مجله مهندسی بهداشت محیط، تابستان ۱۴۰۰، سال ۸، شماره ٤: ٤٤٩-٤٢٥

بررسی کارایی نانوکامپوزیت P4VP-Fe3O4 در حذف آلاینده دیکلوفناک از محیط های آبی

سکینه ملایی توانی[۱]، عماد دهقانی فرد[۲*]، محمد رفیعی[۳]، سید جمال طباطبایی رضائی[٤]

[۱] کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی البرز، کرج، ایران.

[۲] استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران.

[۳] استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی، تهران، ایران.

[٤] استادیار گروه شیمی، دانشکده علوم، دانشگاه زنجان،زنجان، ایران.

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۰/۰۳/۱۹؛ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۰۵/۱۶

چکیده

زمینه و هدف: داروهای غیراستروئیدی ضدالتهابی(NSAIDs) به طور گسترده برای درمان‌های مختلف از جمله اختلالات التهابی، تسکین درد و تب مورد استفاده قرار گرفته که حضور دائمی این ترکیبات در محیط‌های آبی و اثرات سوء احتمالی ناشی از خصوصیات سم شناسی و شیمیایی آنها بسیار مورد توجه می باشد. هدف این مطالعه بررسی کارایی نانوکامپوزیت P4VP-Fe3O4 در حذف آلاینده دیکلوفناک از محیط های آبی می باشد.

روش کار: ویژگی‌های جاذب با تکنیک‌های TEM، SEM ، VSM و FTIR تعیین گردید.اثر متغیرهای مستقل نظیر pH (۳-۹)، دوز جاذب (g/L ۰.۱-۲)، غلظت آلاینده (mg/L ۲-۲۰)، دور اختلاط (rpm ۱۰۰-۲۵۰)، دما (C۲۵۰-٤۰) و حضور یون‌های مداخله‌گر در زمان های متغیر (طی مدت min ۱۲۰) مورد بررسی قرار گرفت. فرایند جذب با استفاده از مدل‌های ایزوترمی لانگمیر - فروندلیچ - تمکین، مدل‌های سینتیک فرآیند جذب مانند معادلات شبه درجه اول و دوم، درون ذره‌ای و همچنین مطالعات ترمودینامک مدل سازی گردید.

یافته ها: نتایج مطالعه نشان داد با بررسی اندازه و شکل کامپوزیت P4VP-Fe3O4 این کامپوزیت ویژگی‌هایی چون سایز در محدوده نانو ، ساختاری چند ضلعی و شکلی غیر یکنواخت را دارا می‌باشند. پیک حلقه پیریدین در نتایج آنالیز FT-IR کامپوزیت P4VP@Fe3O4، نشان دهنده حضور باندهای C=C بود. در فرآیند جذب، شرایط بهینه حذف دیکلوفناک (غلظت آلاینده mg/L ۱۵، pH =۵ ، زمان تماس min ۷۵، دوز جاذب g/L ۱) حداکثر راندمان حذف دیکلوفناک ۹۳.۳٤% و ظرفیت جذب (qe) mg/g ۹/۳۳ بدست آمد. همچنین مطالعه ایزوترم و سینتیک جذب نشان داد که جذب دیکلوفناک از ایزوترم فروندلیچ (R2 > ۰/۹۵٦) و مدل سینتیکی شبه درجه دوم (R2 >۰/۹۷٦) تبعیت می‌کند. نتایج ترمودینامک نیز بیانگر یک واکنش گرماده و خود به خودی بود.

نتیجه‌گیری: کامپوزیت P4VP-Fe3O4 به دلیل دارا بودن مزایایی چون جداسازی ساده و سریع، قابل بازیافت، مقرون به صرفه و راندمان حذف بالا می‌تواند به عنوان یک جاذب موثر و مفید در جذب دیکلوفناک و ترکیبات دارویی از محیط‌های آبی مورد استفاده قرار بگیرد.

کلمات کلیدی: جذب سطحی، کامپوزیت P4VP-Fe3O4، داروهای غیر استروئیدی ضدالتهابی (NSAIDs)، دیکلوفناک، محلول آبی.

***نویسنده مسئول:** استادیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایران، تهران، ایران.

ایمیل:dehghanifard@yahoo.com - شماره تماس :۰۲۱-۸۶۷۰۰۰۰۰

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

مقدمه

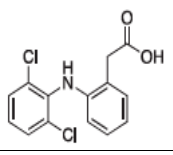
داروهای غیراستروئیدی ضدالتهابی(NSAIDs) متعلق به PPCPs شامل گروه‌های مختلفی از ترکیبات دارویی مورد استفاده در دامپزشکی، کشاورزی، انسان(داروهای مسکن ضدالتهابی، آنتی‌بیوتیک‌ها، داروهای کاهش دهنده چربی، هورمون‌ها، آرام بخش و غیره) و محصولات مراقبت‌های شخصی(عطر، لوازم آرایشی، رنگ‌مو، شامپو و غیره) می‌باشند ۱. در سال‌های اخیر، ترکیبات دارویی و متابولیت‌های آنها به طور فزاینده در آب‌های گوناگون از جمله در پساب تصفیه‌خانه های فاضلاب (WWTPs)، آب های سطحی، آب زیرزمینی و آب آشامیدنی شناسایی شده‌اند. این ترکیبات با توجه به ماندگاری بالا و تجزیه پذیری اندک، اثرات بالقوه‌ای حتی در غلظت‌های کم بر سلامت انسان و محیط زیست دارند ۲. ۸۰-۶۰٪ داروها از طریق سرویس بهداشتی دفع می گردد. و یا از طریق زباله های معمولی خانگی دور انداخته می‌شود ۳. یکی از فراوان‌ترین ترکیبات دارویی که تا کنون در آب تشخیص داده شده است، دیکلوفناک می‌باشد ۲. دیکلوفناک (۲- (۲- (۲،۶-دی کلروفنیل آمینه) فنیل) اسید استیک) (دیکلوفناک) یک داروی غیر استروئیدی ضد التهابی رایج (NSAID) است که به صورت قرص‌های خوراکی و یا یک ژل موضعی استفاده می‌شود ٤. این دارو به عنوان ضد درد، به منظور کاهش التهاب در مفاصل، بیماریهای روماتیسمی، غیر روماتیسمی و ضد آرتریتی (ورم مفاصل) و حتی تسکین دهنده درد قاعدگی و دیسمنوره و غیره نیز توصیه شده است ۵, ٦. در جدول ۱ خصوصیات فیزیکی- شیمیایی دیکلوفناک آورده شده است. مصرف سالانه دیکلوفناک حدود ۹٤۰ تن با دوز ۱۰۰ میلی گرم در روز در سطح جهانی می باشد ۳, ۵. مطابق داده‌های بهداشت IMS، در سال ۲۰۰۷ دیکلوفناک به میزان ۸۷۷ تن فروخته شد ۳. تقریبا ٦۵٪ دوز آن از طریق ادرار(شش متابولیت شناسایی شده است) دفع می‌گردد. اما مقدار واقعی متابولیت های آن در مدفوع هنوز مشخص نیست ۳. تخمین زده می‌شود که ۱۵٪ از دیکلوفناک بدون تغییر پس از مصرف دفع می‌گردد ۷. داروها در محیط یا به صورت ترکیبات اولیه و یا به صورت متابولیت های فعال یا غیر فعال رها می‌شوند. بدین ترتیب، نه تنها ترکیبات اولیه موضوعی برای ارزیابی ریسک هستند بلکه متابولیت فعال آنها نیز مهم می‌باشد ۸. اگر چه آنها در سطوح بسیار کم(کمتر از میکرو گرم در لیتر) در منابع آب آشامیدنی و پساب فاضلاب مشاهده شده‌اند، تجمع آن‌ها در موجودات آبزی باعث مواجهه انسان از طریق زنجیره‌ی غذایی می‌شود ۹. با توجه به اینکه مقدار pKa این ترکیبات اسیدی بین ۳ تا ۵ است به طور گسترده تجزیه نمی‌شوند و اغلب پس از تخلیه یا دفع در آب پایدار می‌مانند ۱۰. همچنین به علت ساختار قطبی خود، تجزیه‌پذیری لندک و حلالیت بالا در آب، NSAID ها به طور کامل از طریق تصفیه‌خانه‌های فاضلاب حذف نمی‌شوند، و در نتیجه آنها قادر به نفوذ از طریق همه فیلترهای طبیعی بوده و وارد آب‌های زیر زمینی و آب آشامیدنی می‌شود ۱۱. با وجود غلظت‌های بسیار پایین این داروها عوارض جانبی متعددی در موجودات مختلف مشاهده شده است. به عنوان مثال، در کبد، کلیه‌ها و آبشش ماهی قزل آلای رنگین کمان، کمترین غلظت اثر مشاهده شده برای انواع آسیب بافتی در غلظت ۱میکروگرم در لیتر مشاهده شد ۱۲, ۱۳. همچنین اثر زیست محیطی دیگر ناشی از باقی‌مانده دیکلوفناک منجر به کاهش جمعیت لاشخورها در هند ۲ و پاکستان ۱۲ شده است. قرار گرفتن در معرض اثرات مزمن دیکلوفناک در انسان ممکن است باعث اثرات زیان‌آوری مانند تغییرات همودینامیکی و یا باعث تومورهای تیروئیدی شود ١٤. همچنین این ترکیب علاوه بر مسمومیت مزمن، مختل کننده غدد درون ریز و بروز مقاومت در پاتوژن‌ها نیز شده‌اند ۱۵. روش‌هایی که تاکنون برای حذف دیکلوفناک مورد مطالعه قرار گرفته‌اند، عبارتند از: تجزیه بیولوژیکی، تجزیه نوری، اکسیداسیون پیشرفته(به عنوان مثال

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

O3، UV / H2O2 و TiO2 / O3)، جذب ۱۶ ، فتوفنتون، سونولیز ۱۷ ، راکتور غشاء فوتوکاتالیستی و اکسیداسیون فوتوکاتالیستی با لامپ UV و نور خورشید ۱۸ . می‌باشد. تصفیه متداول فاضلاب در حذف این آلاینده‌ها بی اثر بوده و رلندمان بین ۴۰-۵ درصد دارد ۱۹ . علاوه بر این حلالیت پایین، دوقطبی‌های لحظه‌ای کوچک و بارهای منفی باعث عبور مقدار بالایی از دیکلوفناک از واحد نانو فیلتراسیون می‌گردد ۵ . با توجه به نگرانی‌های اجتماعی و سیاسی در اتحادیه اروپا در مورد داروها و به طور خاص در مورد دیکلوفناک، انتظار می‌رود که قانونی در رابطه با تخلیه آن‌ها در آینده نزدیک وضع خواهد شد ۱۹ . با توجه به ساختار شیمیایی مواد دارویی و پتانسیل واکنش‌های الکترواستاتیکی وغیرالکترواستاتیکی، انتظار می‌رود که جذب سطحی یک فرآیند موثر برای حذف انتخابی ترکیبات دارویی از ماتریکس‌های مختلف آبی باشد. این فرایندها نیاز به انرژی کمی داشته، می توانند در جریان پیوسته یا ناپیوسته مورد استفاده قرار گیرند، می‌توانند در آرایش های مختلف راکتور از جمله مخلوط دوغابی یا بستر ثابت استفاده شوند. همچنین می‌توانند احیاء شده و مورد استفاده مجدد قرار گیرند یا بعد از اشباع کامل به راحتی دفع شوند ۲۰ . از سوی دیگر، فرایندهای جذب، محصولات جانبی ناخواسته را اضافه نمی‌کند و نسبت به دیگر روش های تصفیه فاضلاب از لحاظ طراحی و بهره برداری ساده تر و برتر می‌باشد ۲۱ . مطالعات بسیاری در زمینه استفاده از PVP به عنوان جاذب، که از جمله آن می‌توان به بررسی خواص AAC / PVP کوپلیمر هیدروژل و کاربرد آن‌ها در حذف فلزات سنگین از محلول آبی ۲۲ و حذف انتخابی پلی فنول و رنگ قهوه‌ای در آب میوه سیب با استفاده از غشاء PVP / PES در یک فرایند اولترافیلتراسیون ۲۳ اشاره کرد. در میان پلیمرهای متعدد، پلی (٤- ونیل پیرودین)(P4VP) به طور گسترده مورد تحقیق قرار گرفته است که به دلیل حلقه پیریدین ویژه P4VP، می‌توان برای ساکن نگه داشتن کاتالیزور انتقال فلز استفاده نمود و این کاتالیزور به صورت فعال و انتخابی در اپوکسیداسیون آلکن با استفاده از ترت – باتی هیدروپروکسید یا پراکسید هیدروژن به عنوان اکسیدان یافت می‌شود. Fe3O4 با استفاده از یک آهنربا می‌تواند به صورت کاتالیزور هسته مغناطیسی در بیاید. این کاتالیزور ناهمگن خواص بسیار عالی از پلیمر و آهنربا (به عنوان مثال، گروه‌های عاملی آلی، ویژگی‌های سطحی، جداسازی مغناطیسی، پایداری عالی و قابلیت نگهداری) را دارا می‌باشد ۲٤ . از این رو، هدف این مطالعه، بررسی کارایی نانوکامپوزیت P4VP-Fe3O4 در جذب دیکلوفناک از محیط آبی می‌باشد.

جدول ۱: خصوصیات فیزیکی- شیمیایی دیکلوفناک [۳، ٤، ۲۵، ۲۶].

ساختار	ترکیب	فرمول شیمیایی	طبقه	گروه شیمیایی	وزن مولکولی (گرم بر مول)	شعاع مولکولی (نانومتر)	pK_a	حلالیت در آب **mg/L**	نیمه عمر (ساعت)
	دیکلوفناک(دیکلوفناک - **d4)**	**C14H10Cl2NO2**	**NSAID**	آلی خنثی، اسید کربوکسیلیک	۲۹۶.۲	۰.٤۱٤	٤.۱۵	۲۳.۷۳ (۲۵°**C**) (۲۰°**C**) ۲.۳۷	۲

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

مواد و روش‌ها

مواد مورد استفاده

مونوسدیم‌فسفات، اسیدهیدروفلوریک، هیدروکسیدسدیم، اسیدهیدروکلریک، اتانول، کلرید فریک. ٦ آبه، سولفات آهن. ٧ آبه، آمونیوم‌هیدروکسید، تولوئن، ٢و٤-وینیل پیریدین، متانول، استونیتریل از شرکت مرک خریداری شد. نمونه آنالیتیکال دیکلوفناک با خلوص ٩٩.٣ درصد از شرکت داروسازی ابوریحان خریداری شد.

