


## تهیه مزومتخلخل کربن فعال مغناطیسی ( $Fe_3O_4/AC$ ) از پسماندهای کنجد به عنوان یک جاذب سبز برای حذف پادزیست آزیترومایسین و بهینه سازی عامل های موثر به کمک طراحی آزمایش

محمدحسین فکری<sup>۱\*</sup>، مریم رضوی مهر<sup>۲</sup>، سمانه عیسی نژاد محمره<sup>۳</sup> و محمد شریف زارعی<sup>۴</sup>

۱. استادیار شیمی فیزیک، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه آیت الله بروجردی، بروجرد، ایران.
۲. مدرس شیمی معدنی، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه آیت الله بروجردی، بروجرد، ایران.
۳. کارشناس ارشد شیمی فیزیک، گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه آیت الله بروجردی، بروجرد، ایران.
۴. استادیار مکانیک، گروه مکانیک، دانشکده فنی مهندسی، دانشگاه آیت الله بروجردی، بروجرد، ایران.

دریافت: مهر ۹۹ بازنگری: آذر ۹۹ پذیرش: آذر ۹۹

 20.1001.1.17359937.1400.15.3.5.4

### چکیده

در این پژوهش، کربن از پسماندهای کنجد استخراج شد و عملیات فعال سازی کربن تهیه شده، با روی کلرید انجام شد. برای مغناطیسی کردن کربن فعال تهیه شده، نانوذره های مغناطیسی  $Fe_3O_4$  با روش درجا بر کربن فعال بارگذاری شد. کربن فعال مغناطیسی برای حذف پادزیست آزیترومایسین به کار گرفته شد. نتیجه ها نشان داد که کربن فعال مغناطیسی در ابعاد نانو تشکیل شد و اندازه نانوحفره ها در حدود ۲۶ نانومتر بود. سطح ویژه آن ۱۱۲/۲۳ مترمربع بر گرم بود که عددی مطلوب و قابل قبول است. برای بهینه سازی عوامل موثر در جذب آزیترومایسین بر جاذب کربن فعال مغناطیسی از نرم افزار طراحی آزمایش و به کمک روش سطح پاسخ استفاده شد. به کمک روش باکس بنکن تاثیر سه عامل موثر pH، مقدار جاذب و دما بررسی شد که مقدارهای بهینه آن ها به ترتیب ۲، ۰/۰۸ گرم و  $85\text{ }^{\circ}\text{C}$  به دست آمد. با در نظر گرفتن این مقدارهای بهینه، مقدار جذب پیش بینی شده دارو با جاذب برابر با ۹۹٪ بود. در این شرایط بهینه، مقدار جذب دارو به روش تجربی ۹۷/۸۳٪ به دست آمد.

