتراسایکلین ها) را نشان داده است. مطالعات متعدد دیگری کارایی فرایند تصفیه سنتی اولیه و ثانویه بکار رفته در تصفیه خانه های فاضلاب را در حذف ترکیباتی از قبیل ماکرولید، سولفونامید و تری متوپریم مورد بررسی قرار داده اند که نتایج این مطالعات نشان دهنده راندمان حذف پایین حداکثر ۲۰ درصد بوده است. همچنین بررسی ها نشان داده است که فرایندهای فیزیکو شیمیایی از قبیل انعقاد و لخته سازی و فیلتراسیون می توانند حداکثر تا ۳۰ درصد آنتی‌بیوتیک‌ها را از محیط های آبی حذف کنند. از این رو به دلیل راندمان پایین روش های متداول و نیز غیر عملی بودن کاربرد این فرایند ها، گزینه ها و فرایندهای جدیدی مورد مطالعه قرار گرفته است[۱۴].

کیتین یک موکوپلی ساکارید بوده که به وفور در اسکلت خارجی بندپایان مانند میگو، خرچنگ و همچنین گیاهان پست از قبیل مخمرها یافت می شود. این ترکیب برای اولین بار توسط براکونوت در سال ۱۸۱۱ تشریح شد. کیتوزان تجاری از اسکلت خارجی بندپایانی مانند میگو استخراج می شود.

اخیرا تولید بیو پلیمرها به دلیل عدم سمیت در محیط، در دسترس بودن و هزینه پایین آنها، به عنوان ابزاری برای جذب عناصر سنگین مورد توجه اکثر محققان قرار گرفته است. کیتوزان پلیمری آب دوست و کاتیونی است که از حذف گروههای استیل کیتین در محیط بازی بدست می آید. کیتین بعد از سلولز فراوان ترین پلیمر زیستی در طبیعت است. کیتوزان بواسطه جذب، تبادل یونی و لخته شدن قادر با ترکیب با یونهای فلزی است. به همین خاطر به طور گسترده ای برای جذب یونهای فلزات سنگین استفاده شده است. کیتوزان با فرآیندهای فیزیکی و شیمیایی، به منظور تهیه مشتقات کیتوزان (بدست آوردن گروههای عاملی پیوندی جدید) یا تغییر در وضعیت پلیمر (تهیه غشا، بید، نانو ذرات، پودر و فیبر) اصلاح شده است[۱۵و۱۶].

این فرآیندها برای کنترل واکنش پذیری پلیمر یا بالا بردن سیتیک جذب استفاده شده است. کنترل وضعیت پلیمر به منظور طراحی فرآیند جذب مفید است. ویژگی منحصر بفرد نانو ذرات از جهت اندازه کوچک و مساحت سطح زیاد، ظرفیت جذب بالایی برای یونهای فلزی ایجاد کرده است. جذب یونهای اورانیوم، نیکل، وانادیم، کروم، کادمیوم و مس با کیتوزان مطالعه گردیده است این تحقیقات نشان دادند که کیتوزان میتوانند به عنوان جاذب بواسطه وجود گروههای آمین و هیدروکسیل به عنوان مکان های کی لیت کننده در حذف فلزاهای سنگین استفاده گردد[۱۵،۱۸و ۱۷].

هدف این مطالعه، تعیین کارایی جاذب نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی-متالیک در حذف آنتی بیوتیک تتراسایکلین از محلولهای آبی سنتز جاذب نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی – متالیک می باشد.

مواد و روش‌ها

۱- سنتز نانوکامپوزیت

- سنتز نانوذرات مغناطیسی:

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

ابتـــدا ۰/۷۹ گـــرم از FeCl2 را در ۲mL محلـــول اسیدکلریدریک ۲ مولار حل نموده تـا محلـول زرد رنگـی بـه دسـت آیـد. مقـدار ۱/۳۹ گـرم از FeCl3 در mL ٤ محلـول اسیدکلریدریک ۲ مولار حل نموده تا محلـول نـارنجی رنـگ بدست آید. سپس mL ۱ از محلول اول را با mL ٤ از محلـول دوم مخلوط کرده وmL ۷۰ محلـول آمونیـاک ۱/۵٪ را قطـره قطره اضافه نموده تا محلول به صورت سیاه رنگ در آیـد. در نهایت ذرات بدست آمده را سه بـار بـا متـانول ۹۸٪ شستشـو داده و در نهایت باmL ۵۰ متانول در داخل اولتراسونیک قـرار داده شد تا ذرات از هم جدا گردند.

۲- تهیه کیتوزان مغناطیسی شده

۳ گـرم از پـودر کیتـوزان را درmL ۱۰۰ محلـول ٤٪ اسیداستیک به مدت ۱ ساعت حل نموده، ۸ گرم از نـانوذرات مغناطیسی را به محلول کیتوزان اضـافه نمـوده و بـه مـدت ۳ ساعت همزده شـد. محلـول کیتـوزان بدسـت آمـده را در بـه صورت قطره ای در محلول ۲ مولار NaOH ریخته تا گرانولها شکل گرفته و به مدت ۲٤ ساعت در دمای ٤ درجه سانتیگراد قرار گرفت. سپس، گرانولها چندبار با آب مقطر شستشو شـده و به مدت ۲٤ ساعت به ترتیب در محلول ۲/۵ ٪ گلوتارآلدئید و محلول ۱٪ AlCl3 قرار گرفت. در نهایت، گرانولهـا چنـدبار شستشو شده و استفاده شد.

۳ -انجام آزمایشات

در این مطالعه، روش محاسبه حجم نمونه بر مبنـای روش یک فاکتور در زمان بود. دما (۲۰، ۳۰ و ٤۵ درجه سانتی گراد، pH (۸-۵)، غلظت جاذب (۵- ۱ گرم بر لیتـر)، زمـان تمـاس (۱۰ سطح)، غلظـت آلاینـده (۳۰- ۵ میلـی گـرم بـر لیتـر) و غلظت یونهای مداخله گر (برحسب غلظت در آبهای طبیعـی) بود. داده های بدست آمده توسط آزمونهای آماری نـرم افـزار SPSSو Design Expert مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت.

جهـت بررسـی ایزوتـرم فرآینـد جـذب از ایزوترمهـای لانگمویر، فروندلیخ و تمکین استفاده شد. برای تعیـین درجـه واکنش و ترمودینامیک فرآینـد از روشـهای آزمـون مشـخص استفاده شد.

یافته‌ها

-نتایج مربوط به ویژگی های جاذب

آنالیز SEM مربوط به کیتوزان، نـانو ذرات اکسـید آهـن و نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بـی متالیـک در شـکل شماره شکل ۱ قابل مشـاهده اسـت. همانگونـه کـه در شـکل مشاهده می شود نانو ذرات اکسید آهن تماما به صورت گلوله مانند (ball-like) با قطر حدود ۲۵ تا ٤۰ نانو متر تشکیل شـده است. بر اساس شواهد می تـوان دریافـت کـه کیتـوزان دارای تخلخل قابل ملاحظه ای در سطح خـود نمـی باشـد کـه ایـن موضوع یک امتیاز منفی در فرایند جذب می باشد زیرا سـطح تماس آلاینده با جاذب را کاهش می دهد. این در حالی اسـت که پس از بهینه سازی کیتوزان ما شاهد این موضوع بودیم کـه نانو کامپوزیـت کیتـوزان مغناطیسـی شـده بـی متالیـک دارای شکلی ما بین کیتوزان و نانو ذرات اکسید آهن بوده و به شکل متخلخل، نامنظم و دانه ای تبدیل شده اسـت. محققـان علـت تغییر شـکل در کیتـوزان خـالص را پیونـد و واکـنش GA بـا کیتوزان مغناطیسی می دانند. با دقت به آنالیز SEMمربوط بـا سطح نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک، ذرات سفید و براقی قابل در سـطح جـاذب قابـل رویـت اسـت کـه ذرات گواهی بر حضور نانوذرات Fe3O4 می باشد.