ساخت و تعیین مشخصات نانو جاذب P4VP-Fe3O4

- آماده‌سازی و اصلاح نانوذرات پارامغناطیسی P4VP-Fe3O4

در ابتدا، ٠.٥٤ g FeCl3.6H2O و ٠.٣ g FeSO4.7H2O در ٤٠mL میلی لیتر آب دوبار تقطیر تحت فشار گاز آرگون قرار گرفت. محلول آمونیاک (١.٥ مولار) با تکان‌های شدید به صورت قطره قطره به ظرف واکنش انتقال یافت. سپس، مخلوط واکنش در pH محیط در ٨٠ °C حرارت داده شد، و با افزودن NH4OH آبی (٢.٥ مولار) در pH ١٠ در طول واکنش نگهداری شد. مگنتیت به دست آمده بلافاصله با آب پنج بار و با اتانول دو بار توسط جداکننده‌های مغناطیسی شسته شد. پس از آن، نانوذرات مغناطیسی در یک آون خلاء در ٥٠ °C خشک شدند. نانوذرات Fe3O4 در ٤٥ mL آب مقطر دوباره حل شدند. پس از آن، ٠.٢ میلی لیتر از ٣- (ترای متوکسی سیلیول)پروپویل متاکرلیت(TMSPMA) به نانوذرات Fe3O4 محلول تحت تکان‌های مکانیکی در ٢٥ °C تزریق شد. پوشش(salinization) سطح نانوذرات مغناطیسی Fe3O4 جهت کامل شدن به مدت ٢٤ ساعت اجازه یافت. سپس سطح اصلاح شده نانوذرات مغناطیسی Fe3O4 جمع آوری شد و چندین بار با آب مقطر به کمک یک آهنربا شسته شد ٢٧ .

سنتز کامپوزیت P4VP-Fe3O4

سطح اصلاح شده نانوذرات مغناطیسی Fe3O4 (٠.١٥ g) و ٦٠mL تولوئن به فلاسک ١٠٠mL منتقل شد، پس از آن مخلوط به مدت ١٠ دقیقه در معرض امواج اولتراسونیک قرار گرفت. سپس، ٢/٥ g از مونومر٤- وینل پیریدین و ١ g اتیلن گلی‌کول‌دی‌متاکریلتی(EGDMA) در مخلوط حل شد. AIBN (٠.٠٢٥ g ، ١ درصد وزنی ٤- وینل پیریدین) به فلاسک تزریق شد و ظرف واکنش برای شروع پلیمریزاسیون محلول به مدت ٦ ساعت با تکان تحت فشار گاز N_2 (طرح ١) در ٧٠ °C حرارت داده شد. پس از پلیمریزاسیون، محلول با استون یک بار و پلی آزاد (٤- وینل پیریدین) (P4VP) شسته شد. سپس در دستگاه سوکسله با استفاده از متانول جوش به مدت ٣٦ ساعت استخراج شد [٢٧]. در نهایت، کامپوزیت P4VP-Fe3O4 برای تعیین خصوصیات تحت خلاء خشک شد.

روش انجام آزمایش

پارامترهای مورد مطالعه شامل pH (٨-٤)، زمان تماس (٩٠-٧٥-٦٠-٤٥ دقیقه)، غلظت اولیه دیکلوفناک (٢٥ mg/L-٢٠-١٥-١٠-٥)، غلظت جاذب (٢ g/L-٠.٢) می‌باشد. ظروف مورد نظر بر روی شیکر(٢٥٠rpm) قرار داده شد تا پس از اختلاط و صاف نمودن نمونه با استفاده از فیلتر ٠.٢ میکرون در ظروف تیره ذخیره شد و بدین ترتیب برای تعیین راندمان فرایند جذب ماده دارویی آزمایش برای سایر مراحل ادامه یافت.

برای تعیین غلظت باقیمانده دیکلوفناک در نمونه از روش کروماتوگرافی مایع با کارایی بالا (Agilent 1260) استفاده گردید. ستون مورد استفاده از نوع C-18 (٤.٦ * ١٠ میلیمتر) بود. فاز متحرک استفاده شده شامل مخلوطی از حلال استونیتریل و محلول ٠.٢٪ اسید استیک در آب با نسبت حجمی ٦٠:٤٠ (V: V) با میزان جریان ٠.٨ میلی لیتر در دقیقه و در طول موج ٢٠٠ نانومتر مورد بررسی قرار گرفت که زمان خروج آلاینده برابر ٤.٣ دقیقه بود.

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

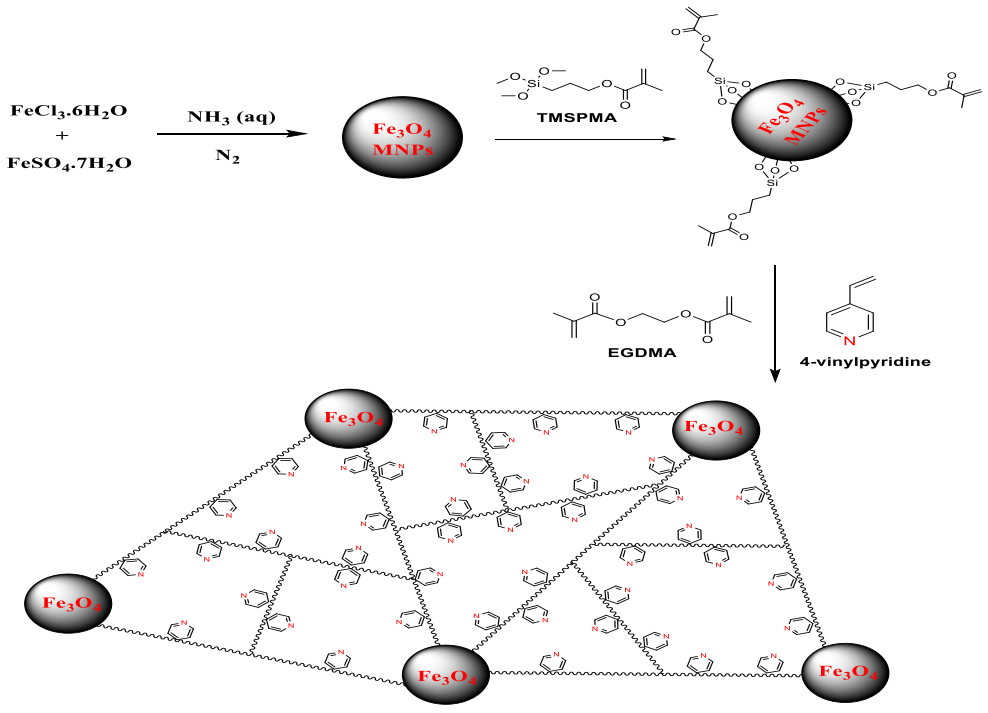
[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

کلیه داده‌های بدست آمده در این پژوهش با استفاده از نرم افزارهای اکسل تجزیه و تحلیل گردید.

یافته ها

- **تعیین خصوصیات جاذب**

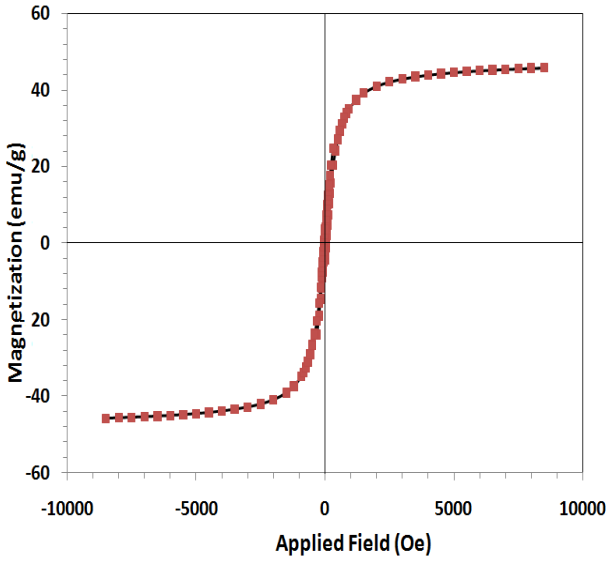
نتایج مربوط به تعیین خصوصیات مغناطیسی کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ توسط آزمون VSM در شکل ۲ ارائه شده است. حداکثر میزان مغناطیس اشباع شده از کامپوزیت P_4VP با Fe_3O_4 به میزان ٤٨.٦ emu/g می‌باشد. این میزان نشان دهنده آن است که جاذب سنتز شده علاوه بر خاصیت مغناطیسی بسیار بالا، به سرعت می‌تواند از میدان مغناطیسی خارجی محلول واکنش نیز بازیافت شود. شکل ۳ (الف)، نتایج آنالیز میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مربوط به کامپوزیت P_4VP با Fe_3O_4 را نشان می دهد. با توجه به شکل، جاذب سنتز شده به صورت توده‌های در هم پیچیده و با قطر متوسط ۱۰۰ nm نمایان است. ذرات سفید و براق مشاهده شده در تصویر نشان دهنده اکسید آهن در سطح کامپوزیت P_4VP می‌باشد. اندازه و شکل نانو ذره فلزی Fe_3O_4نشانده شده روی کامپوزیت P_4VP به وسیله میکروسکوپ الکترونی انتقالی (TEM) مورد بررسی قرار گرفت (شکل ۳ ب). همانطور که مشاهده می شود نانوذرات اکسید آهن دارای ساختاری چند ضلعی بوده که بطور غیر یکنواخت در سطح و بخش های داخلی قرار گرفته‌اند.



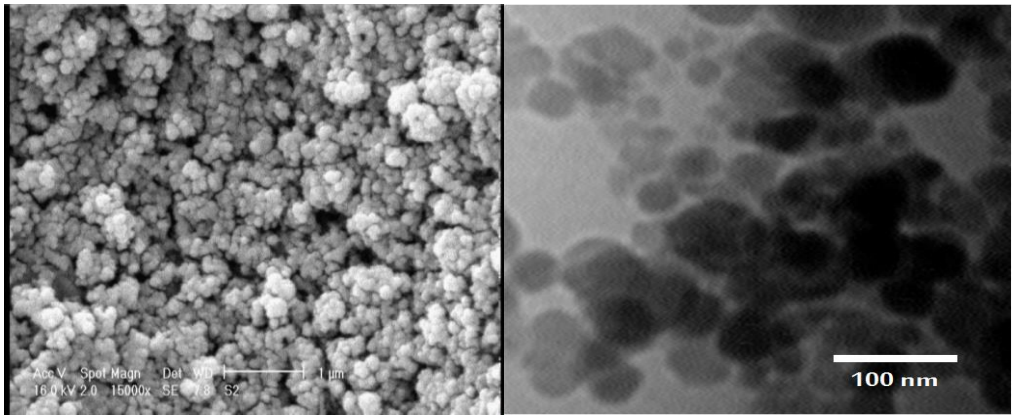
شکل ۱: سنتز کامپوزیت P_4VP-Fe_3O_4

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]



شکل ۲: منحنی مغناطیسی کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$



شکل ۳: (الف)آنالیز **SEM** ،(ب) آنالیز **TEM** کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$

از آنالیز FT-IR به منظور تایید تشکیل ذرات اکسید آهن در ساختار کامپوزیت P_4VP استفاده شد. با توجه به شکل ٤ مشخص می گردد که پیک‌های ایجاد شده در محدوده cm^{-1} ٥٨٦ نشان دهنده باندهای Fe - O و در نتیجه تایید کننده حضور Fe_3O_4 بر روی کامپوزیت شده P_4VP می‌باشد. پیک‌های ایجاد شده در محدوده cm^{-1} ٣٢٠٠-٣٦٠٠ نشان‌دهنده گروه هیدروکسیل در روی سطح نانو جاذب است. این امر می‌تواند در نتیجه جذب بخار آب موجود در هوا توسط جاذب یا گروه هیدروکسیل موجود در ساختار کربوکسیل باشد. پیک‌های ایجاد شده در محدوده cm^{-1} ١٤١٢ و cm^{-1} ١٥٩٢ شان دهنده حضور باند C=C است و در نتیجه مربوط به ساختار جاذب می‌باشد. در این طیف کامپوزیت هیبریدی $P_4VP - Fe_3O_4$، ویژگی‌های پیک حلقه پیریدین نیز تایید شد. پیک‌های ایجاد شده در محدوده cm^{-1} ٢٨٩٤ و cm^{-} ١٩١٧[1] نشان دهنده حضور باند H- C است. علاوه‌بر این، گرافت شیمیایی زنجیره P_4VP روی نانوذرات Fe_3O_4 با استفاده از آنالیز FT-IR نیز تأیید شد. در شکل ٤-٦ FT-IR

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

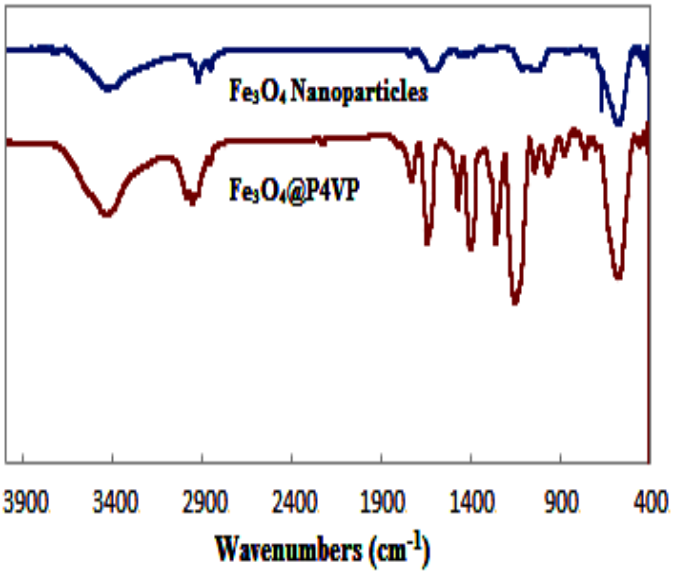
[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

نانوذرات مغناطیسی Fe_3O_4 و کامپوزیت P_4VP @ Fe_3O_4 نشان داده شده است.