**واژه های کلیدی:** نانو کربن فعال مغناطیسی، آزیترومایسین، دانه کنجد، روش سبز، طراحی آزمایش

## مقدمه

کدام به دلایلی کارایی لازم را ندارند. روش‌های اکسایش شیمیایی موجب تجزیه و شکستن پادزیست‌ها می‌شوند، ولی مستلزم روش‌های بسیار پیچیده و پرهزینه هستند. همچنین، روش‌های زیستی متداول تنها ۲۰-۱۰٪ بازده حذف دارند. بنابراین، روش‌های فیزیکی مناسب‌ترین گزینه‌های تصفیه این مواد هستند و روش جذب بیشینه بازده را در بین روش‌های فیزیکی برای حذف ترکیب‌های آلی از فاضلاب‌های صنعتی دارد [۷]. فرایند جذب سطحی به دلیل کارایی بسیار بالا، طراحی و اجرای آسان سامانه، عدم تولید فرآورده‌های جانبی و صرفه اقتصادی مناسب‌ترین گزینه برای حذف آلاینده‌های شیمیایی و ترکیب‌های دارویی به حساب می‌آید [۸ تا ۱۰]. حذف و تصفیه زیستی پادزیست‌ها به دلیل وجود حلقه پایدار نفتول (به عنوان ساختار اصلی) و سمیت آن برای ریزاندامگان<sup>۳</sup>ها و همچنین، تجزیه‌پذیری زیستی کم آن‌ها مشکل است [۱۱]. فرایند جذب در مقایسه با روش‌های دیگر تصفیه از نظر هزینه اولیه، استفاده دوباره از پساب، سادگی و انعطاف‌پذیری در طراحی، بهره‌برداری آسان و غیرحساس بودن به آلاینده‌ها و ترکیب سمی، مورد توجه بیشتری قرار گرفته است. تولید پساب با کیفیت بالا و عدم تشکیل رادیکال‌های آزاد و مواد خطرناک از مزایای دیگر این روش به حساب می‌آید [۱۲]. در میان جاذب‌های مورد استفاده در این فرایند، کربن فعال به دلیل سطح و حجم بالای منافذ و ظرفیت بالای جذب متداول‌تر است [۱۳ و ۱۴]. کربن فعال یک جامد به‌طور کامل آریخت<sup>۴</sup> با تخلخل بسیار بالا است. این ماده ویژگی جذب بسیار بالایی دارد و قابلیت کاهش بسیار خوبی از خود نشان می‌دهد. جذب در سطح کربن فعال به‌طور عمده به‌صورت فیزیکی انجام می‌شود، ولی در دماهای بالا جذب شیمیایی نیز امکان‌پذیر است. کربن فعال به‌طور عمده به جذب مواد غیرقطبی تمایل نشان می‌دهد. در حین

امروزه استفاده بی‌رویه از پادزیست‌ها و متعاقب آن ورود این ترکیب‌ها به محیط‌زیست موجب افزایش نگرانی‌هایی در سطح جهانی شده است. به‌طور معمول این مواد دارویی پس از هضم و دگرگشت<sup>۱</sup> در بدن، بخش‌های باقی‌مانده آن با ادرار و مدفوع انسان به محیط وارد می‌شوند [۱]. وجود پادزیست‌ها در آب‌های سطحی، زیرزمینی، پساب‌ها و حتی در آب شرب در مقادیر نانوگرم تا میکروگرم در لیتر تشخیص داده شده است. این مواد از راه‌های متفاوت مانند فاضلاب صنایع داروسازی، بیمارستانی و مواد دفعی انسان و حیوان‌ها وارد محیط می‌شوند [۲]. راهیابی مستمر این مواد به دلیل اثر تجمعی آن‌ها می‌تواند خطری آندوخته برای بوم‌سازگان‌های آبی به‌وجود آورد [۳]. در میان انواع متفاوت پادزیست‌ها، آزیترومايسين یکی از مهم‌ترین گروه‌های شایع پادزیست‌ها از نظر تولید و مصرف در سراسر جهان است و امروزه به‌طور بی‌رویه برای درمان انواع بیماری‌های عفونی مورد استفاده قرار می‌گیرد [۴]. وجود پادزیست‌ها در محیط‌های آبی می‌تواند موجب بروز واکنش‌های متفاوت از حساسیت‌های ساده تا در برخی موارد، سمیت شود. افزون‌براین، وجود این مواد دارویی در محیط‌زیست منجر به توسعه پاتوژن‌های مقاوم به پادزیست می‌شود که عملکرد بوم‌سازگان و سلامت انسان را تهدید می‌کنند. بنابراین، نیاز به یک سامانه کارآمد برای حذف این ترکیب‌ها از محیط آبی احساس می‌شود. فرایندهای متعارف تصفیه آب و فاضلاب قادر به تجزیه و حذف این ترکیب‌ها نیستند [۵]. اگرچه حضور پادزیست‌ها در بسیاری از زیست محیط‌ها ثابت شده است، اما اثرهای مخرب آن‌ها کمتر مورد توجه قرار گرفته است [۶].