از طـرف دیگـر، الگـوی XRD مربـوط بـه کیتـوزان، نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک در محـدوده زاویه°۸۰-۵= θ ۲ با استفاده از تابش Cu kα در دمای اتاق در شکل شکل۱-د مشاهده می شود. طیف وسیع و پهن پـراکنش اشعه ایکس درθ۲ برابر ۲۰. °۲ به وضوح نشان دهنده کیتوزان

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

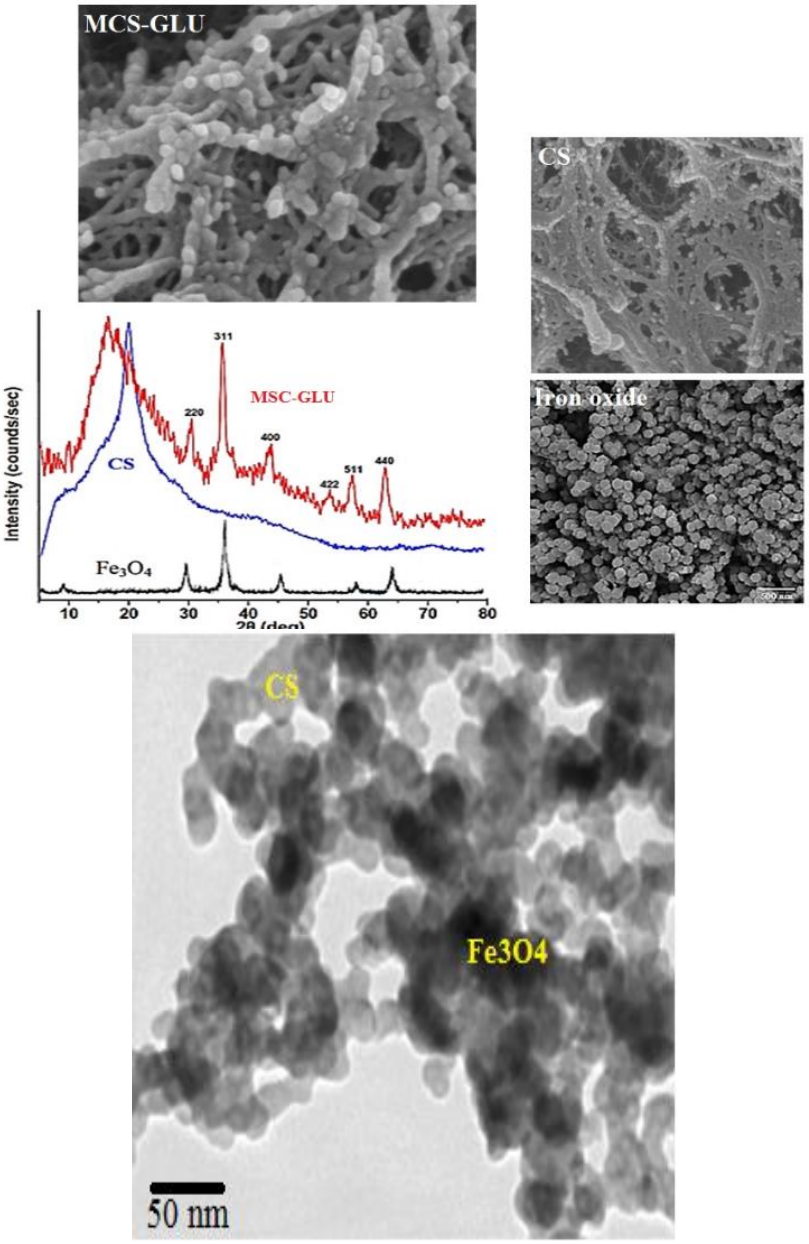
می باشد. شش پیک ایجاد شده در 2θ برابر ۳۰/۱، ۳۵/۵، ۴۳/۳، ۵۳/٤، و ٦۲/۵ درجه حضور ذرات اکسید آهن و آلومینیوم (۵۵/۲۸) را تایید می کند. با توجه به این که تمامی پیک های مذکور در ساختار نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک نیز قابل مشاهده است. می توان اذعان داشت نانو ذرات اکسید آهن به صورت موفقیت آمیزی سنتز و بر روی کیتوزان نشانده شده است. البته پیک مربوط به کیتوزان خالص نیز در جاذب مورد مطالعه در مطالعه حاضر قابل رویت است که این موضوع بر این امر دلالت دارد که ساختار کیتوزان در طول فرایند کراس لینکینگ و مغناطیسی سازی تغییر نکرده است.

آنالیز FTIR مربوط به کیتوزان و نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک در محدوده ٤۰۰ تا ٤۰۰۰ cm^{-1} با شکل(۱-خ) به نمایش گذاشته است. در طیف مربوط به کیتوزان پیک ایجاد شده در ۳٤٦۸ cm^{-1} مربوط به ارتعاش کششی O–H و N–H می باشد[۱۹]. همچنین، پیک های حاصل در ۱٦۲۷ و ۱۵۰۱ cm^{-1} به ترتیب حضور باند C = O مربوط به امین های گروه اول (NHCO) و N–H در ساختار کیتوزان را نشان می دهد. حضور باند هایC–H ، C–Nو O-H نیز به ترتیب از طریق پیک های ۲۹۲۲، ۱۲۱۷ و ۱۰۹٦ cm^{-1} قابل شناسایی وگزارش می باشد[۲۰]. تمامی پیک های موجود در کیتوزان در ساختار نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک دیده می شود (با تغییرات بسیار جریی)، ولی پیک جدیدی در ۵۷۰ cm^{-1} می باشد که در ساختار کیتوزان خالص قابل رویت نیست. این پیک مربوط به باند Fe–O می باشد و سنتز موفقیت آمیز نانوذرات Fe3O4 و تثبیت آن را در ساختار کیتوزان را بیان می کند. نتایج این آنالیز با آنالیز XRD کاملا هم خوانی دارد.

شکل شماره (۱-ه) آنالیز TEM را برای نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک در 100 KeV به تصویر کشیده است. بر اساس این آنالیز می توان دریافت که جاذب سنتز شده شامل ۲ بخش است، یک بخش با رنگ تیره تر و بخش دیگر با رنگ روشن تر که بخش تیره را احاطه کرده است. بخش تیره رنگ نشان دهنده نانو ذرات Fe3O4 و بخش روشن تر حضور کیتوزان را تایید می کند. علت تیره بودن نانو ذرات اکسید آهن نسبت به کیتوزان، تراکم و دانسته بالای نانو ذرات Fe3O4 نسبت به CS است. بر اساس آنالیز TEM، ساختار هسته- پوسته جاذب سنتز شده با قطر ٦۰ تا ۸۰ نانومتر به وضوح قابل تشخیص است. علاوه بر موارد فوق، بر اساس آنالیز مذکور می توان دریافت که نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک دارای ساختار در هم پیچیده و نامنظمی بوده و فاصله بین نانو ذرات تشکیل دهنده آن بسیار کم است، که این موضوع می تواند کمک شایانی به افزایش میزان جذب PG نماید.

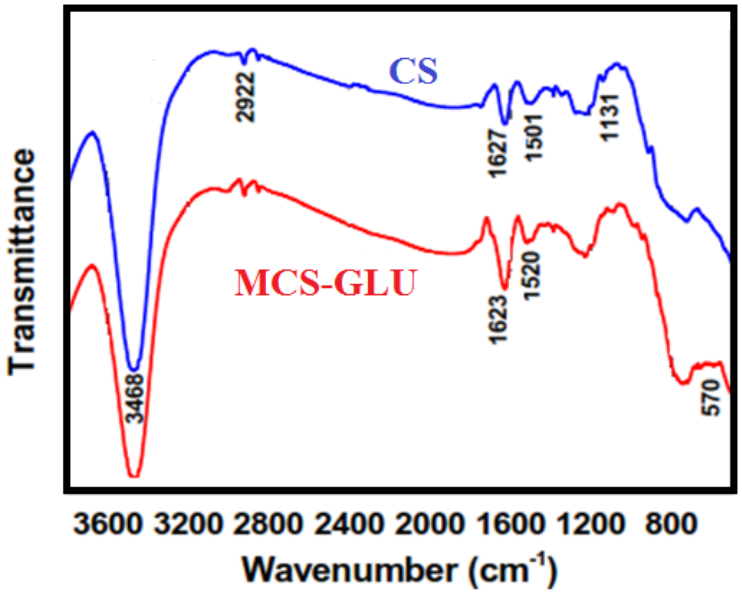
[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]



[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]



شکل(۱-الف): آنالیز SEM برای کیتوزان استخراج شده از پوسته میگو

شکل(۱-ب): نمایش مرفولوژی سطحی کیتوزان مغناطیسی شده،

شکل(۱-ج): آنالیز SEM برای نانو ذرات اکسید آهن

شکل(۱-د): پراش اشعه ایکس برای کیتوزان و کیتوزان مغناطیسی شده در محدوده زاویه80 o تاه 2θ= با استفاده از تابش Cu kα در دمایoC25

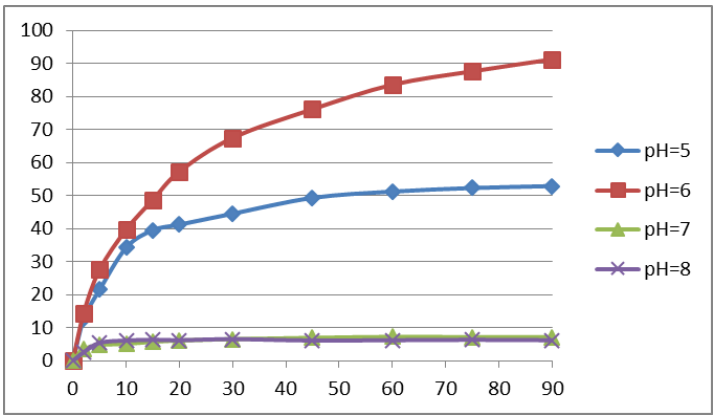
شکل(۱-ه): اندازه و شکل نانو ذرات فلزی Fe3O4 نشانده شده بر روی کیتوزان به وسیله میکروسکوپ الکترونی انتقالی (TEM) درKeV100.