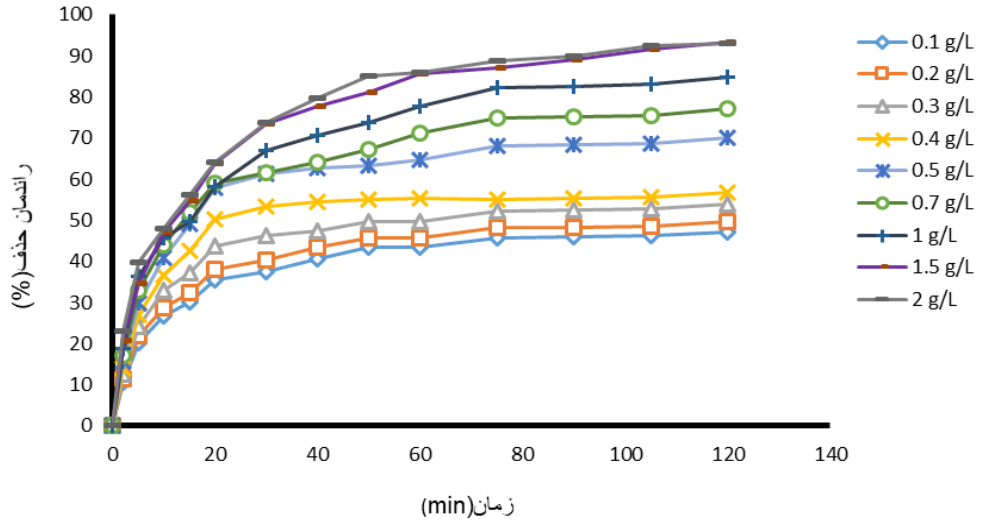
آزمایش‌های جذب

- **اثر مقدار جاذب**

در شکل ۵ اثر دوزهای مختلف جاذب کامپوزیت P_4VP – Fe_3O_4 – در حذف دیکلوفناک در محدوده ۲ g/L – ۰.۱ را نشان می‌دهد. با افزایش میزان دوز جاذب از ۰.۱ g/L تا ۲، راندمان حذف و ظرفیت جذب به ترتیب از ٤٧.١٤% به ٩٢.٩% و ٠.٩٩ mg/g به ٦.٩٦ mg/g دیکلوفناک افزایش یافت. بنابراین دوز ۰.۵ g/L جاذب، به عنوان دوز بهینه انتخاب شد.



شکل ٤: طیف **FT-IR** نانوذرات **Fe_3O_4** و کامپوزیت **P_4VP @ Fe_3O_4**



شکل ۵: تاثیر مقادیر مختلف جاذب **$P_4VP – Fe_3O_4$** بر راندمان حذف دیکلوفناک در **pH** ۵، دمای **^0C** ۲۵، غلظت اولیه **mg/L** ۱۵ دیکلوفناک و با دور اختلاط **rpm** ۲۵۰ .

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

اثر pH نمونه

شکل ٦ نشان دهنده تاثیر pH (در محدوده ۹-۳) بر جذب دیکلوفناک به وسیله کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ است. با مشاهده نتایج اینگونه دریافت می‌شود که با افزایش pH از ۳ تا ۵، راندمان حذف دیکلوفناک از ۳۳.٥٤ به ۷۰.۰۹% افزایش می‌یابد. با ادامه روند افزایش pH، راندمان حذف دیکلوفناک در pH=۹ به ۱۷.۸۳% کاهش یافت. ظرفیت جذب از pH=۵ تا pH=۹ از ۹.۳۳ mg/g به ۱.٦۷ mg/g کاهش یافت. بنابراین pH=۵ به عنوان pH بهینه آزمایش انتخاب شد.

اثر غلظت اولیه دیکلوفناک

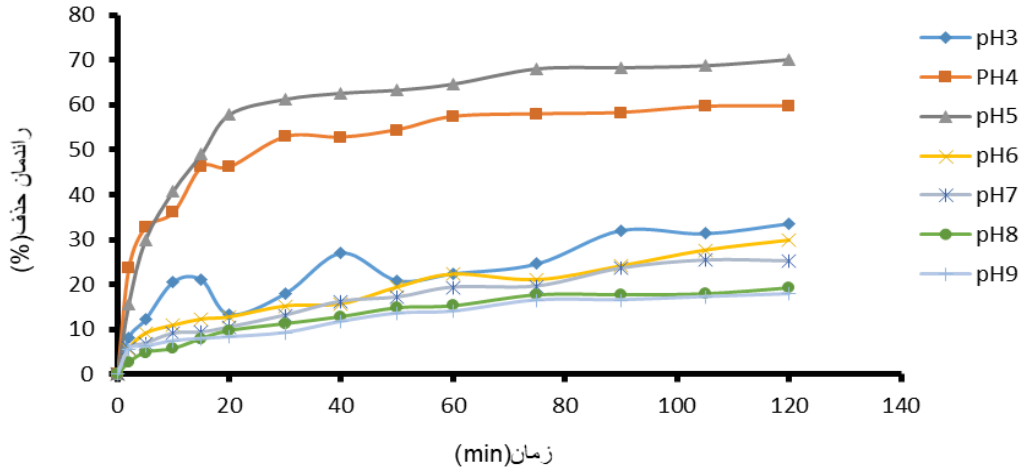
دیکلوفناک در غلظت‌های اولیه (۲-۳-٤-٥-۱۰-۱٥-۲۰ mg/L) بر روی کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ مورد بررسی قرار گرفت. شکل ۷ نشان می دهد که با افزایش غلظت اولیه دیکلوفناک از ۲ mg/L تا ۱٥ mg/L، راندمان حذف آلاینده توسط جاذب کاهش یافت و برای غلظت ۵ mg/L دیکلوفناک و در زمان ۷۵ دقیقه، به ۷۵.۵۳% رسید. بنابراین دیکلوفناک با غلظت اولیه ۵ mg/L به عنوان غلظت بهینه آزمایش انتخاب شد.

- اثر زمان تماس

بر اساس شکل ۷ می‌توان دریافت که میزان حذف دیکلوفناک تا غلظت ۱٥ میلی گرم بر لیتر و تا زمان ٤۰ دقیقه به سرعت در حال افزایش است. با افزایش زمان تماس تا ٤۰min راندمان حذف و ظرفیت جذب به ترتیب بیش از ۷۰% افزایش یافت و پس از آن به روند تقریبا ثابتی رسید. در نتیجه زمان تماس ٤۰ min به عنوان زمان بهینه آزمایش انتخاب شد.

اثر دما

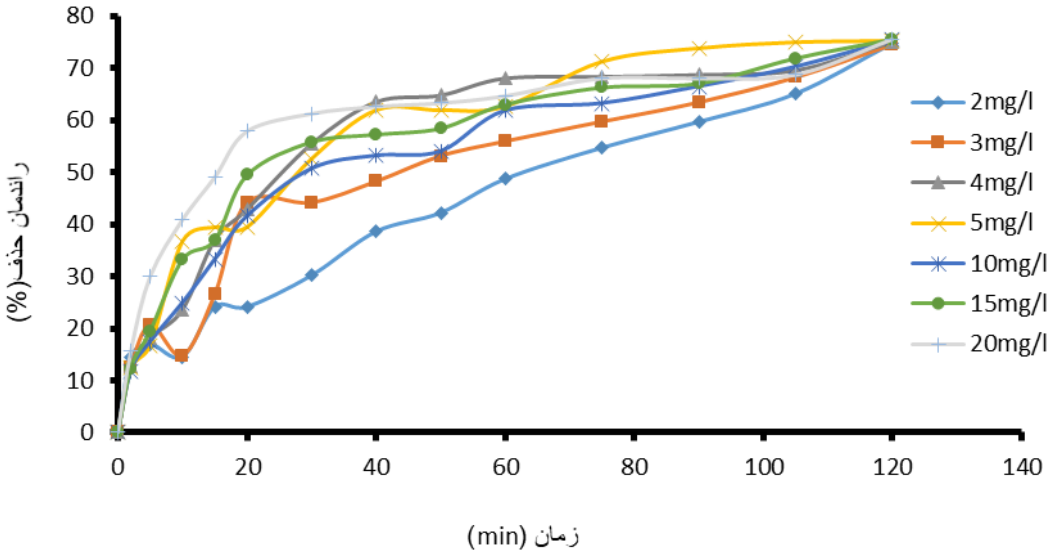
اثرات افزایش دماهای مختلف (^{0}C ۲٥-۳۰-٤۰) در جهت حذف دیکلوفناک مورد بررسی قرار گرفت. شکل ۸ نشان دهنده آن است که با افزایش دما از ۲٥ تا ٤۰ ^{0}C راندمان حذف دیکلوفناک کاهش یافت. بطوری که از دمای ۲٥ ^{0}C تا ۳۰ ^{0}C راندمان حذف از ۷۰.۰۹٪ به ٥۰.٤٦ ٪ و در نهایت در دمای ٤۰^{0}C به ٤۲.۷٥٪ رسید. ظرفیت جذب نیز از دمای ۲٥ ^{0}C تا ٤۰ ^{0}C از ۹.۳۳ mg/g به ۳.۸٤ mg/g کاهش یافت. بنابراین دمای ۲٥ °C به عنوان دمای بهینه آزمایش انتخاب شد.



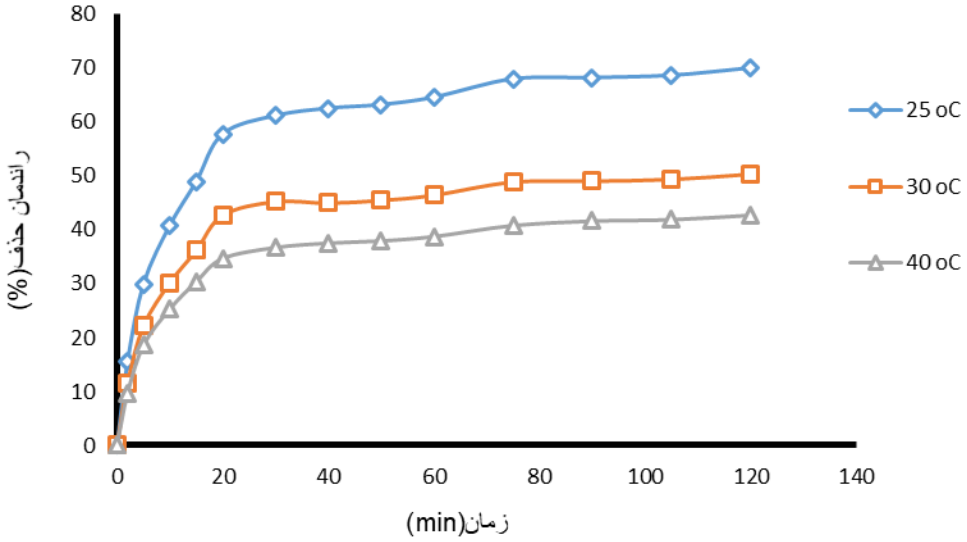
شکل ۶: تاثیر مقادیر مختلف pH بر راندمان حذف دیکلوفناک با دوز جاذب ۰.٥ g/L، غلظت اولیه ۱٥ mg/L دیکلوفناک ، دمای ۲٥ ^{0}C، و دور اختلاط ۲٥۰rpm .

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]



شکل ۷: تاثیر مقادیر مختلف غلظت‌های اولیه دیکلوفناک بر راندمان حذف با دوز جاذب ۰.۵ g/L در pH ۵، دمای ^{0}C ۲۵، و دور اختلاط ۲۵۰ rpm .



شکل ۸: تاثیر دماهای مختلف بر راندمان حذف دیکلوفناک با دوز جاذب ۰.۵ g/L، غلظت اولیه ۱۵ mg/L دیکلوفناک ،pH ۵ و دور اختلاط ۲۵۰ rpm.

اثر سرعت اختلاط

در شکل ۹ اثر سرعت اختلاط (۲۵۰ rpm–۲۰۰–۱۰۰) بر جذب دیکلوفناک بر روی نانو ذرات پارامغناطیس $P_4VP - Fe_3O_4$ ارائه شده است. جذب دیکلوفناک بر روی جاذب با افزایش دور اختلاط از ۱۰۰ تا ۲۵۰ دور در دقیقه با راندمان حذف ۳۸.۵۵ ٪ به ۸۰.۶۰% و ظرفیت جذب از ۱.۵۹ mg/g به ۹.۰۱ mg/g افزایش یافت. بنابراین دور اختلاط ۲۵۰ rpm به عنوان سرعت بهینه اختلاط بر جذب دیکلوفناک انتخاب شد.

اثر یون‌های مداخله‌گر

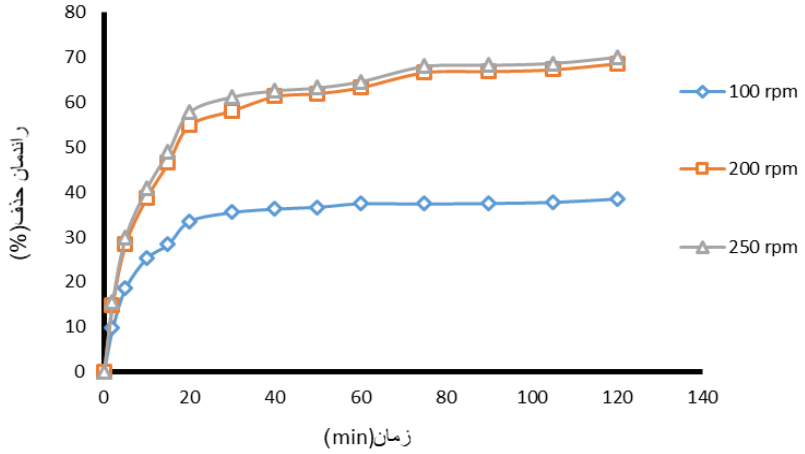
[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

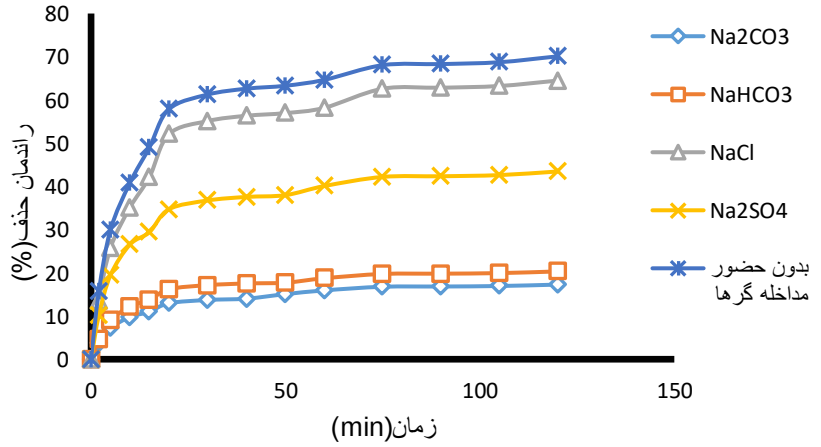
در این مطالعه به منظور بررسی اثر آنیون‌های مداخله‌گر بر جذب دیکلوفناک بر روی نانو ذرات پارامغناطیس $P_4VP - Fe_3O_4$ آنیون‌های کربنات، بی‌کربنات، سولفات و کلراید مورد بررسی قرار گرفتند. شکل ۱۰، حضور این یون‌ها باعث کاهش راندمان جذب دیکلوفناک بر روی جاذب شد. بطوری که بیشترین راندمان حذف و ظرفیت جذب را NaCl با ٦٤.٤٨% و ۷.۲۳ mg/g کمترین راندمان حذف را Na_2CO_3 به میزان ۱۷.۲۷% و ۱.۰۸ mg/g به خود اختصاص داد.