دو روش برای حذف پادزیست‌ها وجود دارد. این روش‌ها اکسایش شیمیایی و روش‌های زیستی هستند که هر

pH متر (ST 2100)، آون (Memmert)، همزن مغناطیسی (HOTPLATE STIRRER 81)، کوره الکتریکی (Shimadzu)، دستگاه FTIR (Magna-IR Spectrometer) (STADIP Nicolet 550)، دستگاه پراش پرتو ایکس (MIRA3-LMU)، طیف-نورسنج UV-Vis (DB20-UV Spectrophotometer)، مغناطیس سنج لرزشی (7400, Lakeshore Company, USA) دستگاه فراصوت (D-78224) و دستگاه BET (NanoSORD92) به کار گرفته شد.

#### تهیه کربن فعال از دانه کنجد

از پسماندهای روغنی دانه کنجد به عنوان ماده خام برای تهیه کربن فعال استفاده شد. در ابتدا ماده خام برای رفع آلودگی‌های احتمالی سه بار با آب مقطر شسته شد و ۲۴ ساعت در محیط آزمایشگاه قرار داده شد و سپس، ۱۲ ساعت در آن در دمای  $105^{\circ}\text{C}$  قرار گرفت تا به طور کامل خشک شود. ماده خشک شده به کمک آسیاب خرد و به ذره‌های ریز (کوچک‌تر از ۴ میلی‌متر) تبدیل و با الک (۵۰۱۱)  $300\ \mu\text{m}$  مش غربال شد تا ذره‌های ریز و یک دست به دست آمد. ۳۰ گرم از پودر الک‌شده به مدت ۱۰ ساعت در کوره با دمای  $500^{\circ}\text{C}$  تا  $600^{\circ}\text{C}$  قرار داده شد و در پایان به مدت ۱ ساعت در دمای محیط گذاشته شد تا خنک شود. مقدار کربن به دست آمده را با نسبت [۱:۲] با روی کلرید مخلوط و ۶ ساعت با همزن مغناطیسی در دمای  $50^{\circ}\text{C}$  هم‌زده شد تا کربن فعال تهیه شود. پس از آن کربن فعال به دست آمده از کاغذ صافی عبور داده شد و چند بار با آب مقطر شسته شد تا pH آن به بالای ۶/۵ و نزدیک ۷ برسد و در مرحله آخر کربن فعال به دست آمده در آن در دمای  $105^{\circ}\text{C}$  به مدت ۳ ساعت قرار گرفت تا خشک شود.

فرایند فعال‌سازی کربن، گروه‌های عاملی با اکسیژن و نیتروژن بر سطح ایجاد می‌شوند و ویژگی شیمیایی آن را تغییر می‌دهند. سطوح کربن فعال به طور عمده آب‌گریز و اندکی بار منفی دارد که با فرایند اسیدشویی می‌توان آن را آب‌دوست کرد [۱۵]. کربن فعال در کنار مزایای فراوان، معایبی نیز دارد. یکی از معایب آن به جداسازی کربن فعال از فاز مایع پس از جذب آلاینده‌های نفتی از آب، مربوط می‌شود. روش مرسوم برای جداسازی از فاز مایع صافش است. اما صافش موجب مسدود شدن صافی‌ها و از دست رفتن مقداری از کربن فعال می‌شود. بنابراین، پژوهشگران به دنبال یافتن روش‌های جدیدی برای جداسازی کربن فعال از فاز مایع هستند. یکی از این روش‌ها، ایجاد ویژگی مغناطیسی در کربن فعال و سپس جداسازی آسان آن با یک میدان مغناطیسی است. در این پژوهش، کربن از پسماندهای کنجد استخراج و فعال‌سازی کربن تهیه‌شده، با روی کلرید انجام شد. نانوذره‌های مغناطیسی  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  با روش درجا [۱۷] بر کربن فعال بارگذاری شد. کربن فعال مغناطیسی برای حذف پادزیست آزیترومايسين به کار گرفته شد. برای بهینه‌سازی عوامل موثر در جذب آزیترومايسين بر جاذب کربن فعال مغناطیسی از روش طراحی آزمایش به کمک روش سطح پاسخ استفاده شد.