شکل(۱-خ): آنالیز FTIR نمونه های مورد مطالعه

آمده است. بیشترین راندمان حذف در زمان ۹۰ دقیقه و برابر ۹۱/۲۳٪ بدست آمد. همچنین در pH های قلیایی راندمان حذف تتراسایکلین به شدت کاهش یافت.

-تاثیر pH

در شکل ۲، نتایج مربوط به تاثیر pH بر روی جذب آلاینده تتراسایکلین توسط نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک ارائه شده است. همانطور که ملاحظه می شود، بهترین راندمان حذف آنتی بیوتیک در pH ٦ =بدست



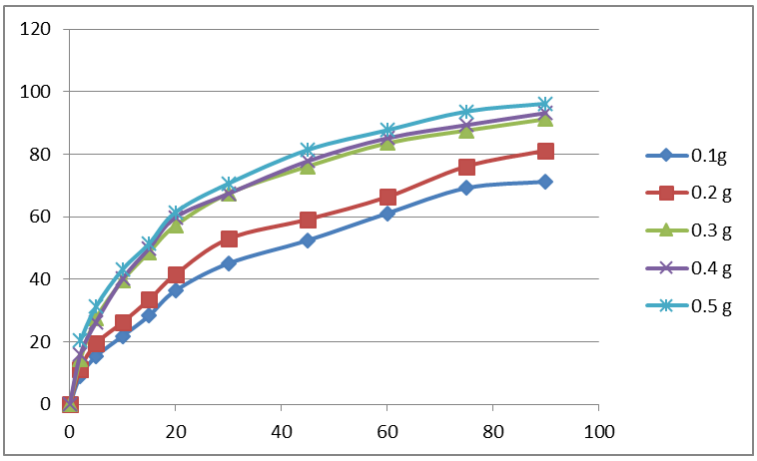
شکل ۲: بررسی تاثیر متغیر pHبر راندمان حذف آلاینده تتراسایکلین توسط نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

-تاثیر غلظت جاذب

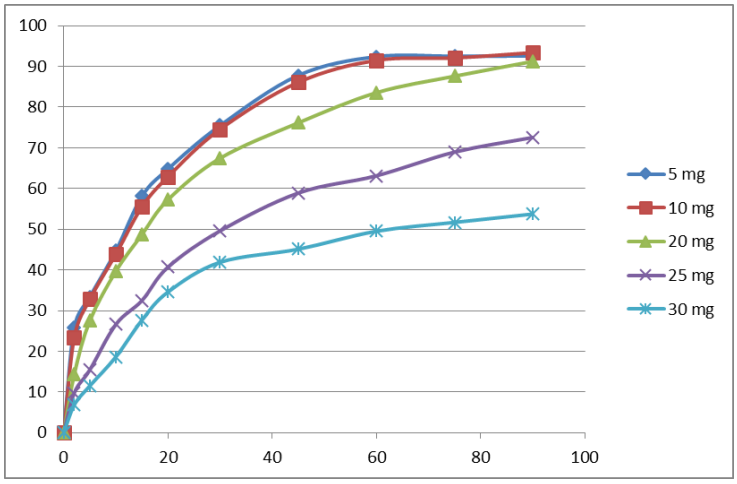
نمودار ۳، تاثیر دوز جاذب بر راندمان حذف آلاینده تتراسایکلین توسط نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک را نشان می دهد. همانطور که ملاحظه می گردد با افزایش دوز جاذب از ۰/۵ g/L–۰/۱، راندمان حذف آلاینده افزایش یافت و در زمان ۹۰ دقیقه، از ۷۱/۲٤٪ به ۹٦/۲٪ رسید.



شکل ۳: بررسی تاثیر متغیر دوز جاذب نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک بر راندمان حذف آلاینده تتراسایکلین

-تاثیر غلظت آلاینده

نمودار ٤، تاثیر تغییر غلظت آلاینده تتراسایکلین بر راندمان حذف آلاینده توسط جاذب نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک نشان می دهد. با افزایش غلظت آلاینده بین mg/L ۳۰–۵، راندمان حذف آلاینده از ۹۳/٤٪ به ۵۳/۷٪ کاهش یافت.



شکل ٤: بررسی تاثیر متغیر غلظت آلاینده تتراسایکلین بر راندمان حذف آلاینده توسط نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک

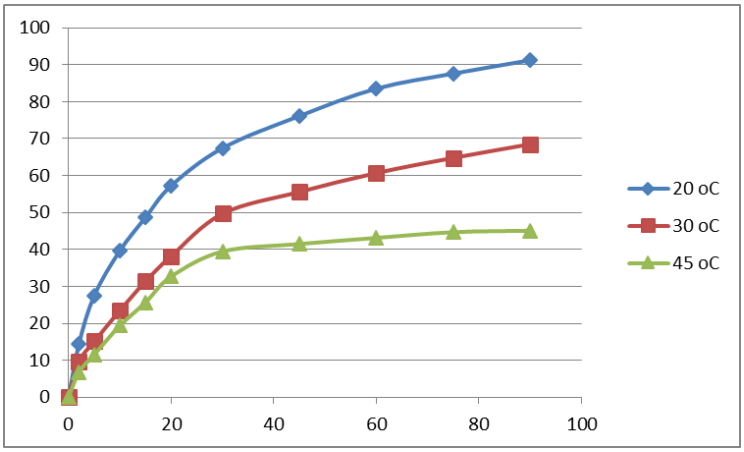
-تاثیر دما

به منظور بررسی ترمودینامیک فرآیند جذب آلاینده تتراسایکلین توسط نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک، راندمان حذف آلاینده در دماهای ۲۰، ۳۰ و ٤۵ درجه بررسی شد. با توجه به نمودار ۵، نتایج نشان داد که با افزایش

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

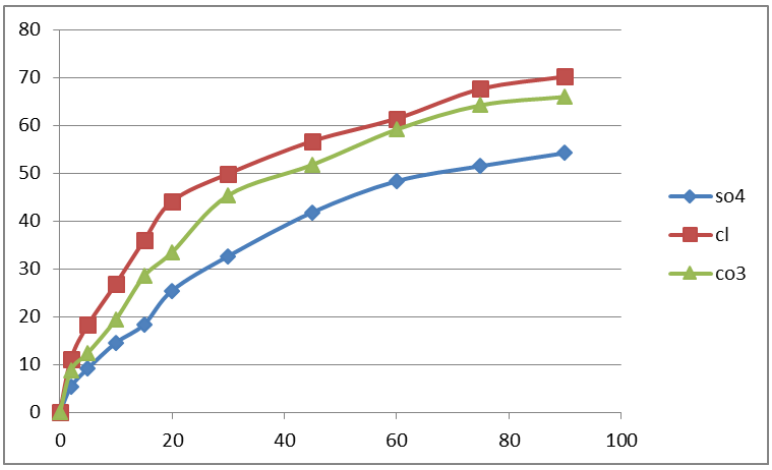
دما، راندمان حذف آلاینده از ۹۱/۲۳٪ به ٤٥/١٪ کاهش یافت.



شکل۵: بررسی تاثیر دما بر راندمان حذف آلاینده تتراسایکلین توسط نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک

-تاثیر یونهای مداخله گر

در نمودار ٦، تاثیر یونهای مداخله گر سولفات، کلرور و کربنات (با غلظت ۱/۵ mM) بر حذف آلاینده تتراسایکلین توسط جاذب نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک، نشان داده شده است. همانطور که ملاحظه می گردد، حضور یونهای مداخله گر دارای اثر کاهشی بر راندمان حذف آلاینده تتراسایکلین داشته که راندمان حذف از ۹۱/۲۳٪ در زمان ۹۰ دقیقه (در حالت بدون حضور یونها) به ۷۰/۱۸٪ (برای یون کلرور)، ٦٥/٩٦٪ (برای یون کربنات) و ٥٤/٢٪ (برای یون سولفات) گردید.