تعیین قابلیت استفاده مجدد جاذب $P_4VP - Fe_3O_4$

برای تعیین قابلیت استفاده مجدد جاذب $P_4VP - Fe_3O_4$ دیکلوفناک با دو غلظت ۱۰ mg/L و ۲۰، PH = ۵ ، زمان تماس ۷۵ min، دوز جاذب ۱ g/L استفاده شد. همان طور که در شکل ۱۱ مشاهده می‌شود، دیکلوفناک با غلظت ۱۰ mg/L نسبت به غلظت ۲۰ mg/L نتایج بهتری را نشان داد.



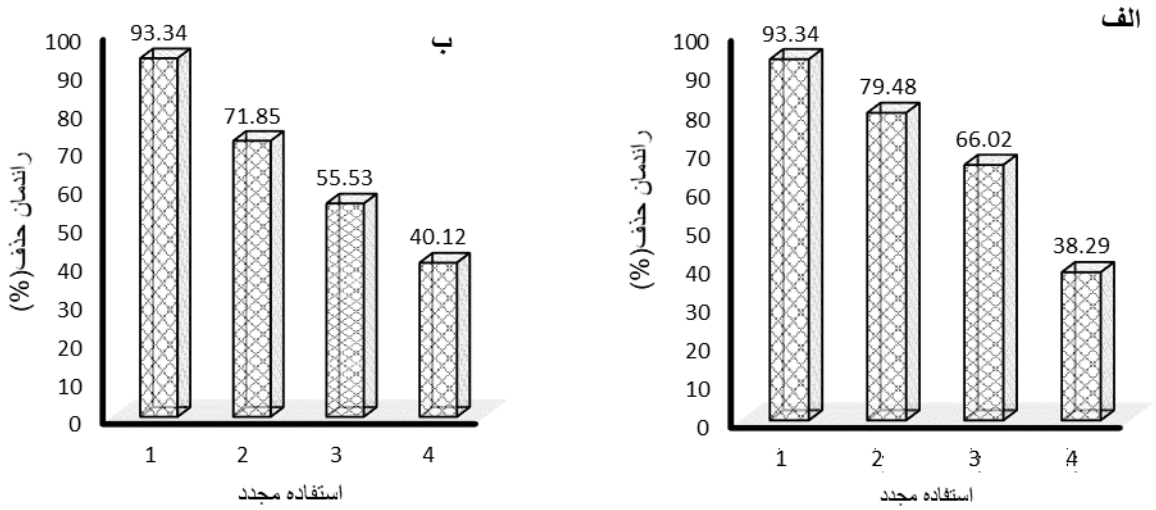
شکل ۹: تاثیر دورهای مختلف اختلاط بر راندمان حذف دیکلوفناک با دوز جاذب **g/L** ۰.۵، غلظت اولیه **mg/L** ۱۵ دیکلوفناک ،**pH** ۵، در دمای **°C** ۲۵ .



شکل ۱۰: تاثیر یون‌های مداخله‌گر بر راندمان حذف دیکلوفناک با دوز جاذب **g/L** ۰.۵، غلظت اولیه **mg/L** ۱۵ دیکلوفناک ،**pH** ۵، دمای **°C** ۲۵ و دور اختلاط **rpm** ۲۵۰

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]



شکل ۱۱: تعیین قابلیت استفاده مجدد جاذب $P_4VP - Fe_3O_4$ با دو غلظت **g/L** ۰.۵(الف) و ۰.۲۵(ب).

بحث

- ویژگی‌های جاذب کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ در حذف دیکلوفناک

هنگامی که نانو ذرات Fe_3O_4 با اندازه‌های کوچک توزیع می‌گردند، توزیع هسته‌های مغناطیسی همگن روی ماتریس پلیمری و بخش مگنتیت (از ۷۰ درصد)، با موفقیت بیشتری توسط امولسیون‌های کوچک پلیمریزاسیون صورت می‌گیرد. کامپوزیت غنی از گروه عاملی بر پایه N بدون هیچ گونه تغییر سطح و فراوانی هسته Fe_3O_4 با یک واکنش مغناطیسی قوی به منظور افزایش راندمان جداسازی می‌گردند. این ساختار برای تجمع و بازیافت سریع کاتالیزور پیچیده همگن بسیار مفید است. مونومر ٤- ونیل پیریدین، پلیمری است، بر روی سطح اسید اولئیک (OA) اصلاح شده با نانوذرات Fe_3O_4 به شکل نانواسپرس‌های کامپوزیت P_4VP/Fe_3O_4 که در آن نانوذرات Fe_3O_4 به صورت همگن در P_4VP پراکنده شده است. فراوانی گروه عاملی پیریدین P_4VP ممکن است از طریق تجمع کاتالیزور و افزایش فعالیت کاتالیزوری همچنین با توجه به ویژگی‌های پایه لوئیز خود برای برخی از واکنش‌های خاص، مانند اپوکسیداسیون از اولفین مفید باشد [۲۸]. این ویژگی‌ها باعث افزایش فعالیت کاتالیزوری و در نتیجه جداسازی سریع، قابل بازیافت و راندمان حذف بالا شده است، و می‌تواند به عنوان یک جاذب موثر و مفید مورد استفاده قرار بگیرد.

جذب داروها بر روی یک سطح جاذب خاص از طریق مکانیسم‌های فیزیکی و یا مکانیسم‌های تعاملی کنترل می‌گردد. جذب فیزیکی داروها بسته به سطح جاذب دارد. جذب تعاملی یک مسیر غالب در جذب ترکیبات دارویی است. چون داروها حاوی سایت‌های فعال مختلف مانند گروه‌های عاملی (– , –OH COOH , –NH2 , – CHO , =O , C=O , –NH , SO2=) و نقاط الکترواستاتیک حاوی اتم‌های ناهمگن (–F , –Cl,...) می‌باشند. جذب دارو ممکن است از طریق مکانیسم‌های تعاملی مانند نیروهای واندروالس، تعاملات الکترواستاتیک، پروتونه، تبادل یون، تعاملات دو قطبی- دوقطبی، پیوند هیدروژنی و مشتقات پیچیده رخ دهد. جذب تعاملی، نیز برهم‌کنش گروه عاملی جاذب و گونه دارویی است. گروه کربوکسیلیک (-COOH) تمایل بیشتری نسبت به

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

گروه های سیلانول قطبی (SiOH-) در سطح جاذب دارد. گروه کربونیل (C = O) به راحتی می‌تواند با گروه سطح OH- جاذب از طریق مکانیزم کاتیونی یا پیوند هیدروژنی وصل شوند. ظرفیت جذب وابسته به سطح BET جاذب می‌باشد. مواد پلیمری با توجه به توانایی احیاء خود، به عنوان یک جاذب جایگزین و مناسب برای ترکیبات دارویی آبگریز توصیه می‌گردند [۲۹].

سه مکانیسم برای جذب دیکلوفناک بر روی جاذب و مشتقات جاذب عامل‌دار آن وجود دارد. مکانیزم اول تعامل الکترواستاتیک (قانون کولن) بین دی پروتونه (بار منفی) مولکول دیکلوفناک و بار سطحی جاذب است. مکانیسم دوم پیوند هیدروژنی است، یک شکل از برهم‌کنش دو قطبی – دو قطبی و مکانیسم سوم برهم‌کنش آبگریزی است. اگر جاذب دارای بار سطحی مثبت باشد، انتظار می‌رود که با برهم‌کنش الکترواستاتیک، جذب دیکلوفناک بر روی جاذب افزایش یابد، و ظرفیت جذب افزایش یلبد. در مقابل مکانیزم دیگر (پیوند هیدروژنی و برهمکنش آبگریزی) واکنش‌های الکتریکی نقش مهمی، در جذب بیشتر دیکلوفناک بازی می‌کنند. یک توضیح احتمالی برای این یافته‌ها میل آنها به قرار گرفتن در آب است که در نتیجه رقابت بین مولکول‌های آب و دیکلوفناک برای جذب بر روی جاذب می‌باشد [۳۰].

اثر مقدار جاذب بر فرایند جذب

با توجه به شکل ۵، افزایش راندمان حذف با افزایش دوز جاذب به علت دسترسی به مساحت سطح بالا و فراوانی محل‌های جذب آزاد می‌باشد. با افزایش دوز جاذب کاهش دسترسی جزء جذب شونده در محل جذب و عدم اشباع سایت‌های فعال سطح جاذب در فاز محلول در پی خواهد بود [۱۶]. با توجه به نتایج حاصل این گونه تفسیر می‌شود که، دوز g/L ۰.۵ با راندمان حذف ۷۰.۰۹٪ به عنوان دوز بهینه جاذب برای بخش‌های دیگر مطالعه مورد استفاده قرار گرفت. در مطالعه Jodeh و همکاران (۲۰۱۶)، حذف دیکلوفناک سدیم با استفاده از جاذب (CTAC) در دوزهای g ۰.۷–۰.۰۱ با زمان جذب ۱۲۰ دقیقه مورد بررسی قرار گرفت. افزایش دوز جاذب در غلظت ثابت دیکلوفناک، باعث افزایش سایت‌های جذب دردسترس و در نتیجه افزایش میزان حذف دیکلوفناک می‌شود [۳۱]. در مطالعه Xian و همکاران (۲۰۱۶)، با بررسی اثر دوزهای مختلف (mL/L ۰.۲ تا mL/L ۱.٤) جاذب رزین MIEX بر حذف دیکلوفناک نشان داده شد که با افزایش دوز جاذب از mL/L ۰.۲ تا mL/L ۱ راندمان حذف دیکلوفناک از ۷۵.۸۱% به ۹۶.۱٤% رسید. با افزایش دوز تا mL/L ۱.٤ راندمان حذف به ۹۵.۰۷% رسید. نتایج نشان داد که وقتی دوز جاذب از ۱ به mL/L ۱.٤ افزایش یافت. راندمان حذف هیچ تغییر قابل ملاحظه‌ای نداشت با توجه نتایج به دست آمده، دوز mL/L ۱ به عنوان جاذب مطلوب تعیین گردید [۱۶]. اثر دوز جاذب‌های CTAC و Eucarbon در حذف دیکلوفناک با میزان g ۰.۱–۰.۷ در مطالعه Shehdeh وهمکاران (۲۰۱۶) نشان دهنده این بود که، درصد حذف دیکلوفناک با افزایش دوز برای هر دو نوع جاذب افزایش یافت. افزایش جذب با دوز g ۰.۷ بر روی CTAC تا ۸۲% و بر روی Eucarbon تا ۷۶% افزایش یافت. در واقع افزایش دوز جاذب در غلظت ثابت دیکلوفناک محل‌های جذب بیشتری را فراهم کرد و در نتیجه باعث افزایش میزان حذف دیکلوفناک گردید [۳۱]. در مطالعه ترابی حکم آبادی و همکاران (۱۳۹۵) دوز جاذب با غلظت‌های g/L ۰.٤–۲ از پودر کربن فعا ل شده با NH_4CL انتخاب شد. همانطور که مشاهده شد،غلظت g/L ۰.۸ با راندمان حذف ۸۱% به عنوان غلظت بهینه انتخاب شد که این میزان دوز بهینه جاذب اندکی از دوز بهینه جاذب مورد مطالعه بیشتر بود. [۳۲]

اثر زمان تماس بر فرایند جذب

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

اثر زمان تماس بر بر فرایند جذب دیکلوفناک توسط کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ در غلظت‌های اولیه مختلف (mg/L ۲۰-۱۵-۱۰-۵-٤-۳-۲) نشان داد که، میزان حذف دیکلوفناک تا غلظت mg/L ۵ و تا زمان ٤۰ دقیقه به سرعت افزایش یافت. سپس به روند تقریبا ثابتی رسید. می‌توان زمان ٤۰ دقیقه با راندمان حذف بیش از ۷۰% را به عنوان زمان تعادل در نظر گرفت. این امر در نتیجه وفور محل‌های جذب در آغاز زمان واکنش دانست و سطح خالی باقی مانده در نتیجه نیروهای دافعه میان مولکول‌های دیکلوفناک و جاذب به تدریج پر شده و بصورت توده انباشته می‌شود [۳۳]. در مطالعه Xiang و همکاران (۲۰۱۵)، با افزایش زمان تماس (از ۵ تا min ٦۰) راندمان حذف (۸٦.۵% به ۹۳.۳%) نیز افزایش یافت [۳٤]. در مطالعه Xian و همکاران (۲۰۱٦)، اثر زمان تماس بر جذب دیکلوفناک روی رزین MIEX به سرعت در مراحل اولیه افزایش و سپس کم شد. روند رو به افزایش تا یک حالت تعادل پس از ۹۰ دقیقه به دست آمد [۱٦]. جذب دیکلوفناک با استفاده از Cyclamen persicum مبتنی بر کربن فعال (CTAC) در مطالعه Shehdeh وهمکاران (۲۰۱٦) نشان داد که، میزان جذب دیکلوفناک بر روی جاذب‌های CTAC و Eucarbon با افزایش زمان تماس افزایش می‌یابد، جذب دیکلوفناک حدود ۱۲۰ دقیقه بر روی CTAC با راندمان حذف ۷۲% و ۱۵۰ دقیقه بر روی Eucarbon و رلندمان حذف ۷۰% بود [۳۱]. در مطالعه ترابی حکم آبادی و همکاران (۱۳۹۵) زمان تماس‌های مورد مطالعه min ۵۰،٤۰،۳۰،۲۰،۱۰،۵،۲،۱ انتخاب شد. همانطور که دریافت می‌شود، زمان تماس min ۱۰ با راندمان حذف ۸۱% به عنوان زمان تماس بهینه انتخاب شد [۳۲]. زمان تماس‌های انتخاب شده در مطالعه حاضر بیشتر بوده و تا min ۱۲۰ آزمایش ادامه یافته است.