#### بخش تجربی

##### مواد و دستگاه‌ها

در این کار، پسماندهای دانه کنجد از فروشگاه‌های محلی بروجد و پادزیست آزیترومايسين از سازمان غذا و دارو ایران تهیه شد. همه مواد شیمیایی با خلوص آزمایشگاهی شامل روی کلرید، کلریدریک اسید ۰/۱ مولار، سود ۰/۱ مولار، پتاسیم دی‌کرومات، آمونیاک، کلرید آهن (II) چهار آب، کلرید آهن (III) شش آب و اتانول ۹۶٪ از شرکت مرک تهیه شدند. همچنین، ترازوی دیجیتال (EJ 303)، دستگاه

تهیه کربن فعال مغناطیسی ( $MGAC^1$ )

نانوذره  $Fe_3O_4$  با روش درجا تهیه و بر سطح کربن فعال نشانداده شد. روش هم‌رسوبی یون‌های نمک آهن دو و سه ظرفیتی در حضور یک باز قوی، رایج‌ترین روش تهیه  $Fe_3O_4$  است. واکنش شیمیایی تشکیل نانوذره مغناطیسی به صورت زیر است:



برای تهیه  $Fe_3O_4$ ، ۱٫۹۵ گرم  $FeCl_2$  و ۳٫۹ گرم  $FeCl_3$  و ۱٫۶۵ گرم کربن فعال در یک بالن سه دهانه تحت گاز نیتروژن (برای جلوگیری از اکسایش  $Fe^{2+}$  به  $Fe^{3+}$ ) قرار داده شد تا اکسیژن محلول به‌طور کامل از محیط خارج شود، سپس ۵۰ میلی‌لیتر سدیم هیدروکسید غلیظ (۵ مولار) به صورت قطره قطره به بالن افزوده شد. دمای مخلوط واکنش  $90^\circ C$  و به مدت یک ساعت با همزن مغناطیسی هم‌زده شد. رسوب به‌دست آمده چندین مرتبه با آب مقطر به روش سرریز کردن شسته شد. در پایان رسوب به‌دست آمده به مدت ۵ ساعت در آن در دمای  $60^\circ C$  قراگرفت تا خشک شود.

بهینه‌سازی عامل‌های جذب

برای به‌دست آوردن عامل‌های بهینه برای حذف آزیترومایسین، ابتدا محلول ذخیره با غلظت‌های مشخص تهیه شد. سپس، در هر مرحله مقدار جاذب مناسب را در یک ظرف شیشه‌ای درب‌دار ریخته و ۱۰ میلی‌لیتر محلول ذخیره با غلظت اولیه مشخص افزوده شد. تنظیم pH با افزودن کلریدریک اسید و سود ۰٫۱ مولار صورت گرفت و سپس با همزن مغناطیسی در دمای مناسب محلول هم‌زده شد. پس از گذشت زمان موردنظر، محلول در دستگاه گریزانه قرار داده و پس از ته‌نشین شدن رسوب و به‌دست‌آمدن محلول شفاف، با دستگاه UV جذب آن اندازه‌گیری شد. در این پژوهش از

طراحی آزمایش با روش باکس بنکن برای بررسی عوامل موثر بر جذب دارو استفاده شد. متغیرهای موثر بر جذب داروی آزیترومایسین با در نظر گرفتن مقادیر پایین و بالا در سه سطح برای طراحی آزمایش در جدول‌های ۱ و ۲ ارایه شده است.

جدول ۱ عامل‌های موثر بر جذب داروی آزیترومایسین با روش

باکس بنکن

عامل	سطح ۱	سطح +	سطح -۱
pH (A)	۸	۵	۲
مقدار جاذب (B) (گرم)	۰٫۰۸	۰٫۰۵	۰٫۰۲
دما (C) ( $^\circ C$ )	۸۵	۵۵	۲۵

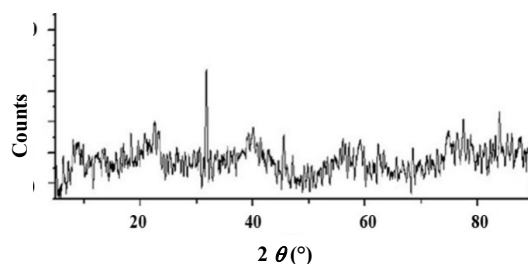
جدول ۲ داده‌های طراحی آزمایش مربوط به روش باکس بنکن