شکل ۶: بررسی تاثیر حضور یونهای مداخله گر بر راندمان حذف آلاینده تتراسایکلین توسط نانو کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک

بحث

-تاثیر pH

تغییرات **pH** نقش مهمی را در کل فرایند و ظرفیت جذب ناشی از تاثیر آن بر روی بار سطحی جاذب، درجه یونیزاسیون مواد موجود در محلول، تفکیک گروه های عاملی موجود در مکان های فعال و همچنین شیمی محلول دارد[۲۲و۲۱]. **pH**می تواند تاثیر زیادی را در حذف مواد آلی و غیر آلی از محلول های آبی ایفا نماید[۲۳]. بنابراین **pH** میزان یونیزاسیون مولکول

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

بتالاکتام را تعیین می کند، در نتیجه بر میل بتالاکتام ها به جذب بر روی جاذب ها موثر است. در کل همانطور که گفته شد شدت جذب به شدت وابسته به **pH** فاز آبی است و این وابستگی مربوط به نوعی از مدل جذب خنثی و بی طرف برای همه جاذب ها و مواد جذب شونده است[۲۴]. **pH**محلول وضعیت موجود آنالیت ها را تعیین می کند و آنالیت ها می توانند تنها در فرم مولکول جذب شوند، بنابراین **pH** محلول راندمان استخراج آنالیت هدف را تعیین می کند. مطالعات نشان داده است که کاهش و افزایش راندمان حذف آنتی بیوتیک ها در **pH** های اسیدی و قلیایی را می توان به دو پارامتر **pH** نقطه صفر یا پیزومتریک جاذب **(PHPZC)** و ثابت تجزیه اسیدی **(pKa)** نسبت داد [۲۵].

pH نقطه صفر یکی از مهمترین پارامترهایی است که در فرآیند های جذب مورد استفاده قرار می گیرد. **pHPZC**نشان دهنده نقطه ای است که در آن بار در سطح ماده جاذب صفر می باشد و در **pH** های بالاتر از آن، سطح جاذب دارای بار منفی بوده و در پایین تر از آن، سطح جاذب دارای بار مثبت می باشد. **pH**نقطه صفر سطح جاذب درواقع تعداد مساوی از سایت هایی با بار منفی و بار مثبت بروی سطح جاذب است[۲۶]. همچنین مقدار **pHpzc** جاذب نقش مهمی در تعیین خواص سطحی جاذب دارد [۲۷]. در مطالعه حاضر با توجه به نتایج بدست آمده از آزمایشات انجام شده بهترین جذب در **pH=**٦ صورت گرفت.

در مطالعه **Parolo** و همکاران، بیشترین راندمان حذف تتراسایکلین توسط جاذب **montmorillonite** در**pH=**٥ بدست آمد. در مطالعه **Huang** و همکاران بر روی جذب تتراسایکلین توسط پلیمر کیتوزان/گرافن، مشخص گردید که بیشترین راندمان حذف در **pH=**٦ بدست آمده است [۲۸]. در مطالعه ژائو یانپینگ و همکارانش بر روی حذف تتراسایکلین توسط فرایند جذب بر روی ژوئتیت در سال ۲۰۱۱، **PH**بهینه ٤-٥ بود[۲۹].

در مطالعه حاضر **pH** نقطه صفر سطح نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی بی متالیک برابر ٦/۲ بود. در مطالعه پورتدال و همکارانش بر روی حذف آموکسی سیلین، سفالکسین و تتراسایکلین از طریق فرایند جذب در سال ۲۰۱٤ نیز بالاترین حذف برای همه ترکیبات آنتی بیوتیک در نمونه ها در **pH** برابر با ۲ (اسیدی) دیده شد[۲۷]. با کاهش **pH** کارایی فرایند جذب سطحی (که به دلیل افزایش یون H^+ بر روی سطح جاذب که در محیط های اسیدی اتفاق می افتد) افزایش می یابد. دلیل این امر به خاطر ساختار شیمیایی جاذب و جذب شونده مورد مطالعه است. در محلول های آبی سطح جاذب دارای یون های Al^{3+} خواهد بود از طرفی دیگر در نتیجه حل شدن آنتی بیوتیک مورد مطالعه در محیط های آبی گروه عاملی منفی تولید می شود و جذب با استفاده از باند شدن گروه های منفی و Al^{3+} صورت خواهد گرفت. در محیط های اسیدی و در حضور یون H^+ گروه های Al^{3+} در سطح جاذب با گرفتن پروتون از هیدروژن **(H+)** تبدیل به گونه های آلومینیوم **(A^{l3+})** خواهند شد که این امر باعث افزایش یون های منفی چسبیده شده جذب شونده بر روی سطح جاذب خواهد شد[۳۰]. پس زمانی که **pH** محیط اسیدی می باشد، سطح جاذب توسط یون های H^+بمباران می شود. پس این نوع سطح برای جذب یون های دارای بار منفی بسیار مناسب می باشد[۳۱]. دلیل دیگر مدعی بر این موضوع این است که سطح جاذب در**pH** هایی بالاتر از **pH** نقطه صفر، بار منفی داشته و گروه های عاملی منفی آنتی بیوتیک از سطح جاذب دفع می شوند. در مقابل در **pH** هایی کمتر از **pH** نقطه صفر بار مثبت داشته و باعث جذب این یون ها می شود. از طرفی کاهش حذف آنتی بیوتیک در محیط های قلیایی می تواند ناشی از شباهت شعاع اتمی و بار یون های آنتی بیوتیک و یون های هیدروکسید و در نتیجه رقابت آن ها در جذب بر سطح جاذب باشد.

-تاثیر غلظت آنتی بیوتیک تتراسایکلین

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

غلظت اولیه آنتی بیوتیک نیروی پیشبردی مهمی برای غلبه بر مقاومت انتقال جرم بین فاز آبی و فاز جامد فراهم می کند[۲۵]. در مطالعه حاضر با افزایش غلظت آنتی بیوتیک تتراسایکلین از **mg/L** ۳۰-۵ میزان راندمان حذف کاهش یافت. با افزایش غلظت آلاینده بین **mg/L** ۳۰-۵، راندمان حذف آلاینده از ۹۳/٤٪ به ۵۳/۷٪ کاهش یافت. با افزایش غلظت اولیه آنتی بیوتیک تعداد مکان های فعال جذب بر روی سطح جاذب و کارایی حذف کاهش می یابد[۳٤-۳۲]. علاوه براین با توجه به یکسان بودن سایر پارامترها، کاهش راندمان در مقابل افزایش غلظت را می توان بدین صورت توجیه کرد که نظر به اینکه در تمامی غلظت ها، سایر پارامترهای مورد نظر یکسان می باشند، بنابراین راندمان حذف آنتی بیوتیک در غلظت های کمتر، بیشتر خواهد بود. در مطالعه **Zhang** و همکاران در حذف آلاینده تتراسایکلین توسط کامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده، مشخص گردید که در غلظت آلاینده **mg/L 100** و دوز جاذب **5 g/L** ، راندمان حذف آلاینده به ٤۲٪ رسید. همانطور که گفته شد محل های جذب بر روی سطح جاذب در لحظات اولیه به سرعت توسط آلاینده اشغال می شود. به همین دلیل از این پس جذب آلاینده در داخل منافذ جاذب صورت می گیرد و سرعت جذب نیز کاهش می یابد[۳۰]. در مطالعه پورتدال و همکارش بر روی حذف آموکسی سیلین، سفالکسین، تتراسایکلین و پنی سیلین توسط نانولوله های کربن فعال در سال ۲۰۱٤ نیز راندمان حذف آنتی بیوتیک با افزایش غلظت آنتی بیوتیک کاهش یافت. و علت این امر را به این صورت بیان نمود که تمام جاذب ها تعداد محدودی سایت فعال دارند و در برخی غلظت ها این سایت ها اشباع می شود[۲۷].

-تاثیر یون های مداخله گر

فاضلاب های صنعتی و آب های طبیعی حاوی انواع مختلفی از نمک ها هستند که ممکن است بر روی فرایند جذب سطحی موثر واقع شوند. بنابراین ارزیابی اثر یون های مداخله گر بر حذف آلاینده ها از محلول های آبی بسیار اهمیت دارد[۳۵].