اثر pH بر فرایند جذب

اثر اولیه pH (در محدوده ۹-۳) بر جذب دیکلوفناک به وسیله کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ در شکل ٦ نشان داده شد که می توان دریافت که در pH = ۵ ، دیکلوفناک عمدتا به حالت آنیونی در محلول حضور دارند. بنابراین با تبادل محل‌های فعال جاذب از محلول آبی حذف می‌شود. کاهش جذب در pHهای بالا می‌تواند در نتیجه رقابت یون‌های OH با آنیون‌های دیکلوفناک برای جذب در محل‌های فعال جاذب نسبت داد [۱٦،۳۳]. جذب در حالت خنثی و تبادل یون به علت تعامل بین مولکول‌های جذب شونده و سایت‌های فعال جاذب در این pHها تضعیف شده و منجر به کاهش ظرفیت جذب می‌شود [۱٦]. می‌توان pH =۵ با راندمان حذف ۷۰/۰۹% را به عنوان pH بهینه در نظر گرفت. آزمون‌های vivo نشان داد که بیشترین جذب دیکلوفناک در pH ۵ می‌باشد. با توجه به مقدار pKa، pH محلول تعادلی از ۲.۲ تا ۵.۷ افزایش یافت، و جذب دیکلوفناک به میزان کمی از ۷۷ تا۷۹ میلی مول در کیلوگرم افزایش یافت. در نتیجه افزایش pH محلول باعث کاهش جذب دیکلوفناک تا ۷۰ میلی مول در کیلوگرم در pH ۱۱ شد. از آنجایی که دیکلوفناک در pH کمتر از ٤ حلالیت کمی دارد. هنگامی که pH محلول بیش از مقدار pKa ماده حل شونده باشد، ماده حل شونده به شکل اولیه آن خواهد بود. در این صورت، دیکلوفناک دارای بار منفی و سطح جاذب دارای بار مثبت خواهد بود [۳۵]. در مطالعه Xiang و همکاران (۲۰۱۵)، اثر مقدار pH محلول بر راندمان حذف دیکلوفناک نشان داد که حداکثر مقدار در pH= ۵ و کاهش قابل توجهی در pH=۷ و کاهش آهسته‌تر در مقادیر pHهای بالا رخ داد. در pH پایین، وفور پروتون در محلول در جهت جذب دیکلوفناکدر سطح سایت‌های فعال جاذب است. با افزایش pH محلول، غلظت و توانایی رقابت پروتون‌ها کاهش می‌یابد و غالبا گروه‌های عاملی کربوکسیلی جدا می‌شوند. این فرایند برای جذب مطلوب نمی‌باشد. به عبارت دیگر اثر جذب در محلول اسیدی بهتر از محلول قلیایی است [۳٤]. در مطالعه Xian و

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

همکاران (۲۰۱۶)، جذب دیکلوفناک بر روی رزین MIEX در PH ۳-۱۱ مورد بررسی قرار گرفت. در PH ۵ تا ۹ دیکلوفناک حالت آنیونی در آب پیدا می‌کند. بنابراین آن را قادر می‌سازد که در تبادل با سایت‌های فعال رزین از آب حذف شود. عمدتا جذب در حلت خنثی و تبادل‌یونی به علت تعامل بین مولکول‌های جذب شونده و محل‌های فعال جاذب در این pHها تضعیف می‌گردد. کاهش شدید جذب در pH ۱۱ به علت ترکیب یون‌های OH^- با آنیون‌های دیکلوفناک بر روی سایت‌های فعال رزین می‌باشد. در این مطالعه بنابراین pH ۵ تا۹ به عنوان pH بهینه انتخاب گردید[۱۶]. انتخاب pH ۵ در این مطالعه می‌تولند تطابق با مطالعه حاضر را تائید کند. جذب دیکلوفناک بر عملکرد MoS_2 در مطالعه Zhang و همکاران(۲۰۱۶)، در pH محلول ۱۱-۳ مورد بررسی قرار گرفت. در این مطالعه نیز رلندمان حذف دیکلوفناک باافزایش pH کاهش یافت. در pH بین ۹ تا ۱۰ کاهش شدیدی مشاهده شد. وقتی pH > pKa باشد، از هیدرولیز دیکلوفناک جلوگیری شده و گونه منفی آن غالب می‌شود. هنگامی که پتانسیل زتا جاذب منفی باشد. باافزایش pH محلول (از ۳ تا ۱۱) کاهش می‌یابد. هنگامی که pH محلول بالاتر از نقطه ایزوالکتریک جاذب باشد. سطح جاذب یک بار منفی را حمل می‌کند. بنابراین گونه‌های دیکلوفناک با بار منفی را دفع می‌کند[۳۶]. در مطالعه ترابی حکم آبادی و همکاران (۱۳۹۵) که تحت عنوان بررسی حذف دیکلوفناک از محیط‌های آبی توسط کربن فعا ل شده با کلریدآمونیوم در محدوده pH ۲ تا ۱۰ pH کار کردند. در این مطالعه با افزایش pH از ۲ تا ٦ راندمان حذف از ۵۳/۵ به ۷۹% افزایش و با ادامه افزایش pH به ۱۰ راندمان تا ۳۵% کاهش یافت. بنابراین ٦= pH به عنوان pH بهینه انتخاب شد[۳۲]. نتایج این مطالعه به نتایج مطالعه حاضر نزدیک است. در بررسی تاثیر pH بر حذف دیکلوفناک با استفاده از Cyclamen persicum مبتنی بر کربن فعال (CTAC) در مطالعه Shehdeh و همکاران (۲۰۱۶)، pH بهینه برای جذب دیکلوفناک برای دو نوع جاذب ۲ بود، این نتیجه نشان داد که PH کمتر از pKa این دارو (pKa=٤.۲)، در حالت خنثی حلالیت آن در آب کاهش می‌یابد. به همین ترتیب کاهش pHاز طریق فرایندهای فیزیکی جذب باعث افزایش برهمکنش نیروی واندروالس بین دیکلوفناک و سطح جاذب می‌گردد[۳۱]. برای به دست آوردن تأثیر pH محلول بر جذب دیکلوفناک توسط جاذب، بطور کلی مقدار K_d ($K_d = CS / CL$) مرتبط با تابع جرمی (α) و تعاملات Kd به شرح زیر است:

رابطه (۱)

$$K_d = K_d{}^{Fe_3O_4-PVP+DC^{\circ}}\alpha^0 + K_d{}^{Fe_3O_4-PVP+DC^-}\alpha^-$$

اندیس $P_4VP - Fe_3O_4 + DC^0$ و $P_4VP - Fe_3O_4 + DC^-$ به ترتیب نشان دهنده تعاملات بین بار مثبت جاذب و خنثی مولکول دیکلوفناک و بار مثبت جاذب و آنیون دیکلوفناک است. این معادله نشان می دهد که تعاملات الکترواستاتیک نقش مهمی در جذب دیکلوفناک بر روی جاذب دارد[۳۵].

اثر غلظت اولیه دیکلوفناک بر فرایند جذب

غلظت اولیه دیکلوفناک نیروی محرکه لازم جهت مقابله با انتقال روی جاذب را فراهم می‌کند. این اثر، ناشی از افزایش نیروی محرکه است که در گرادیان غلظت‌های بالای جاذب ایجاد می‌شود. با افزایش غلظت اولیه دیکلوفناک درصد حذف جاذب به دلیل وجود مولکول‌های دیکلوفناک کاهش می‌یابد و سایت‌های جذب روی مواد جاذب محدود می‌شود[۱۶]. در حقیقت با افزایش مولکول‌های دیکلوفناک در محل‌های جذب جاذب محدودیت ایجاد شده و جاذب اشباع می‌شود.[۳۳] بنابراین می‌توان ۱۵ mg/L را به عنوان غلظت بهینه دیکلوفناک در نظر گرفت. در مطالعه Xian و همکاران (۲۰۱٦)، جذب دیکلوفناک بر روی رزین MIEX در غلظت‌های اولیه mg/L ۵-۱۰-۱۵ مشاهده شد که جذب دیکلوفناک به سرعت در مرحله اولیه افزایش و سپس کم شد.غلظت اولیه ۱۰ mg/L به

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

عنوان غلظت بهینه انتخاب شـــدند[16]. اثر غلظت‌های اولیه در جذب دیکلوفناک با اســتفاده از Cyclamen persicum مبتنی بر کربن فعـال (CTAC) در مطـالعـه Shehdeh و همکـاران (۲۰۱۶)، نشـــان داد که افزایش غلظت اولیه باعث افزایش درصـــد حذف دیکلوفناک، توســط جاذب‌های فوق گردید. با افزایش غلظت دیکلوفناک ســـدیم از ۲۰ mg/L به ۷۰ mg/L، درصـــد حذف از ٤۲% به ۸۱% برای CTAC و از ۳۰% تا ۷۷% برای Eucarbon افزایش یافت[31]. در مطالعه ترابی حکم آبادی و همکاران (۱۳۹۵) که تحت عنوان بررســـی حذف دیکلوفناک از محیط‌های آبی توســـط کربن فعال شـــده با کلریدآمونیوم غلظت دیکلوفناک در ســـه محدوده ۱۰، ۵۰ و ۱۰۰ mg/L انجام شـد. درغلظت ۵۰ mg/L با افزایش زمان تماس از ۱۰ تا ٤۰ min راندمان حذف از ٦۲/۵% به ۱۰۰% یافت. با افزایش غلظت به ۱۰۰ mg/L راندمان حذف در زمان تماس ۱۰ min به ۳۳% رســـید.غلظت ۵۰ mg/L به عنوان غلظت بهینه انتخاب گردید[32]. غلظت‌های دیکلوفناک انتخاب شـــده در این مطالعه در مقایســـه باغلظت‌های مطالعه حاضـــر بسیار بالا و در محدوده‌های محدود بودند.

اثر دما بر فرایند جذب

اثرات افزایش دماهای مختلف (۲۵-۳۰-٤۰ ^0C) در جهت حذف دیکلوفناک در شکل ۸ نشان داد که با افزایش دما از ۲۵ تا ٤۰ ^0C راندمان حذف دیکلوفناک کاهش یافت. افزایش دما باعث افزایش حلالیت در آب و در نتیجه باعث کاهش جذب و نیروی جاذبهدیکلوفناک شـــده و حذف دیکلوفناک کاهش می‌یابد[31]. بنابراین دمای ۲۵ ^0C با راندمان حذف ۷۰.۰۹ % به عنوان دمای بهینه این مطالعه انتخاب شـــد. در مطالعه Sun و همکـاران (۲۰۱٦)، اثرات دمـای بر روی جـذب دیکلوفنـاک لندک بود، افزایش دما از ۲۰ ^0C تا ٤۰ منجر به کاهش ظرفیت جذب دیکلوفناک از ۸۹ تا ٤ mg/g شـد. براســاس مطالعات انجـام شـــده جـذب دیکلوفنـاک بر روی جـاذب (CTAB micelles) دارای ماهیت اگزوترمیک اســـت[35]. در مطالعه Xiang و همکاران (۲۰۱۵)، افزایش دما باعث کاهش رلندمان حذف شد. دمای ۲۵ ^0C به عنوان دمای مناسب جهت حذف دیکلوفناک با نانولوله‌های کربنی چند جداره اصـــلاح شـــده با اسید نیتریک انتخاب شد[34]. اثر دما (در محدوده ٤۵-۱۵درجه سانتی‌گراد) بر جذبدیکلوفناک بر روی جاذب‌های CTAC و Eucarbonدر مطـالعـه Shehdeh وهمکـاران (۲۰۱٦)، مورد بررسی قرار گرفت. مشاهده شد که جذب دیکلوفناک سدیم با افزایش دما کاهش یافت. بالاترین درصـــد جذب در ۱۵ درجـه ســـانتیگراد CTAC بـه ۸۳/۵۸% و ۷٤% توســـط Eucarbon رســـید. در حقیقت افزایش دما ســـبب افزایش حلالیت در آب شده و کاهش فرایند جذب و نیروهای جاذبه بین دیکلوفناک به دنبال دارد[31]. در مطالعه ترابی حکم آبادی و همکـاران (۱۳۹۵) اثر دمـاهـای مختلف در فراینـد جـذب دیکلوفناک توسط کربن فعا ل شده با کلریدآمونیوم نشان داد که با افزایش دما از ۱۰ به ۲۰ درجه سانتی‌گراد راندمان حذف از ۷۳ به ۸۰% افزایش یافت. اما با افزایش دما تا ٤۰ درجه ســـانتی‌گراد راندمان به ٦۵.۷% کاهش یافت[32]. این نتایج مشابه، نتایج مطالعه حاضر است. مشاهده شد که افزایش دما نتایج معکوسی در فرایند جذب دیکلوفناک دارد.

اثر سرعت اختلاط بر فرایند جذب

اثر ســـرعـت اختلاط (۱۰۰-۲۰۰-۲۵۰ rpm) بر جـذب دیکلوفناک بر روی نانو ذرات پارامغناطیس $P_4VP - Fe_3O_4$ در شـکل ۹ نشـان داد که، جذب دیکلوفناک بر روی جاذب با افزایش دور اختلاط از ۱۰۰ تـا ۲۵۰ دور در دقیقـه افزایش یافت.این افزایش جذب می‌تواند به کاهش ضـــخامت لایه مرزی پوشیده شده با ذرات جاذب نسبت داده شود و منجر به تقویت جذب دیکلوفناک گردد[33]. جذب دیکلوفناک بر روی رزین MIEX در مطالعه Xian و همکاران(۲۰۱٦)، نشـــان داد که با افزایش ســـرعت اختلاط از ۵۰ تا ۱۰۰ دور در دقیقه

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

ظرفیت جذب به ٦.٦٧ mg/mL رسید. با افزایش سرعت اختلاط از ۵۰ به ۱۵۰ دور در دقیقه حداکثر جذب به mg/mL ۹/۳۵ رسید. در این مطالعه سرعت اختلاط ۱۵۰ دور در دقیقه به عنوان سرعت اختلاط بهینه انتخاب شد[۱۶].