آزمایش	عامل		
	pH (A)	مقدار جاذب (B) (گرم)	دما (C) ( $^\circ C$ )
۱	۸	۰٫۰۸	۵۵
۲	۵	۰٫۰۲	۸۵
۳	۸	۰٫۰۲	۵۵
۴	۸	۰٫۰۵	۲۵
۵	۵	۰٫۰۸	۸۵
۶	۵	۰٫۰۵	۵۵
۷	۸	۰٫۰۵	۸۵
۸	۵	۰٫۰۸	۲۵
۹	۲	۰٫۰۲	۵۵
۱۰	۵	۰٫۰۵	۵۵
۱۱	۵	۰٫۰۵	۵۵
۱۲	۲	۰٫۰۵	۸۵
۱۳	۵	۰٫۰۵	۵۵
۱۴	۵	۰٫۰۲	۲۵
۱۵	۲	۰٫۰۵	۲۵
۱۶	۵	۰٫۰۵	۵۵
۱۷	۲	۰٫۰۸	۵۵

## نتیجه‌ها و بحث

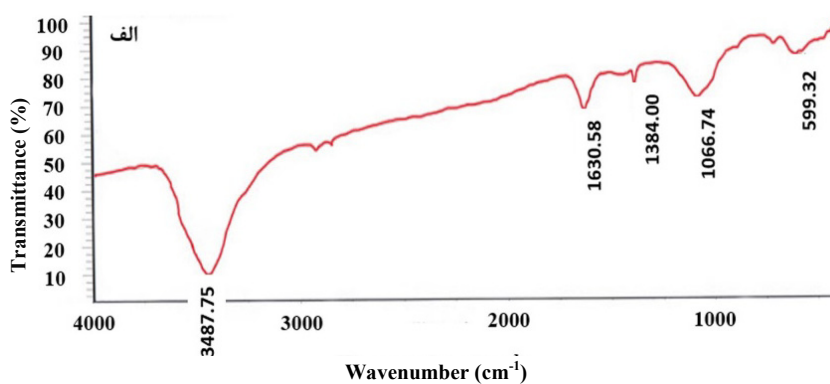
$400-4000 \text{ cm}^{-1}$  مورد بررسی قرار گرفت. در طیف مربوط به کربن فعال (شکل ۲-الف) قله ایجاد شده در  $3437 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به ارتعاش کششی گروه عاملی هیدروکسیل ( $\text{-OH}$ ) است. قله ایجاد شده در  $1630 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به ارتعاش کششی پیوند دوگانه ( $\text{C=C}$ ) و ارتعاش کششی نامتقارن گروه عاملی کربوکسیلیک است. قله ایجاد شده در  $1086 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به ارتعاش کششی پیوند  $\text{C-O}$  است. همچنین، طیف جذب ضعیفی در  $599 \text{ cm}^{-1}$  دارد که به ارتعاش خمشی پیوند  $\text{C-H}$  نسبت داده می‌شود. در شکل ۲-ب، طیف FTIR کربن فعال مغناطیسی نشان داده شده است، قله پهن ایجاد شده در گستره  $3429 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به ارتعاش کششی هیدروکسیل ( $\text{-OH}$ ) (به دلیل پیوند هیدروژنی درون مولکولی) است. هنگامی که پیوند هیدروژنی درون مولکولی وجود داشته باشد جذب  $\text{C=O}$  به فرکانس پایین‌تری منتقل می‌شود. قله‌های موجود در  $1526, 1383$  و  $1339 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به گروه‌های  $\text{C-O}$  و  $\text{C-C}$  است. قله ایجاد شده در  $1628$  به پیوند  $\text{C=C}$  اختصاص دارد. قله‌های موجود در  $571$  و  $432 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به  $\text{M-O}$  است که حضور ذره‌های  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  را تایید می‌کنند.