- **تاثیر کربنات**

در مطالعه حاضر کربنات باعث کاهش اندک راندمان حذف شد. برخی آنیون ها میل به تشکیل کمپلکس دارند که این کمپلکس می تواند به صورت غیر قابل حل و یا محلول در آب باشد و باعث ایجاد مشکل در عمل جذب شود. طبق مطالعات انجام شده به دلیل اینکه فلزات قلیایی تک ظرفیتی مثل سدیم نمی توانند بر روی مواد، متصل و باند شوند پس بر روی جاذب متصل نشده تاثیری بر روی عمل جذب ندارند و مزاحمتی ایجاد نمی کنند پس آنیون ها به صورت نمک سدیم وارد محلول شدند[۳۷و۳۶]. علاوه بر این کربنات موجود در محلول ممکن است که با هیدروژن موجود در محلول در شرایط اسیدی ترکیب شده و تولید بی کربنات کند که بیکربنات دارای خاصیت بافری می باشد؛ وجودش در محلول باعث افزایش **pH** می گردد بنابراین با افزایش **pH** ، بار سطح جاذب منفی شده و باعث رانده شدن ملکول های تتراسایکلین با بار منفی از سطح جاذب و کاهش جذب می گردد. همانطور که گفته شد یکی از دلایل اثر نامطلوب آنیون های کربنات ممکن است افزایش **pH** محلول پس از افزایش آنیون های کربنات باشد. در این رابطه، آنیون کربنات **pH** محلول را افزایش می دهد و سپس بار سطح جاذب را تحت تاثیر قرار می دهد و جذب کاهش می یابد. در مطالعه حاضر با حضور یون کربنات در غلظت **mM** ۱/۵، راندمان حذف تتراسایکلین توسط جاذب از ۹۱/۳٪ تا حدود ٤۰ ٪ کاهش یافت. در حالی که وقتی غلظت کربنات بالاتر رفت تاثیر آن بر روی جذب کمتر شد. در مطالعه محمد مهدی سوری و همکارانش بر روی حذف تتراسایکلین توسط فرایند جذب در سال ۲۰۱٦ نیز به همین نتایج دست یافتند[۲۱]. بنابراین کربنات باعث کاهش جذب می شود. حتی در غلظت های ضعیف کربنات یک یون مهار کننده برای فرایند جذب است. زیرا باعث

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

تشکیل کمپلکس با سطح جاذب (با بار مثبت) می شود که این کمپلکس بسیار پایدار است و مانع از جذب تتراسایکلین می شود. در هنگام حضور یون کربنات فرایند جذب، تبادل یونی و تشکیل کمپلکس، پدیده های اصلی درگیر در جذب بر روی جاذب مورد نظر بودند. تقابل یون های موجود در محلول با جاذب بستگی به کلاته شدن شیمیایی درونی سایت های فعال بر روی جاذب داشت. یون های موجود در محلول با روش های مختلفی می توانند با جاذب جذب بین کلاته ای یا میان کلاته ای تشکیل دهند. یکی از عوامل مهم، ابعاد و گروه های عاملی از مولکول های مهمان است. به جز این، تعداد ترکیبات دیگر (تک لایه، دو لایه)، اندازه، و جهت گیری یون های موجود در محلول و همچنین تعامل بین یون ها با بار منفی و جاذب با بار مثبت هم بطور قابل ملاحظه بر تعامل بین جاذب و جذب شونده تاثیر داشت[۲۱]. طبق نتایج بدست آمده از آزمایشات مربوط به این مطالعه نتایج بدست آمده با نتایج مطالعات مشابه مطابقت دارد.

- **تاثیر یون سولفات**

در مطالعه حاضر حضور آنیون های سولفات باعث کاهش راندمان جذب تتراسایکلین بر روی جاذب شد. راندمان حذف آلاینده تتراسایکلین با در حضور یون سولفات (غلظت **mM** ۱/۵) به حدود ٥٤٪ کاهش یافت. علت این موضوع می تواند رقابت بین آنیون های سولفات و تتراسایکلین با بار منفی برای جذب بر روی جاذب باشد. بنابراین در مطالعه حاضر با افزایش غلظت سولفات میزان جذب کاهش یافت. کاهش مقدار جذب با افزایش مقدار یون سولفات به این علت است که یون سولفات باعث کاهش تعامل الکترواستاتیک بین تتراسایکلین و جاذب می شود. می توان از نتایج چنین استنباط کرد که هنگامی که غلظت یون سولفات به اندازه کافی بالا رفت، تعامل الکترواستاتیک جزئی شد یا به طور کامل حذف شد و سپس تعامل پیوند هیدروژنی بین تتراسایکلین و جاذب یک عامل مهم برای جذب بود، در نتیجه مقدار جذب تقریبا یک مقدار ثابت نگه داشته شد[۲۲]. در کل، تعامل قابل توجهی بین تتراسایکلین و سولفات رخ نداد. تشکیل کمپلکس آنیون ها با ترکیبات آلی معمولا توسط ماتریکس آب تحت تاثیر قرار می-گیرد. آنیون های آزاد در آب کمپلکس هایی تشکیل می دهند پس از آن، هر واکنش پیچیده در آب یک واکنش لیگاند است که با جا به جا شدن در آب انجام می شود، این اتفاق به وسیله آنیون های ساده مانند هالیدها و آنیون های معدنی پیچیده تر مانند کربنات، نیترات و سولفات صورت می گیرد. کاهش راندمان حذف تتراسایکلین در حضور سولفات ممکن است به این دلیل باشد که سولفات با یک آنیون موجود در جاذب ممکن است جابه جا شود و در نتیجه می تواند باعث کاهش ظرفیت جذب جاذب شود. علاوه بر این، سولفات ممکن است با یون های فلزی در سطح جاذب تداخل کند. این پدیده نیز ظرفیت جذب را کاهش می دهد. در مطالعه ای محمد مهدی سوری و همکارانش بر روی حذف تتراسایکلین توسط فرایند جذب در سال ۲۰۱٦ نیز به همین نتایج دست یافتند[۲۱]. طبق نتایج بدست آمده از آزمایشات مربوط به این مطالعه نتایج بدست آمده با نتایج مطالعات مشابه مطابقت دارد.

- **تاثیر یون کلرور**

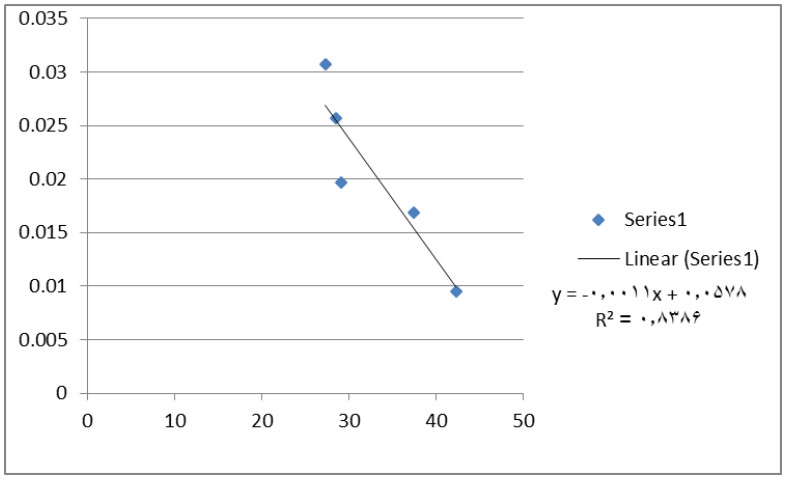
یون کلرور به دلیل دارا بودن بار منفی، تاثیر مشابه یونهای سولفات و کربنات را دارد. اگرچه به دلیل اینکه پتانسیل اکسیداسیون/احیا آن از یونهای سولفات و کربنات پایین تر است، اثر مداخله گری کمتری نسبت به یونهای دیگر دارد. در این مطالعه، در غلظت **mM 1. 5** یون کربنات، راندمان حذف تتراسایکلین از ۹۱/۳٪ به حدود ۷۰٪ رسید که به دلیل رقابت یون کلرور و آلاینده تتراسایکلین می باشد. در مطالعه ای محمد مهدی سوری و همکارانش بر روی حذف تتراسایکلین توسط فرایند جذب در سال ۲۰۱٦ نیز به همین نتایج دست یافتند[۲۱]. طبق نتایج بدست آمده از آزمایشات مربوط به این مطالعه نتایج بدست آمده با نتایج مطالعات مشابه مطابقت دارد.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