اثر یون‌های مداخله‌گر بر فرایند جذب

بطور طبیعی آب دارای آنیون‌های متعددی می‌باشد که در نتیجه رقابت برای نشستن در سایت‌های جذب باعث کاهش حذف می‌شوند[۱۶]. در این مطالعه به منظور بررسی اثر آنیون‌های مداخله‌گر بر جذب دیکلوفناک بر روی نانو ذرات پارامغناطیس $P_4VP - Fe_3O_4$ آنیون‌های کربنات، بی‌کربنات، سولفات و کلراید مورد بررسی قرار گرفتند (شکل ۱۰). بطور کلی آنیون‌هایی با ظرفیت بالا (مانند سولفات و کربنات) اثر تداخلی بیشتری نسبت به آنیون‌هایی با ظرفیت کم (کلراید و بی‌کربنات) دارند[۱۶]. حضور این یون‌ها باعث کاهش راندمان جذب دیکلوفناک بر روی جاذب شد. در این مطالعه اثر آنیون‌ها بر کاهش جذب دیکلوفناک برروی جاذب به ترتیب عبارتند از : $HCO_3^- > CO_3^{-2} > SO_4^{-2} > CL^-$

در مطالعه Xian و همکاران، نیز حضور این یون‌ها منجر به تضعیف جذب دیکلوفناک در رزین MIEX شده بود. در نتیجه رقابت بین دیکلوفناک و آنیون‌ها با ظرفیت بالا مانند سولفات و کربنات در محل‌های سطح جاذب مشاهده شد[۱۶].

$$SO_4^{-2} > CO_3^{-2} > OH^- > NO_3^- > HCO_3^- > CL^-$$

مطالعات جذب

- مطالعات ایزوترم جذب

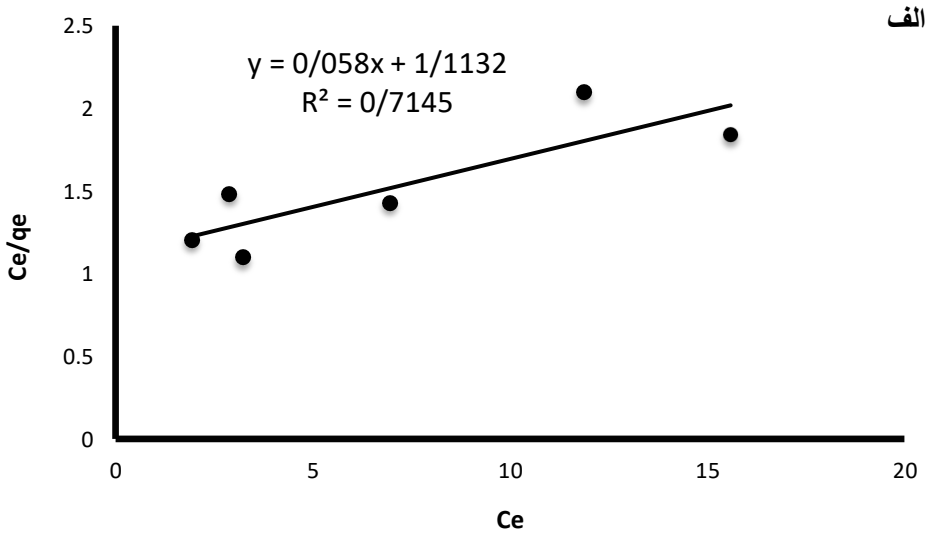
بررسی معادلات سینتیکی جذب دیکلوفناک با $P_4VP - Fe_3O_4$ و مقایسه ضریب همبستگی مدل فروندلیچ (R^2 >۰/۹۵٦)و مقادیر به دست آمده برای مدل لانگمیر (R^2 > ۰/۷۱٤) و در مدل تمکین (R^2 > ۰/۹۲۹) مشخص شد که جذب دیکلوفناک بر روی جاذب سنتز شده از ایزوترم فروندلیچ پیروی می‌کند (جدول ۲، شکل ۱۲). ایزوترم فروندلیچ نشان می‌دهد که جذب با افزایش غلظت دیکلوفناک سدیم در سیستم‌های چند لایه نسبت به سیستم تک لایه افزایش می‌یابد. بنابراین جذب مطلوب زمانی رخ می‌دهد که ثابت فروندلیچ (n) بین ۱ تا ۱۰ باشد. هنگامی که n بالاتر از آن محدوده باشد، تعامل قوی میان جاذب و جزء جذب شونده بوجود می‌آید. از آنجایی که در این مطالعه n بین ۱ تا ۱۰ قرار دارد نشان دهنده این است که جذب دیکلوفناک بر روی جاذب $P_4VP - Fe_3O_4$ مناسب است. یافته ها حاکی از آن است که جذب فیزیکی چند لایه‌ای بین جسم جذب شونده (دیکلوفناک) و سطح جاذب ($P_4VP-Fe_3O_4$) بوجود آمده است[۳۱]. در مطالعه Xian و همکاران (۲۰۱٦)، در جذب دیکلوفناک بر روی رزین MIEX برتری مدل فروندلیچ (R^2 >۰.۹۸) نسبت به مدل لانگمویر (R^2 >۰.۹۰) مشاهده شد[۱۶]. توصیف ایزوترم جذب در مطالعه Shehdeh و همکاران (۲۰۱٦)، با استفاده از مدل لانگمویر (R^2 >۰.۹۵) و فروندلیچ (R^2 >۰.۹۹) نشان داد که مقادیر R^2 در ایزوترم فروندلیچ از ایزوترم لانگمویر بیشتر است. بنابراین از ایزوترم فروندلیچ پیروی کرد[۳۱]. پیروی از مدل ایزوترمی فروندلیچ در جذب دیکلوفناک توسط سیلیکای مزوپور SBA-15 در مطالعه Tung و همکاران (۲۰۰۹) نیز اثبات شد[۳۷]. در مطالعه Xiang و همکاران (۲۰۱۵)، حذف دیکلوفناک با نانولوله‌های کربنی چند جداره اصلاح شده با اسید نیتریک نیز از ایزوترم فروندلیچ تبعیت کرد[۳٤]. این نتایج با نتایج مطالعه حاضر مطابقت دارد.

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

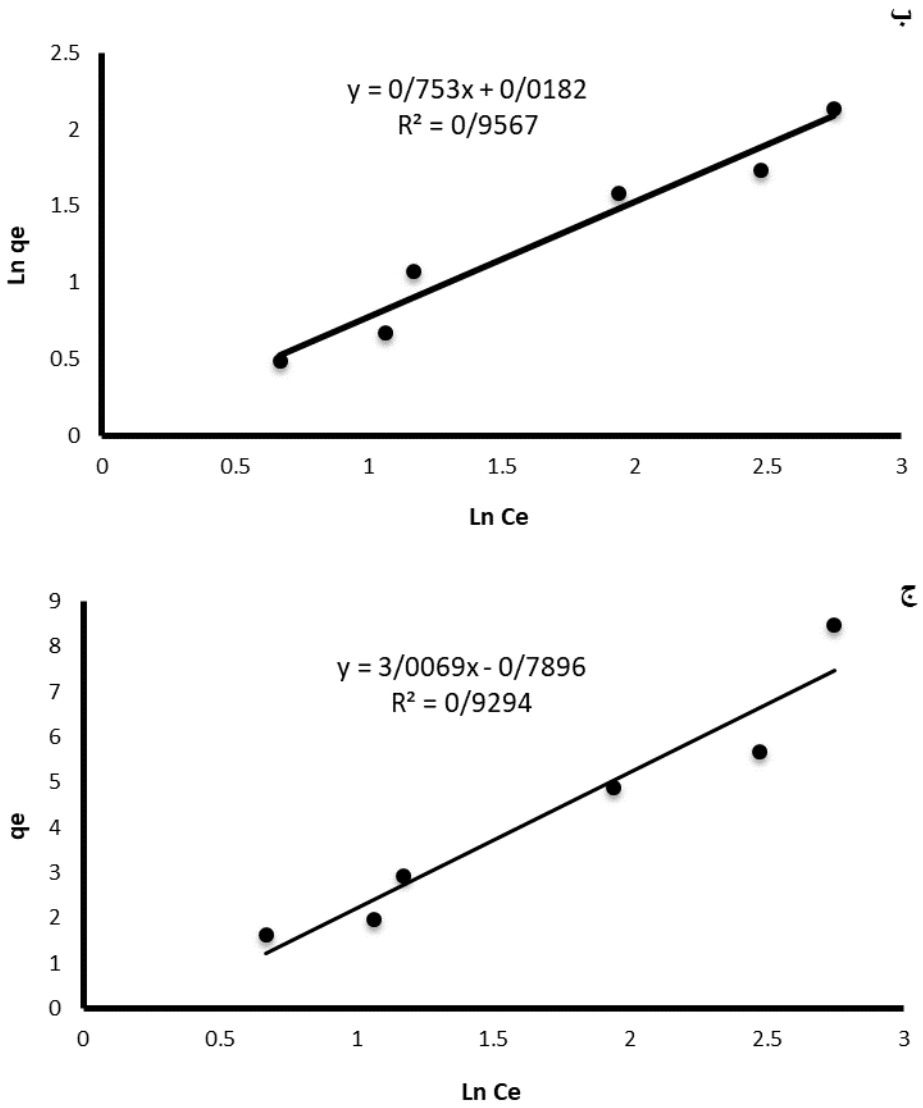
جدول۲: پارامترهای ایزوترم‌های جذب دیکلوفناک توسط **P_4VP-Fe_3O_4** در دماهای مختلف

مدل لانگمویر	دما(کلوین)	q_m	K_L	R^2
	۲۹۸	۱۷.۲٤۱	۰.۰۵۲	۰.۷۱٤
مدل فروندلیچ	دما(کلوین)	K_F	1/n	R^2
	۲۹۸	۱.۰۱۸	۰.۷۵۳	۰.۹۵٦
مدل تمکین	دما(کلوین)	A_T	b_T	R^2
	۲۹۸	۰.۷٦۸	۸۲۵.۸۵۷	۰.۹۲۹



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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]



شکل ۱۲: ایزوترم لانگمویر (الف)، فروندلیچ (ب)، تمکین (ج).

مطالعات سینتیکی جذب

بررسی معادلات سینتیکی جذب دیکلوفناک با - P_4VP Fe_3O_4 و مقایسه ضریب همبستگی معادله شبه درجه اول (R^2 > ۰.۹٤٤)، معادله شبه درجه دوم (R^2 > ۰.۹۷٦) و معادله درون ذره‌ای (R^2 > ۰.۹۳٦) مشخص شد که جذب دیکلوفناک بر روی جاذب ذکر شده از معادله شبه درجه دوم با R^2 =۰.۹۷٦ تبعیت می‌کند (جدول ۳، شکل ۱۳). سینتیک شبه درجه دوم یا مرحله نفوذ لایه‌ای نشان می‌دهد که جذب شیمیایی مکانیسم غالب و کنترل کننده در فرایند جذب سطحی بوده و بر مبنای جذب فاز جامد بیان می‌کند که جذب شیمیایی مرحله کند کننده فرایند جذب سطحی است. در مطالعه Czech و همکاران (۲۰۱٦)، در بررسی سینتیکی جذب دیکلوفناک بر روی از نانو لوله‌های کربنی (CNT) از مدل شبه درجه دوم پیروی کرد[۳۸]. سینتیک جذب شبه درجه دوم در مطالعه Lawrence و همکاران (۲۰۱٦)، نشان دهنده جذب شیمیایی و اتصال مولکول‌های هدف به دو یا چند

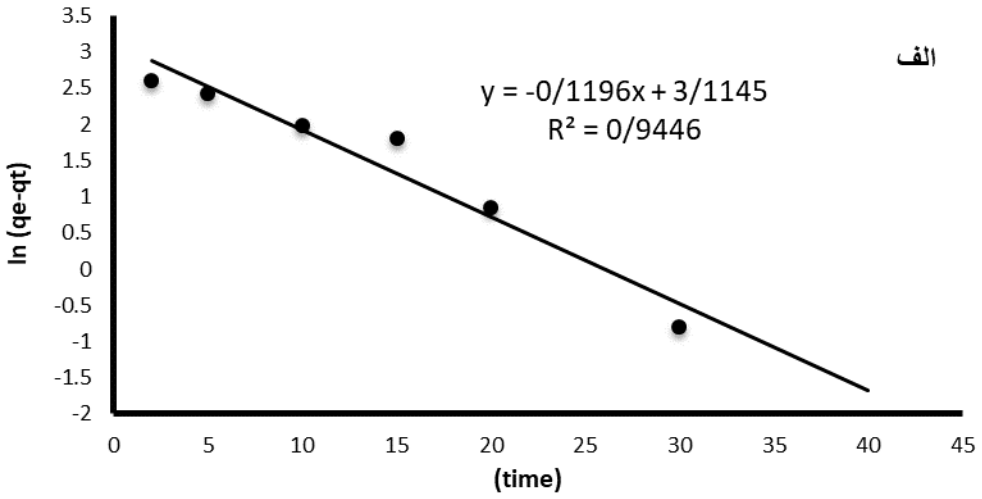
[Downloaded from jehe.abzums.ac.ir on 2026-11-08]

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

سایت فعال در سطح پلیمر است [۳۹]. فرایند جذب دیکلوفناک بر روی نانولوله‌های کربنی چند جداره اصلاح شده با اسید نیتریک در مطالعه Xiang و همکاران (۲۰۱۵) [۳٤]، جذب دیکلوفناک با فیبر PPy یا سلولزی در مطالعه Bruna و همکاران (۲۰۱۷) [٤۰] و در مطالعه Álvarez و همکاران (۲۰۱۵) [٤۱]. از سینتیک جذب شبه درجه دوم پیروی کرد. سینتیک جذب دیکلوفناک بر عملکرد MoS_2 در مطالعه Zhang و همکاران (۲۰۱٦)، با توجه به مقادیر R^2 استفاده از مدل شبه درجه دوم بهتر از مدل شبه درجه اول می‌باشد. این نتیجه نشان می‌دهد که فرایند جذب دیکلوفناک در MoS_2 تحت تأثیر جذب شیمیایی و ظرفیت جذب متناسب با تعداد سایت‌های فعال در جاذب است [۳٦]. جذب دیکلوفناک بااستفاده از کربن فعال تهیه شده از هسته زیتون در مطالعه Larous وهمکاران (۲۰۱٦)،از مدل سنتیک شبه درجه دوم تبعیت کرد [٤۲]. مدل سنتیک شبه درجه دوم در جذب دیکلوفناک توسط سیلیکای مزوپور SBA-15 در مطالعه Tung و همکاران (۲۰۰۹) [۳۷]. و حذف دیکلوفناک با نانولوله‌های کربنی چند جداره اصلاح شده با اسید نیتریک در مطالعه Xiang و همکاران (۲۰۱۵) نیز مشاهده شد [۳٤]. نتایج این مطالعات مطابق با نتایج مطالعه حاضر دارد.