ساختار و ویژگی‌های بلوری کربن فعال مغناطیسی با الگوی پراش پرتو ایکس (XRD) این نمونه (شکل ۱) بررسی شد. در این الگو یک پیک پهن در گستره  $2\theta$  از  $20^\circ$  تا  $30^\circ$  دیده می‌شود که وجود کربن فعال آریخت را اثبات می‌کند. پیک‌های موجود در  $30.2^\circ$ ،  $35.5^\circ$ ،  $43.1^\circ$ ،  $53.4^\circ$ ،  $57.0^\circ$  و  $62.6^\circ$  ساختار اسپینل معکوس مکعبی  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  را تایید می‌کند. پیک‌های به دست آمده با پیک نمونه استاندارد (JCPDS No. 19-0629) همخوانی دارد و در نتیجه حضور کربن فعال و ذره‌های  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  تایید می‌شود.

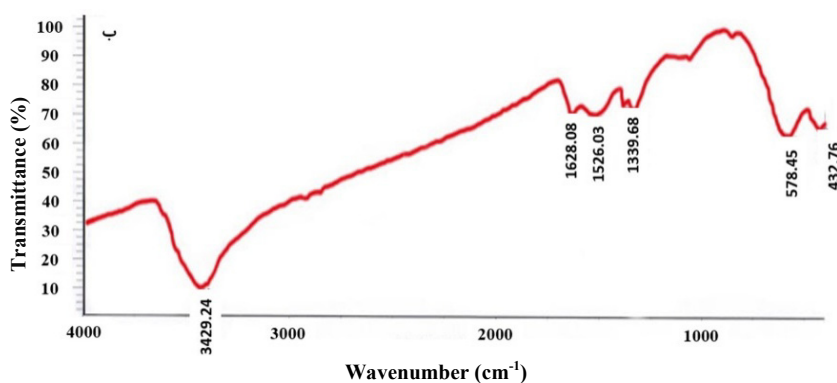


شکل ۱ الگوی پراش پرتو ایکس MGAC

طیف‌های FTIR کربن فعال تهیه شده از پسماندهای روغنی دانه کنجد و کربن فعال مغناطیسی (شکل ۲) در دامنه



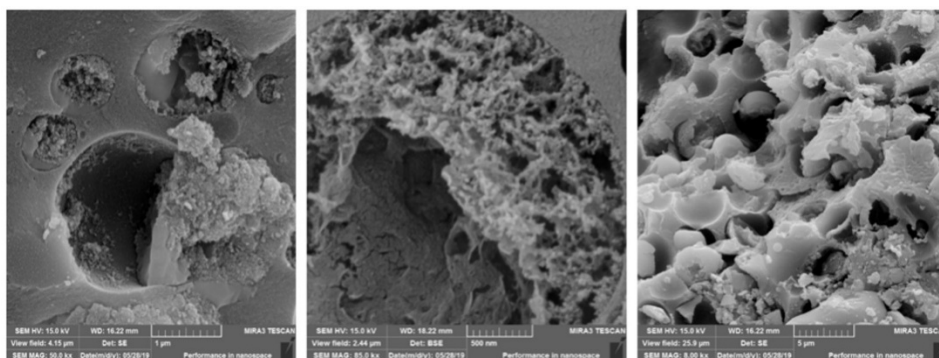
شکل ۲ طیف‌های FTIR کربن فعال (الف) و کربن فعال مغناطیسی (MGAC) (ب)