-ایزوترم جذب

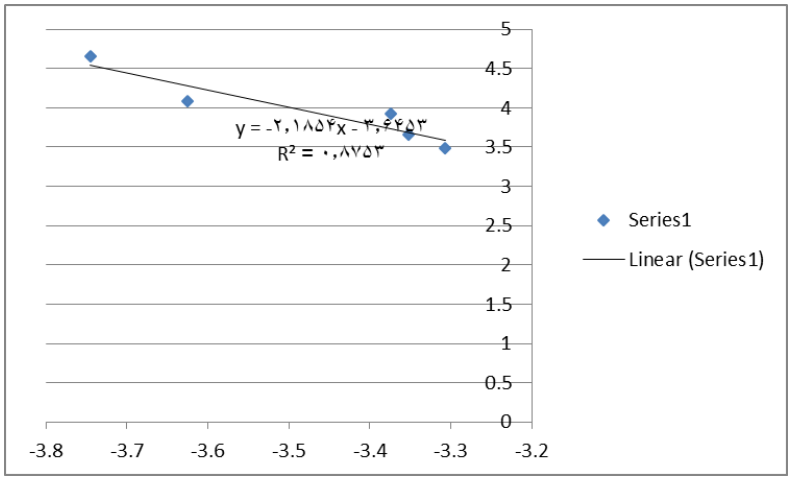
به منظور تعریف ایزوترم جذب، مقدار آنتی بیوتیک باقی مانده در محلول در نقطه تعادل، بعد از هر سیکل جذب، به عنوان تابعی از جذب آنتی بیوتیک بر روی جاذب گزارش شد[۳۸]. بنابراین اندازه گیری تعادل جذب برای تعیین حداکثر ظرفیت جذب و یا ظرفیت جذب نهایی مورد استفاده قرار گرفت[۲۷]. ایزوترم یک فاکتور بسیار تاثیرگذار در طراحی سیستم های جذب است. در حقیقت ایزوترم های جذب چگونگی فعل و انفعال بین جاذب و جسم جذب شونده را تشریح می کنند. بنابراین در بهینه نمودن مصرف یک جاذب و تعیین میزان ظرفیت یک جاذب نقش بسیار مهمی دارند[۲۶]. لانگمویر جذب تک لایه ای بر روی سطح همگن است که از رسم نمودار **Ce/qe**در مقابل **Ce** بدست می آید و فرندلیخ جذب چند لایه ای بر روی سطح ناهمگن است (که در آن مواد شیمیایی در ابتدا با سطح جاذب و پس از آن با یکدیگر واکنش می دهند و در یک سطح ناهمگن از نظر انرژی اتفاق می افتد) که از رسم نمودار **Ce** در مقابل **qe** بدست می آید. و جذب تعادلی را توصیف می کند[۳۹]. در مدل لانگمیر فرض بر این است که ظرفیت جذب محدود وجود دارد و سطح جاذب تنها می تواند با تک لایه تحت پوشش قرارگیرد. سایت های جذب بر روی جاذب یکنواخت هستند و هر یک از سایت فعال هیچ تاثیری بر روی دیگری ندارد. در این مطالعه به علت بالا بودن و نزدیک تر بودن **R2** به عدد یک در معادله فرندلیخ نسبت به لانگمیر، مدل فروندلیچ (**r^2** =۰/۸۷) با داده های جذب متناسب است پس سطح جاذب ناهمگن (برگشت پذیر) است و تعامل بین مولکول های جذب شده ممکن است وجود داشته باشد. با توجه به معادله ایزوترم فرندلیخ بیشترین ظرفیت جذب تتراسایکلین بر روی جاذب **mg/g** ٦٦/٦٧ شد (شکل ۷ تا ۹). کم بودن جذب آنتی بیوتیک را می توان به ارتباط ضعیف جذب شونده با سطح جاذب و همچنین کوچک بودن سطح جاذب نسبت داد. علاوه بر این تتراسایکلین مولکول بزرگی است، که این موضوع تاثیر بزرگی اندازه بر ممانعت از جذب را نشان می دهد. اندازه ذرات جاذب بر اساس میزان سرند کردن با الک های مش بر روی عمل جذب مواد آلی با مولکول های بزرگ بسیار موثر است. براساس نتایج این مطالعه و مطالعات مشابه می توان چنین نتیجه گیری کرد که یک مدل واحد برای جذب آلاینده ها توسط جاذب ها وجود ندارد و مدل جذب قابل ارائه تابعی از نوع آلاینده و جاذب مورد استفاده می باشد.



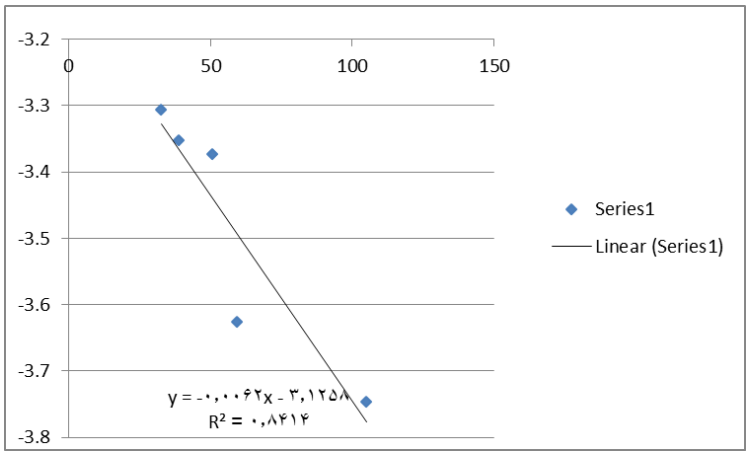
نمودار ۷: ایزوترم لانگمویر جذب آلاینده تتراسایکلین توسط جاذب کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]



نمودار ۸: ایزوترم فروندلیخ جذب آلاینده تتراسایکلین توسط جاذب کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک



نمودار ۹: ایزوترم تمکین جذب آلاینده تتراسایکلین توسط جاذب کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک

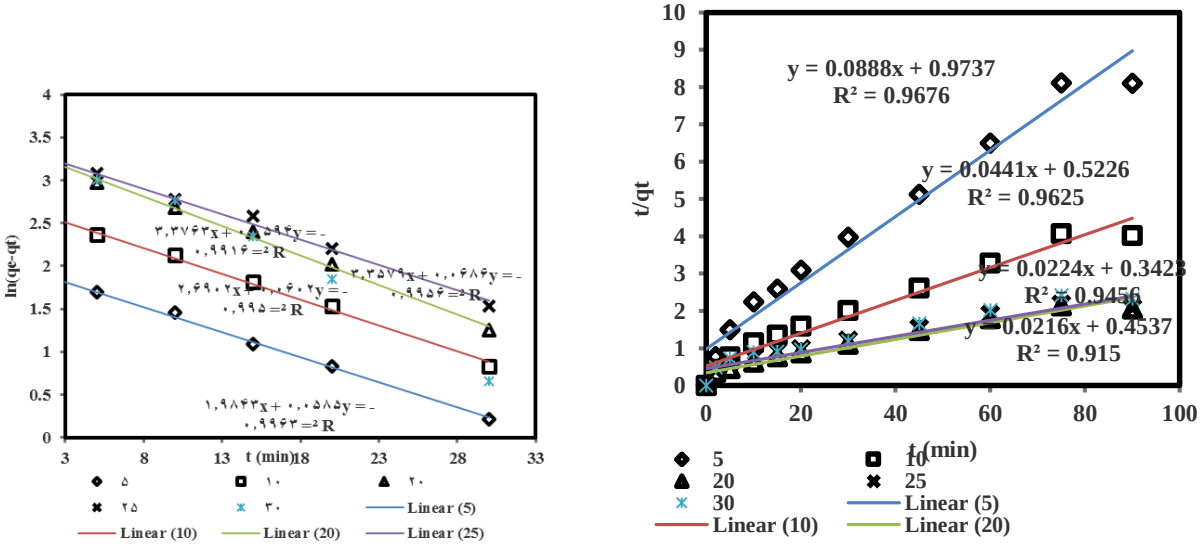
-سینتیک جذب

سینتیک جذب، پارامتر مهمی در طراحی سیستم های جذب بوده و برای انتخاب شرایط بهره برداری در مقیاس های واقعی لازم می باشد. در مدل سینتیکی شبه درجه یک فرض می شود سرعت تغییرات برداشت ماده جذب شونده نسبت به زمان به طور مستقیم با تغییرات غلظت اشباع و مقدار برداشت جاذب متناسب می باشد. مدل شبه درجه دو فرض می کند که دو واکنش (موازی و یا سری) در جذب ماده جذب شونده بر روی جاذب مؤثرند، اولی سریع بوده و به سرعت به تعادل می رسد، در حالی که دومی سرعت کمی داشته و زمان طولانی تری ادامه می یابد. بنابراین دو مدل بسیار مهم که به طور گسترده ای در منابع برای فرایند جذب به کار می روند سینیتیک درجه اول و سینتیک درجه دوم کاذب است. در این مطالعه جذب تتراسایکلین بر روی جاذب کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک، با استفاده از مدل شبه مرتبه اول و مدل شبه مرتبه دوم مورد بررسی قرار گرفت. جذب از معادله شبه درجه اول پیروی می کند چون **r2** =۰/۹۹ در این معادله بزرگ تر و نزدیک تر به عدد یک نسبت به **r2**=۰/۹۱ در معادله شبه درجه دوم می باشد (شکل ۱۰). معادله شبه درجه دوم عامل محدود کننده سرعت می باشد؛ این امر نشان دهنده این مطلب است که مرحله محدود کننده