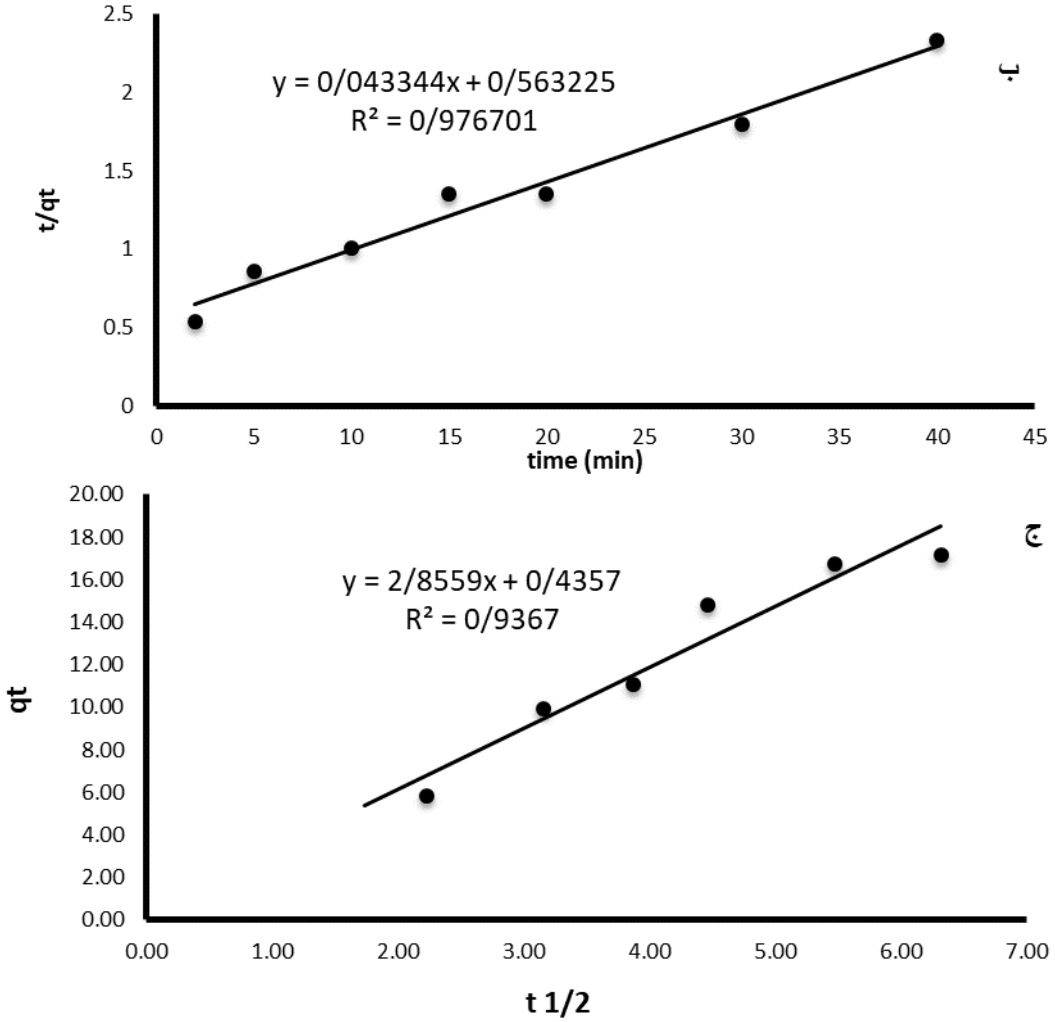
جدول ۳: پارامترهای سینتیک جذب دیکلوفناک با نانوجاذب **P4VP-Fe3O4**

معادله شبه درجه اول	C_0(mg/L)	$q_{e,exp}$(mg/mL)	$K_{1(1/min)}$	R^2
	۱۵	۲۲.۵۲۲	۰.۱۱۹	۰.۹٤٤
معادله شبه درجه دوم	C_0(mg/L)	$q_{e,exp}$(mg/mL)	$K_{2(mg/mL/min)}$	R^2
	۱۵	۲۳.۰۷۳	۰.۰۰۳	۰.۹۷٦
معادله انتشار درون ذره‌ای	C_0(mg/L)	$q_{e,exp}$(mg/mL)	$K_{Id(1/min)}$	R^2
	۱۵	۰.٤۳٦	۲.۸۵۰	۰.۹۳۷



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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]



شکل ۱۳: نمودارهای سینتیک شبه درجه اول (الف)، سینتیک شبه درجه دوم (ب)، نفوذ درون ذره‌ای وبر- موریس (ج).

۳-۶-۴ مطالعات ترمودینامیکی جذب

مطالعات ترمودینامیکی جذب اطلاعات زیادی در مورد انرژی‌های داخلی طی فرآیند جذب فراهم می‌کند [۱۶]. براساس پارامترهای کمی بدست آمده از جدول ٤، میزان آنتالپی استلندارد (ΔH^0) و انرژی آزاد گیبس (ΔG^0) منفی و میزان آنتروپی استاندارد (ΔS^0) مثبت است. منفی بودن (ΔH^0) نشانه گرماده بودن فرایند جذب دیکلوفناک بر روی جاذب سنتز شده است. به عبارت دیگر افزایش دما تاثیر منفی بر فرایند جذب دارد(برتری دمای ۲۵ به ^0C ٤٠) و مقادیر منفی انرژی آزاد گیبس نیز نشان دهنده خود به خودی بودن فرایند جذب دیکلوفناک با نانوجاذب $P_4VP - Fe_3O_4$ می‌باشد. مقادیر مثبت آنتروپی استاندارد (ΔS^0) هم بیان می‌کند که راندمان با افزایش دما در فاز مشترک جامد و مایع در طول فرایند جذب افزایش می‌یابد. هنگامی که درجه حرارت افزایش می‌یابد. جذب مواد دارویی به دلیل افزایش حلالیت در آب و تبادل انرژی کاهش می‌یابد. همچنین کاهش نیروی جاذبه موجب افزایش تحریک مواد شیمیایی حل شده و کاهش برهمکنش فیزیکی با جاذب می‌گردد. فرایندهای گرماده نشان می‌دهند که کاهش جذب باتوجه به افزایش دما باعث انتقال گرما به سیستم شده و تعادل به سمت مخالف واکنش حرکت می‌کند. از آنجایی که

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

میزان ΔH^0 کمتر از ٤٠ kJ/mol است، نشان دهنده یک فرایند فیزیکوشیمیایی است. تغییر انرژی آزاد نیز نشان دهنده یک فرایند خودبه خودی است. که بستگی به درجه حرارت دارد [٣١]. در بررسی جذب دیکلوفناک از محلول آبی مبتنی بر Cyclamen persicum کربن فعال توسط Shehdeh و همکاران (٢٠١٦)، مقادیر ΔH^0 و ΔG^0 منفی بود. نشان دهنده این است که جذب دیکلوفناک بر روی جاذب یک فرایند گرماده و خود به خودی است [٣١]. در مطالعه Xiang و همکاران (٢٠١٥)، نیز فرایند جذب دیکلوفناک بر روی نانو لوله‌های کربنی چند جداره اصلاح شده با اسید نیتریک به صورت یک فرایند گرماده گزارش شد [٣٤]. جذب دیکلوفناک بر روی رزین MIEX در مطالعه Xian و همکاران (٢٠١٦)، در دماهای ١٥-٢٥-٣٥ درجه سانتی‌گراد مورد بررسی قرار گرفت. در این مطالعه ΔH^0 مثبت، ΔS^0 مثبت و ΔG^0 منفی بود. این مطالعه نشان‌دهنده گرماگیر و خود به خودی بودن واکنش جذب است. مقادیر مثبت ΔS^0 هم بیان می‌کند که راندمان با افزایش دما در طول فرایند جذب افزایش می‌یابد [١٦]. به عنوان یک قاعده کلی، مقدار ΔG^0 بین ٠ تا kJ/mol ٢٠- جذب فیزیکی و بین ٨٠- تا kJ/mol ٤٠٠- جذب شیمیایی است [٤٣]. در مطالعه حاضر ΔG^0 (١٤-) بین ٠ تا kJ/mol ٢٠- قرار داشت. بنابراین جذب دیکلوفناک بر روی نانو ذرات پارامغناطیس $P_4VP - Fe_3O_4$ یک فرایند فیزیکی است. جذب دیکلوفناک با استفاده از Cyclamen persicum مبتنی بر کربن فعال (CTAC) در مطالعه Shehdeh وهمکاران (٢٠١٦)، که در دماهای ٣٥،٢٥،١٥ و ٤٥ انجام شد. ΔH^0 ١٧.٤٥ kJ/mol- و ΔG^0 منفی و ΔS^0 j/mol. k ٥٠.٠٨- بود. این مطالعه یک فرایند گرماده و خود به خودی است. رلندمان حذف نیز با افزایش دما در طول فرایند جذب کاهش می‌یابد [٣١]. در مطالعه Xiang و همکاران (٢٠١٥)، حذف دیکلوفناک با نانولوله‌های کربنی چند جداره اصلاح شده با اسید نیتریک ΔH^0 برابر kJ ١٧.٩٤- و ΔS^0 برابر J/K ٤٥.٧٨ بود. منفی بودن ΔH^0 و ΔG^0 نشان‌دهنده این است که جذب دیکلوفناک بر روی نانولوله‌های کربنی چند جداره اصلاح شده با اسید نیتریک اگزوترمیک و خودبخودی است. در واقع جذب دیکلوفناک در دماهای بالا کاهش می‌یابد. مقادیر مثبت ΔS^0 نیز نشان می‌دهد که راندمان حذف با افزایش دما افزایش می‌یابد [٣٤]. این نتایج با نتایج مطالعه حاضر مطابقت دارد.

جدول ۴: پارامترهای ترمودینامیک جذب دیکلوفناک با نانوجاذب **P_4VP-Fe_3O_4** در دماهای مختلف

T (K)	LnKd	ΔS^0	ΔG^0(KJ/mol)	ΔH^0
٢٩٨	٥.٨٢٩	٤٥.٤٧٧	-١٤.٤٤٢	-٠.٠٧٠٣
٣٠٣	٥.٧٤١		-١٤.٤٦١	
٣١٣	٥.٧٠٠		-١٤.٨٣٢	

تعیین قابلیت استفاده مجدد $P_4VP - Fe_3O_4$

یک پارامتر مهم در کاربردهای تجاری، به ویژه برای اثربخشی هزینه‌ها بازیافت جاذب می‌باشد [٤٤]. از این رو استفاده مکرر از جاذب یکی از عوامل کلیدی در بهبود فرایند اقتصادی تصفیه فاضلاب می‌باشد [٢]. برای تعیین قابلیت استفاده مجدد جاذب برای استفاده‌های بعدی، برای حذف دیکلوفناک،از تکنیک‌های شستشو برای بازیابی جاذب می‌توان از حلال‌های ساده استفاده کرد [٤٤]. همان طور که در شکل ١١ مشاهده می‌گردد، راندمان حذف و ظرفیت جذب پس از هر

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

مرحله تا حدودی کاهش می‌یافت. از نظر علمی این روند کاملا منطقی می‌باشد. با توجه به نتایج حاصل پیشنهاد می‌گردد، کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ به دلیل دارا بودن مزایایی چون جداسازی ساده و سریع، قابل بازیافت، و از نظر اقتصادی مقرون به صرفه و راندمان حذف بالا می‌توانند به عنوان یک جاذب موثر و مفید در جذب دیکلوفناک از محلول‌های آبی مورد استفاده قرار بگیرد. جاذب‌های پلیمری ظرفیت جذب پایین‌تری در مقایسه با کربن فعال یا جاذب‌های مزوپور دارند، اما این جاذب‌ها دارای مزایای خاصی هستند. این مواد پلیمری کاربردهای بالقوه در تصفیه آب به عنوان جایگزین کربن فعال با توجه به مقاومت مکانیکی و سطح بزرگ شان می‌باشند. جاذب‌های پلیمری مقاومت مکانیکی بالایی دارند و توزیع یکسان اندازه منافذ و توانایی بازیابی آسان در شرایط ضعیف را دارند. به رسوب مقاوم هستند و ماندگاری بالا تا ۲۰۰۰ سیکل بازیابی را دارند. بر خلاف کربن فعال که به طور منظم نیاز به بازیابی دارند. جاذب‌های پلیمری می‌تواند به صورت یونی و یا آبگریزی با توجه به جهت حذف قطبی و غیرقطبی داروها از آب اصلاح شوند[۲۹]. نتایج مشابهی را می‌توان در مطالعه انجام شده در حذف دیکلوفناک با استفاده از اکسید فعال کربن دنبال کرد[۴۴]. نتایج حاصل از مطالعه Dai و همکاران، در حذف انتخابی دیکلوفناک از آب آلوده با استفاده از میکروسفیرهای پلیمری مولکولی حک شده نشان داد که MIP بارها و بارها می‌تواند، استفاده شود. و بازیابی آسان MIP در بیش از چندین مرحله جذب یا دفع در بسیاری از برنامه‌های کاربردی در مقیاس بزرگ در مقایسه با استفاده تنها از کربن فعال (که بازیابی دشوار و تمایل به اشباع در بارگذاری پایین‌تر دارد) می‌تواند سودمند باشد[۲].