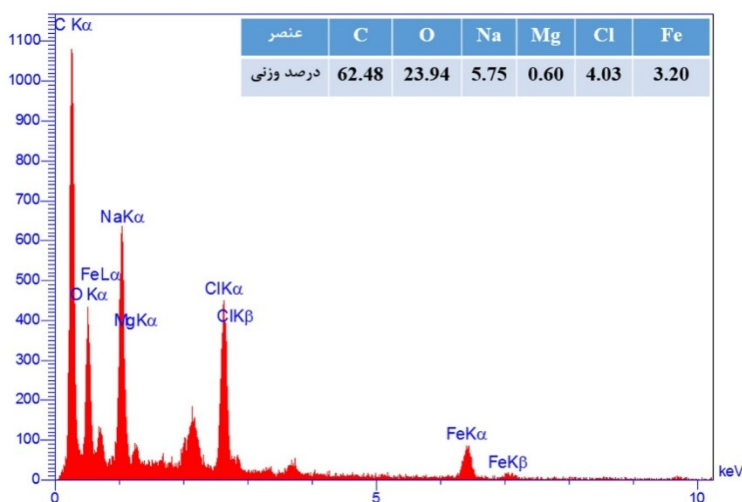
ادامه شکل ۲ طیف‌های FTIR کربن فعال (AC) (الف) و کربن فعال مغناطیسی (MGAC) (ب)

عنصری EDS (شکل ۴) صورت گرفت. همچنین، نتیجه‌ها حاصل از آنالیز BET نمونه کربن فعال دانه کنجند نشان می‌دهد اندازه نانوحفره‌ها در حدود ۲۶ نانومتر است. حجم کل برابر  $0.725$  سانتی‌متر مکعب به ازای یک گرم جاذب و سطح ویژه کربن فعال تهیه شده  $112/23$  مترمربع بر گرم به‌دست آمده است. مساحت سطح بالای نمونه نشان دهنده این است که کربن فعال به‌دست آمده می‌تواند به‌عنوان یک بستر مناسب برای پیوند با نانوذره‌ها  $Fe_3O_4$  در نظر گرفته شود.

ریخت‌شناسی و ویژگی‌های سطحی جاذب کربن فعال مغناطیسی با میکروسکوپ الکترونی پویشی (SEM) بررسی شد. تصویرهای SEM از سطح جاذب با بزرگنمایی‌های متفاوت در شکل ۳ نشان داده شده است. تصاویر وجود دو فاز کربن فعال و  $Fe_3O_4$  را نشان می‌دهد. همچنین، ساختار متخلخل و صفحه‌ای جاذب را اثبات می‌کند. با توجه به اینکه اندازه ابعاد حفره‌ها در بازه ۲ تا  $50$  نانومتر قرار دارد، حفره‌ها مزومتخلخل هستند. شناسایی عناصر و درصد آن‌ها با تجزیه

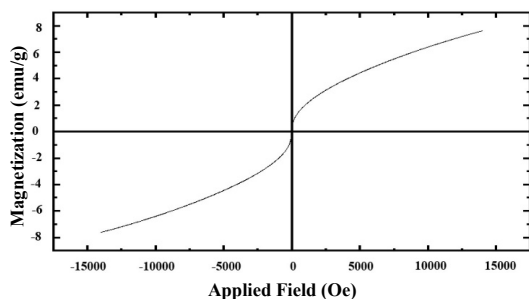


شکل ۳ تصویرهای میکروسکوپ الکترونی SEM نمونه MGAC



شکل ۴ طیف EDS و درصد وزنی مربوط به کربن فعال مغناطیسی

مغناطش اشباع برای جاذب کربن فعال مغناطیسی برابر با  $6.51 \text{ A.m}^2/\text{kg}$  است.



شکل ۵ منحنی پسماند اندازه‌گیری مغناطش جاذب MGAC

طراحی آزمایش به روش باکس بنکن برای آرایه یک مدل نهایی انجام شد. این مدل می‌تواند مقدار پاسخ را هنگامی که عوامل در سطوح متفاوت هستند، پیش‌بینی کند. برپایه این روش، ۱۷ آزمایش (جدول ۲) در نظر گرفته شد.