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

سرعت جذب ممکن است فرایند جذب شیمیایی و یا فیزیکی باشد که احتمالا از طریق تشکیل واکنش های کمپلکس سطحی با سایت های خاص بر روی سطح جاذب رخ می دهد. گولر و همکارش[40] در مطالعه جذب تتراسایکلین توسط پامیس در سال ۲۰۱٤، یان پینگ ژائو و همکارانش[33] در مطالعه جذب تتراسایکلین بر روی ژئوتیت در حضور کاتیون های فلزی و مواد هومیک در سال ۲۰۱۱، گولر [41] در مطالعه جذب تتراسایکلین توسط نانو ذرات آهن صفر ظرفیتی و پامیس پوشش داده شده با نانو ذرات آهن صفر ظرفیتی در سال ۲۰۱٦ ، نیز به همین نتایج دست یافتند.



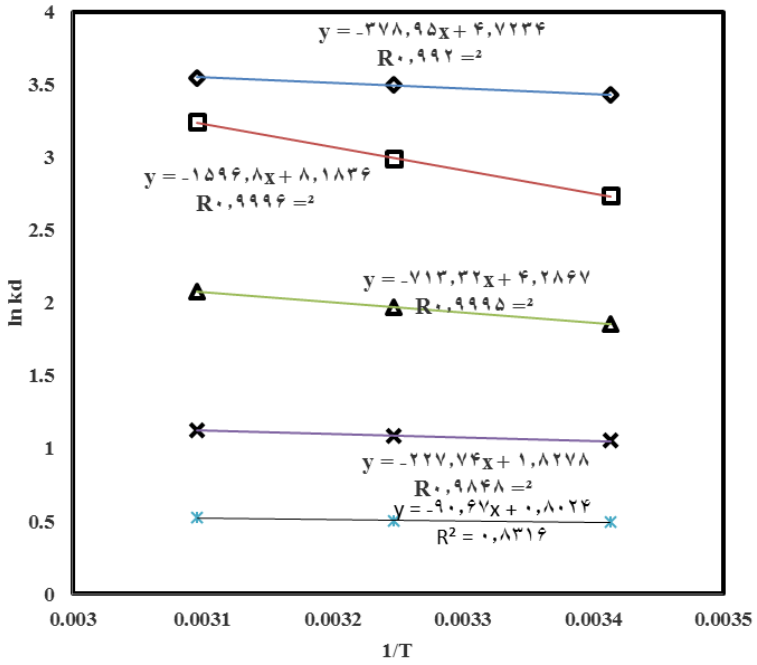
نمودار ۱۰: نمودار سینتیک شبه درجه اول و شبه درجه دوم جذب آلاینده تتراسایکلین توسط جاذب کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک

-ترمودینامیک جذب

مطالعه و تعیین پارامترهای ترمودینامیکی فرایند جذب آلاینده تتراسایکلین توسط جاذب کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک نشان داد که ΔH° دارای مقادیری مثبت بوده و این بیان می کند که فرایند جذب دارای طبیعتی اندوترمیک بوده و با نتایج قبلی مبنی بر افزایش مقدار جذب با افزایش دمای محلول سازگار است. مقادیر مثبت ΔH° همچنین نشان دهنده تشکیل پیوند شیمیایی قوی بین یون های تتراسایکلین و سطح جاذب است و بنابراین پیشنهاد می کند که فرایند جذب یک فرایند شیمیایی است. در جدول همچنین مشاهده می شود که پارامتر دیگر ترمودینامیک یعنی ΔS° دارای مقادیری مثبت بوده و این نشان دهنده تمایل جاذب برای ماده جذب شونده و افزایش راندمان با افزایش دما در فاز مشترک جامد و مایع در طول فرایند جذب است. اما مقادیر منفی به دست آمده برای انرژی آزاد گیبس **(ΔG°)** بیان می کند که واکنش جذب تتراسایکلین بر روی جاذب خودبخودی است. بر اساس جدول ترمودینامیک های واکنش همچنین مشاهده می شود که مقادیر **lnkL** با افزایش دما افزیش یافته و این روند بیانگر تمایل بالای جاذب به ماده جذب شونده در دماهای بالای محلول است (شکل ۱۱).

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]



شکل ۱۱: نمودار ترمودینامیک جذب آلاینده تتراسایکلین توسط جاذب کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک

حذف آنتی بیوتیک تتراسایکلین مناسب می باشد.

نتیجه گیری

مطالعه به منظور بررسی حذف آلاینده تتراسایکلین توسط جاذب نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک انجام شد. با بررسی تاثیر متغیرهای pH، دوز جاذب، غلظت آلاینده، دما و حضور یونهای مداخله گر مشخص گردید که استفاده از جاذب نانوکامپوزیت کیتوزان مغناطیسی شده بی متالیک در

سپاسگزاری

این مطالعه، حاصل از پایان نامه کارشناسی ارشد رشته مهندسی محیط زیست دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم و تحقیقات تهران بوده که بدینوسیله قدردانی می گردد.

References

1. Li R, Zhang Y, Lee CC, Liu L, Huang Y. Hydrophilic interaction chromatography separation mechanisms of tetracyclines on amino-bonded silica column. J Sep Sci 2011;34(13):1508-16.

2. Önal A. Overview on liquid chromatographic analysis of tetracycline residues in food matrices. Food Chem 2011;127(1):197-203.

3. Chen G, Zhao L, Dong Y-h. Oxidative degradation kinetics and products of chlortetracycline by manganese dioxide. J Hazard Mater 2011;193:128-38.

4. Koesukwiwat U, Jayanta S, Leepipatpiboon N. Validation of a liquid chromatography–mass spectrometry multi-residue method for the simultaneous determination of sulfonamides, tetracyclines, and pyrimethamine in milk. J Chromatogr A 2007;1140(1):147-58.

5. Kim K-R, Owens G, Kwon S-I, So K-H, Lee D-B, Ok YS. Occurrence and environmental fate of veterinary antibiotics in the terrestrial environment. Water Air Soil Pollut 2011;214(1-4):163-74.

6. Daghrir R, Drogui P. Tetracycline antibiotics in the environment: a review. Environ Chem Let 2013;11(3):209-27.

7. Hernández F, Sancho JV, Ibáñez M, Guerrero C. Antibiotic residue determination in environmental waters by LC-MS. Trends Analyt Chem 2007;26(6):466-85.

8. López-Peñalver JJ, Sánchez-Polo M, Gómez-Pacheco CV, Rivera-Utrilla J. Photodegradation of tetracyclines in aqueous solution by using UV and UV/H2O2 oxidation processes. J Chem Technol Biotechnol 2010;85(10):1325-33.

9. Jeong J, Song W, Cooper WJ, Jung J, Greaves J. Degradation of tetracycline antibiotics: mechanisms and

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

kinetic studies for advanced oxidation/reduction processes. Chemosphere 2010;78(5):533-40.

10. Andreu V, Vazquez-Roig P, Blasco C, Picó Y. Determination of tetracycline residues in soil by pressurized liquid extraction and liquid chromatography tandem mass spectrometry. Anal Bioanal Chem 2009;394(5):1329-39.

11. Liu F, Ying G-G, Tao R, Zhao J-L, Yang J-F, Zhao L-F. Effects of six selected antibiotics on plant growth and soil microbial and enzymatic activities. Environ Pollut 2009;157(5):1636-42.

12. Spongberg AL, Witter JD. Pharmaceutical compounds in the wastewater process stream in Northwest Ohio. Sci Total Environ 2008;397(1):148-57.

13. Wang P, Yap P-S, Lim T-T. C–N–S tridoped TiO 2 for photocatalytic degradation of tetracycline under visible-light irradiation. Appl Catal A 2011;399(1):252-61.

14. Homem V, Santos L. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices–a review. J Environ Manag 2011;92(10):2304-47.

15. Tiraferri A, Maroni P, Caro Rodríguez D, Borkovec M. Mechanism of chitosan adsorption on silica from aqueous solutions. Langmuir 2014;30:4980-8 .