نتیجه‌گیری

در بررسی کارایی سنتز و رفتار کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ به منظور بررسی جذب و جلوگیری از حضور دیکلوفناک در محیط‌های آبی، بر اساس نتایج بدست آمده از پیش‌بینی پاسخ‌های انتخاب شده وابسته به پارامترهای فرآیند مورد مطالعه (ظرفیت جذب و رلندمان حذف دیکلوفناک)، می‌توان این طور توضیح داد که با توجه به متغیرهای مستقل (pH، زمان واکنش، غلظت دیکلوفناک و غلظت جاذب)، راندمان حذف دیکلوفناک در شرایط مختلف، بهبود یافت. جذب مطلوب دیکلوفناک توسط کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$، با برهم‌کنش اثرات الکترواستاتیک، پیوندهای محکم $\pi-\pi$ بین حلقه بنزنی دیکلوفناک و جاذب و برهمکنش جذب دیکلوفناک با جاذب عامل‌دار تفسیر کرد. لذا کامپوزیت $P_4VP - Fe_3O_4$ به دلیل دارا بودن مزایایی چون جداسازی ساده و سریع، قابل بازیافت، مقرون به صرفه و راندمان حذف بالا می‌توانند به عنوان یک جاذب موثر و مفید در جذب دیکلوفناک از محیط‌های آبی مورد استفاده قرار بگیرد. همان طور که مشاهده شد، شرایط مطلوب برای حذف دیکلوفناک در غلظت‌های پایین آلاینده و دما و غلظت‌های بالای دوز جاذب و سرعت اختلاط و بدون حضور آنیون‌های مداخله‌گر و در PH اسیدی رخ خواهد داد. براساس نتایج ایزوترم و سینتیک جذب، دیکلوفناک از ایزوترم فروندلیچ و مدل سینتیکی شبه درجه دوم تبعیت می‌کند ($R^2 > ۰/۹۹$). همچنین نتایج ترمودینامک نیز بیانگر یک واکنش گرماده و خود به خودی است.

تقدیر و تشکر

نویسندگان این مقاله بر خود لازم می دانند از دانشگاه علوم پزشکی البرز به جهت حمایتهای مالی این طرح تحقیقاتی (کد طرح: ۱۳۹٤-۰۱-۰۵-۱۱۸۱) تشکر و قدردانی نمایند.

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

Reference

1. Zhang H, Du Z, Ji Y, Mei M. Simultaneous trace determination of acidic non-steroidal anti-inflammatory drugs in purified water, tap water, juice, soda and energy drink by hollow fiber-based liquid-phase microextraction and ultra-high pressure liquid chromatography coupled to tandem mass spectrometry. Talanta 2013;109: 177-84.

2. Dai C-m, Geissen S-U, Zhang Y-l, et al. Selective removal of diclofenac from contaminated water using molecularly imprinted polymer microspheres. Environ Pollut 2011ک59(6):11660-6.

3. Zhang Y, Geißen S-U, Gal C. Carbamazepine and diclofenac: removal in wastewater treatment plants and occurrence in water bodies. Chemosphere 2008;73(8):1151-61.

4. Vieno N, Sillanpää M. Fate of diclofenac in municipal wastewater treatment plant—a review. Environ Int 2014;69:28-39.

5. Tiwari D, Lalhriatpuia C, Lee S-M. Hybrid materials in the removal of diclofenac sodium from aqueous solutions: Batch and column studies. J Ind Eng Chem 2015;30:167-73.

6. Beltrán FJ, Pocostales P, Alvarez P, Oropesa A. Diclofenac removal from water with ozone and activated carbon. J Hazard Mater 2009;163(2): 768-76.

7. Perisic DJ, Gilja V, Stankov MN, et al. Removal of diclofenac from water by zeolite-assisted advanced oxidation processes. J Photochem Photobiol A 2016;321:238-47.

8. Kosjek T, Heath E, Krbavčič A. Determination of non-steroidal anti-inflammatory drug (NSAIDs) residues in water samples. Environ Int 2005;31(5):679-85.

9. Nam S-W, Jung C, Li H, et al. Adsorption characteristics of diclofenac and sulfamethoxazole to graphene oxide in aqueous solution. Chemosphere 2015;136:20-6.

10. Lee CH, Shin Y, Nam MW, et al. A new analytical method to determine non-steroidal anti-inflammatory drugs in surface water using in situ derivatization combined with ultrasound-assisted emulsification microextraction followed by gas chromatography–mass spectrometry. Talanta 2014;129:552-9.

11. Dawod M, Breadmore MC, Guijt RM, Haddad PR. Counter-flow electrokinetic supercharging for the determination of non-steroidal anti-inflammatory drugs in water samples. J Chromatogr A 2009;1216(15):3380-6.

12. Yu H, Nie E, Xu J, et al. Degradation of diclofenac by advanced oxidation and reduction processes: kinetic studies, degradation pathways and toxicity assessments. Water Res 2013;47(5):1909-18.

13. Hartmann J, Bartels P, Mau U, et al. Degradation of the drug diclofenac in water by sonolysis in presence of catalysts. Chemosphere 2008;70(3):453-61.

14. Hasan Z, Khan NA, Jhung SH. Adsorptive removal of diclofenac sodium from water with Zr-based metal–organic frameworks. Chem Eng J 2016;284:1406-13.

15. Sotelo J, Rodríguez A ,Álvarez S, García J. Removal of caffeine and diclofenac on activated carbon in fixed bed column. Chem Eng Res Design 2012;90(7):967-74.

16. Lu X, Shao Y, Gao N, et al. Adsorption and removal of clofibric acid and diclofenac from water with MIEX resin. Chemosphere 2016;161:400-11.

17. Ghauch A, Assi HA, Bdeir S. Aqueous removal of diclofenac by plated elemental iron: bimetallic systems. J Hazard Mater 2010;182(1):64-74.

18. Beltrán FJ, Aguinaco A, García-Araya JF. Kinetic modelling of TOC removal in the photocatalytic ozonation of diclofenac aqueous solutions. Appl Catal B 2010;100(1):289-98.

19. Escapa C, Coimbra R, Paniagua S, et al. Comparative assessment of diclofenac removal from water by different microalgae strains. Alg Res 2016;18:127-34.

20. Crittenden JC, Trussell RR, Hand DW, et al. MWH's water treatment: principles and design: John Wiley & Sons; 2012.

21. Jana P, Bruzzoniti MC, Appendini M, et al. Processing of polymer-derived silicon carbide foams and their adsorption capacity for non-steroidal anti-inflammatory drugs. Ceram Int 2016;42(16):18937-43.

22. Ali AE-H, Shawky H, El Rehim HA, Hegazy E. Synthesis and characterization of PVP/AAc copolymer hydrogel and its applications in the removal of heavy metals from aqueous solution. Eur Polym J 2003;39(12):2337-44.

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

23. Borneman Z, Gökmen V, Nijhuis HH. Selective removal of polyphenols and brown colour in apple juices using PES/PVP membranes in a single-ultrafiltration process. J Membran Sci 1997;134(2):191-7.

24. Huang X, Guo W, Wang G, et al. Synthesis of Mo–Fe 3 O 4@ SiO 2@ P4VP core–shell–shell structured magnetic microspheres for alkene epoxidation reactions. Mater Chem Phys 2012;135(2):985-90.

25. Vergili I. Application of nanofiltration for the removal of carbamazepine, diclofenac and ibuprofen from drinking water sources. J Environ Manag 2013;127:177-87.

26. Lin K, Gan J. Sorption and degradation of wastewater-associated non-steroidal anti-inflammatory drugs and antibiotics in soils. Chemosphere 2011;83(3):240-6.

27. Miao Z, Yang F, Luan Y, et al. Synthesis of Fe3O4@P4VP@ZIF-8 core-shell microspheres and their application in a Knoevenagel condensation reaction. J Solid State Chem 2017;256:27-32.

28. Guo W, Wang G, Wang Q, et al. A hierarchical Fe 3 O 4@ P4VP@ MoO 2 (acac) 2 nanocomposite: Controlled synthesis and green catalytic application. J Molec Catal A 2013;37:344-89.

29. Akhtar J, Amin NAS, Shahzad K. A review on removal of pharmaceuticals from water by adsorption. Desalin Water Treat 2016;57(27):12842-60.

30. Suriyanon N, Punyapalakul P, Ngamcharussrivichai C. Mechanistic study of diclofenac and carbamazepine adsorption on functionalized silica-based porous materials. Chem Eng J 2013;214:208-18.

31. Jodeh S, Abdelwahab F, Jaradat N, et al. Adsorption of diclofenac from aqueous solution using Cyclamen persicum tubers based activated carbon (CTAC). J. Assoc. Arab U Basic Appl Sci 2016;20:32-8.

32. Torabi-Hokmabadi M, Alahabadi A, Rahmani-Sani A, et al. Investigation of Diclof-enac Removal From Aqueous Solutions Using NH4Cl-Induced Activated Carbon. J Sabzevar U Med Sci 2016;23(3):504-15. [In persian].

33. Sellaoui L, Mechi N, Lima ÉC, et al. Adsorption of diclofenac and nimesulide on activated carbon: Statistical physics modeling and effect of adsorbate size. J Phys Chem Solid 2017;109:117-23.

34. Hu X, Cheng Z. Removal of diclofenac from aqueous solution with multi-walled carbon nanotubes modified by nitric acid. Chin J Chem Eng 2015;23(9):1551-6.

35. Sun K, Shi Y, Wang X ,Li Z. Sorption and retention of diclofenac on zeolite in the presence of cationic surfactant. J Hazard Mater 2017;323:584-92.

36. Zhang Y, Yin Z, Dai C, et al. Interfacial thermodynamics and kinetics of sorption of diclofenac on prepared high performance flower-like MoS 2. J Colloid Interf Sci 2016;481:210-9.

37. Bui TX, Choi H. Adsorptive removal of selected pharmaceuticals by mesoporous silica SBA-15. J Hazard Mater 2009;168(2):602-8.

38. Czech B, Oleszczuk P. Sorption of diclofenac and naproxen onto MWCNT in model wastewater treated by H2O2 and/or UV. Chemosphere 2016;149:272-8.

39. Madikizela LM, Chimuka L. Synthesis, adsorption and selectivity studies of a polymer imprinted with naproxen, ibuprofen and diclofenac. J Environ Chem Eng 2016;4(4):4029-37.

40. Pires BC, Dutra FVA, Nascimento TA, Borges KB. Preparation of PPy/cellulose fibre as an effective potassium diclofenac adsorbent. React Funct Polym 2017;113:40-9.

41. Álvarez S, Ribeiro R, Gomes H, et al. Synthesis of carbon xerogels and their application in adsorption studies of caffeine and diclofenac as emerging contaminants. Chem Eng Res Design 2015;95:229-38.

42. Larous S ,Meniai A-H. Adsorption of Diclofenac from aqueous solution using activated carbon prepared from olive stones. Int J Hyd Energ 2016;41(24):10380-90.

43. Kakavandi B, Jahangiri-rad M, Rafiee M, et al. Development of response surface methodology for optimization of phenol and p-chlorophenol adsorption on magnetic recoverable carbon. Micropor Mesopor. Mater 2016;231:192-206.

44. Bhadra BN, Seo PW, Jhung SH. Adsorption of diclofenac sodium from water using oxidized activated carbon. Chem Eng J 2016;301:27-34.

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]

Journal of Environmental Health Engineering, August;2020; Vol. 8, No4: 425-449

Evaluation of the efficiency of P4VP-Fe3O4 nanocomposite on the removal of diclofenac from aqueous solutions

Sakineh Mollai Tavani[1], Emad Dehghanifard[2*], Mohammad Rafiee[3], Seyed Jamal Tabatabai Rezaei[4]

[1] M.Sc of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Alborz University of Medical Sciences, Karaj, Iran.
[2] Assistant Professor, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Iran University of Medical Sciences, Tehran, Iran.
[3] Assistant Professor, Department of Environmental Health Engineering, Faculty of Health, Shahid Beheshti University of Medical Sciences, Tehran, Iran.
[4] Assistant Professor, Department of Chemistry, Faculty of Science, Zanjan University, Zanjan, Iran.

Email: dehghanifard@yahoo.com

Received: 9 June 2021; Accepted: 7 August 2021

ABSTRACT

Background and Objectives: Nonsteroidal anti-inflammatory drugs (NSAIDs) have been widely used in various treatments including inflammatory disorders, pain relief and fever. The permanent presence of these compounds in water resources and possible adverse effects due to toxicological and chemical properties is very important. The aim of this study was to evaluate of the efficiency of P4VP-Fe3O4 nanocomposite on the removal of diclofenac from aqueous solutions.
Methods: Adsorbent properties were determined by TEM, SEM, VSM and FTIR techniques. Effect of independent variables such as pH (3-9), adsorbent dose (0.1-2 g/L), contaminant concentration (2-20 mg/L), mixing speed (100-250 rpm), temperature (25-40°C) and the presence of interfering ions (120 min) were investigated. The adsorption process was evaluated using Langmuir, Freundlich, Tamkin isotherm models, and kinetic models of the adsorption process as well as thermodynamic studies.
Results: Results showed that by examining the size and shape of P4VP-Fe3O4 composite, the composite had properties such as nano range size, polygonal structure and non-uniform shape. The peak of the pyridine ring in the results of FT-IR analysis of P4VP@Fe3O4 composite indicated the presence of C=C bands. In the adsorption process, the optimal removal conditions for diclofenac (contaminant concentration 15 mg/L, pH=5, contact time 75 min, adsorbent dose 1 g/L), the maximum removal efficiency of diclofenac 93.34% and adsorption capacity (qe) 9.33 mg/g was obtained. Also, the study of adsorption isotherm and kinetics showed that diclofenac adsorption followed Freundlich isotherm (R2 <0.956) and quasi-quadratic kinetic model (R2 <0.976). The results of thermodynamics also showed a spontaneous reaction.
Conclusion: P4VP-Fe3O4 composite can be used as an effective and useful adsorbent in the adsorption of diclofenac and pharmaceutical compounds from aqueous media due to its advantages such as simple and fast separation, recyclable, cost-effective and high removal efficiency.

Keywords: Adsorption, P4VP-Fe3O4 composite, Non-steroidal anti-inflammatory drugs (NSAIDs), Diclofenac, Aqueous solution.

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

[DOI: 10.52547/jehe.8.4.425]