16. Wang T, Zhu XK, Xue, XT, Wu DY. Hydrogel sheets of chitosan, honey and gelatin as burn wound dressings. Carbohydr Polym 2012;88:75-83.

17. Yen MT, Yang JH, Mau JL. Physicochemical characterization of chitin and chitosan from crab shells. Carbohydr Polym 2009;75:15-21.

18. Shen C, Shen Y, Wen Y, Wang H, Liu W. 2011. Fast and highly efficient removal of dyes under alkaline conditions using magnetic chitosan-Fe (III) hydrogel. Water Res 2009:45:5200-5210.

19. Rao KK, Chung I, Ha C-S. Synthesis and characterization of poly (acrylamidoglycolic acid) grafted onto chitosan and its polyelectrolyte complexes with hydroxyapatite. React Funct Polym 2008;68(5):943-53.

20. Lazaridis NK, Kyzas GZ, Vassiliou AA, Bikiaris DN. Chitosan derivatives as biosorbents for basic dyes. Langmuir 2007;23(14):7634-43.

21. Soori MM, Ghahramani E, Kazemian H, Al-Musawi TJ, Zarrabi M. Intercalation of tetracycline in nano sheet layered double hydroxide: An insight into UV/VIS spectra analysis. J Taiwan Inst Chem Eng 2016;63:271-85.

22. Tan F, Sun D, Gao J, Zhao Q, Wang X, Teng F, et al. Preparation of molecularly imprinted polymer nanoparticles for selective removal of fluoroquinolone antibiotics in aqueous solution. J Hazard Mater 2013;244:750-7.

23. Mohammadi AS, Sardar M. The removal of penicillin G from aqueous solutions using chestnut shell modified with H2SO4: Isotherm and kinetic study. Iran J Health Environ 2013;5(4):497-508 [In Persian.[

24. Wang LK, Hung Y-T, Shammas NK. Advanced physicochemical treatment technologies: Springer; 2007.

25. Fryxell GE, Cao G. Environmental applications of nanomaterials: synthesis, sorbents and sensors: World Scientific; 2012.

26. Liu W, Xie H, Zhang J, Zhang C. Sorption removal of cephalexin by HNO3 and H2O2 oxidized activated carbons. Sci China Chem 2012;55(9): 1959-67.

27. Pouretedal H, Sadegh N. Effective removal of Amoxicillin, Cephalexin, Tetracycline and Penicillin G from aqueous solutions using activated carbon nanoparticles prepared from vine wood. J Water Proc Eng 2014;1:64-73.

28. Huang B, Liu Y, Li B, Liu S, Zeng G, Zeng Z, et al. Effect of Cu (II) ions on the enhancement of tetracycline adsorption by Fe3O4@SiO2-Chitosan/graphene oxide nanocomposite. Carbohydr Polym 2017;157:576-85.

29. Zhao Y, Geng J, Wang X, Gu X, Gao S. Adsorption of tetracycline onto goethite in the presence of metal cations and humic substances. J Colloid Interf Sci 2011;361(1):247-51.

30. Samarghandi M, Noori Sepehr M, Zarrabi M, Norouzi M, Amraie F. Mechanism and removal efficiency of CI acid blake 1 by pumice stone adsorbent. Iran J Health Environ 2011;3(4):399-410 [In Persian.[

31. Noori Sepehr M, Mohebi S, Abdlollahi Vahed S. Removal of tetracycline from synthetic solution by natural LECA. J Environ Health Eng 2014;1:301-11.

32. Samarghandi MR, Mehranpoor R, Ahmadian M. Survey the Efficiency of Iron- Coated pumice in Fluoride Removal from Aqueous Solutions. J Environ Health Eng 2014;2(2):128-40 [In Persian.[

33. Mesdaghinia A, Mahvi A, Fazlzadeh M, Dehghani M, Heibati B, Daliri Z, et al. Comparing efficiency natural pumice and modified with iron in removal Reactive Black5 dye. J North Khorasan Univ Med Sci 2013;5:449-57 [In Persian.[

34. Hosokawa M, Nogi K, Naito M, Yokoyama T. Nanoparticle Technology Handbook Elsevier. Amsterdam; 2007.

35. Li Z, Schulz L, Ackley C, Fenske N. Adsorption of tetracycline on kaolinite with pH-dependent surface charges. J Colloid Interf Sci 2010;351(1):254-60.

36. Benaissa H, Benguella B. Effect of anions and cations on cadmium sorption kinetics from aqueous solutions by chitin: experimental studies and modeling. Environ Pollut 2004;130(2):157-63.

37. Benaïssa H, Elouchdi M. Effect of cations and anions presence on cadmium sorption kinetics from aqueous solutions by dried sunflower leaves. 12th International Water Technology Conference, IWTC12 2008 Alexandria, Egypt.

38. Kang J, Liu H, Zheng Y-M, Qu J, Chen JP. Systematic study of synergistic and antagonistic effects on adsorption of tetracycline and copper onto a chitosan. J Colloid Interf Sci 2010;344(1):117-25.

39. Gao Y, Li Y, Zhang L, Huang H, Hu J, Shah SM, et al. Adsorption and removal of tetracycline antibiotics from aqueous solution by graphene oxide. J Colloid Interf Sci

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

2012;368(1):540-6.

40. Guler UA. Removal of tetracycline from aqueous solutions using nanoscale zero valent iron and functional pumice modified nanoscale zero valent iron. J Environ Eng Landsc Manag 2016;25(3):1-11.

41. Guler UA, Sarioglu M. Removal of tetracycline from wastewater using pumice stone: equilibrium, kinetic and thermodynamic studies. J Environ Health Sci Eng 2014;12:79.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]

Journal of Environmental Health Engineering, August 2019; Vol. 6, No. 4: 356-374

Evaluation the efficiency of magnetic-metallic chitosan nanocomposite adsorbent in the removal of tetracycline antibiotic from aqueous solutions

Maryam Mohammadi Amini[1], Mohammad Nourisepehr*[2,3], Emad Dehghanifard[2,3]

1. M.Sc student of Environmental Engineering, School of Environment and Energy, Islamic Azad University, Science and Research Branch, Tehran, Iran

2. Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Alborz University of Medical Sciences, Karaj, Iran

3. Research Center for Health, Safety and Environment (RCHSE), Alborz University of Medical Sciences, Karaj, Iran

**** E-mail: dr.nourisepehr@gmail.com***

Received: 1 Jul 2018; Accepted: 31 Jan 2019

ABSTRACT

Background and Objective: Antibiotics are considered due to health and environmental problems and therefore they counted as a major threat to human health. The aim of this study was to determine the absorption efficiency of magnetic-chitosan nanocomposite in the removal of antibiotic tetracycline from aqueous solutions.

Materials and Method: In this study, the experiments were performed by spectrophotometer. The magnetic-chitosan nanocomposite were considered as an antibiotic adsorbent which its adsorption efficiency was measured by changing the variables such as temperature, time, PH, dosage of magnetic-chitosan nanocomposite, concentration of tetracycline, concentration of interactive ions of chlorine, sulfate and carbonate. Synthesis of magnetic-chitosan nanocomposite was based on co-precipitation method. The Freundlich, Langmuir and Temkin isotherms were used to determine the isotherm and the absorption kinetics.

Results: The results showed that the best antibiotic removal efficiency was obtained at pH = 6. The highest removal efficiency was obtained at 90 minutes and equal to 91.23%. Moreover, the removal efficiency of tetracycline was significantly reduced in alkaline pH. Also, by increasing the absorbent dose from 0.1 g/L to 0.5 g/L, the removal efficiency of the pollutant increased from 72.24% to 90.22% at 90 minutes. In addition, with an increase in pollutant concentration between 5-30 mg/L, the removal efficiency of the pollutant decreased from 93.4% to 53.7%. In order to study the thermodynamics of the tetracycline pollutant absorption process by magnetic-chitosan nanocomposite, the removal efficiency of the pollutant dropped from 91.23% to 45.1% at 20, 30 and 45 degrees of Celsius. The presence of interfering ions has a decreasing effect on the removal efficiency of tetracycline, which the removal efficiency were reduced from 91.23% at 90 minutes (in the absence of ions) to 70.16% (for chlorine ion), 65.96% (for ion Carbonate) and 54.2% (for sulfate ions).

Conclusion: Finally, the use of magnetic- chitosan nanocomposite adsorbent is recommended in the removal of antibiotic tetracycline.

Keywords: Absorption, Magnetic-Chitosan Nanocomposite, Tetracycline, Water Resources.

[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.29252/jehe.6.4.356]