مغناطیس‌سنج ارتعاشی (VSM) برای اندازه‌گیری ویژگی مغناطیسی مواد به کار گرفته شد. رفتار مغناطیسی مواد متفاوت دیامغناطیس، پارامغناطیس، فرومغناطیس و غیره، در شکل‌های متفاوت پودر، فیلم نازک، تک‌بلور، مایع و غیره، به کمک روش VSM با رسم منحنی پسماند، قابل اندازه‌گیری است. ابتدا نمونه در میدان مغناطیسی ثابت قرار گرفت. میدان مغناطیسی ثابت، نمونه را با هم‌جهت کردن حوزه‌های مغناطیسی یا اسپین‌های مغناطیسی اتم‌ها در جهت میدان، مغناطیسی می‌کند. میدان مغناطیسی بزرگ‌تر، نمونه را بیشتر مغناطیسی می‌کند. گشتاور مغناطیسی نمونه، میدان مغناطیسی را در اطراف نمونه القاء می‌کند. حال اگر نمونه به بالا و پایین ارتعاش کند، میدان مغناطیسی القایی با زمان تغییر می‌کند و تغییرهای آن را می‌توان با جریان القاء شده در یک مجموعه سیم‌پیچ مشاهده کرد. این جریان القایی با مغناطش در نمونه متناسب است. شکل ۵ منحنی پسماند اندازه‌گیری مغناطش جاذب کربن فعال مغناطیسی را نشان می‌دهد. نتیجه‌های به دست آمده نشان می‌دهد که حداکثر

نسبت به تغییرهای pH را نشان می‌دهد. برپایه این نمودار می‌توان نتیجه گرفت که با افزایش مقدار pH جذب دارو بر جاذب کاهش می‌یابد و بالاترین جذب در مقادیر پایین pH اتفاق می‌افتد. یعنی در شرایط اسیدی مقدار بیشتری از جذب شونده با جاذب بارگیری می‌شود. همان‌طور که از نمودار ۶-ب برمی‌آید بالاترین مقدار جذب در مقادیر بالای جاذب در محلول اتفاق می‌افتد. نمودار ۶-ج نشان می‌دهد بیشینه تاثیر از بین عوامل موثر مربوط به دما است و با افزایش دما مقدار جذب به مقدار قابل توجهی افزایش می‌یابد.

جدول ۳ نتیجه‌های تحلیل وردایی برای طراحی نهایی به روش باکس بنکن

ردیف	عامل	جمع مربعات	df	مقدار f	مقدار P
۱	مدل	۹۴۲۵,۲۰	۹	۴۱۲,۶۹	<۰,۰۰۰۱
۲	A	۱۷۳۶,۳۷	۱	۶۸۴,۲۵	<۰,۰۰۰۱
۳	B	۳۸,۴۷	۱	۱۵,۱۲	۰,۰۰۶۰
۴	C	۵۰۹۳,۴۳	۱	۲۰۰۷,۱۷	<۰,۰۰۰۱
۵	AB	۱۴۸,۸۴	۱	۵۸,۶۵	۰,۰۰۰۱
۶	AC	۳۷۹,۰۸	۱	۱۴۹,۳۸	<۰,۰۰۰۱
۷	BC	۳۷,۹۵	۱	۱۴,۹۵	۰,۰۰۶۲
۸	A <sup>2</sup>	۳۹۴,۳۳	۱	۱۵۵,۴۰	<۰,۰۰۰۱
۹	B <sup>2</sup>	۵۲۱,۸۲	۱	۲۰۵,۶۳	<۰,۰۰۰۱
۱۰	C <sup>2</sup>	۸۷۲,۲۹	۱	۳۴۳,۹۴	<۰,۰۰۰۱
	باقی‌مانده	۱۷,۷۶	۷		
	عدم-برازش	۸,۹۱	۳	۱,۳۴	۰,۳۷۹۱
	خطای خالص	۸,۸۵	۴		
	مجموع	۹۴۴۲,۹۶	۱۶		

$$AC - 370.88 BC + 968 A^2 + 1113 B^2 + 14740 C^2 - 1473 A + 219 B + 2573 C - 610 AB - 974$$

$$(1) \quad \text{جذب} = +1684$$

تحلیل وردایی<sup>۱</sup> برای طراحی آزمایش نهایی (جدول ۳) نشان می‌دهد که با فرض سطح اطمینان ۹۵ درصد، سه متغیر pH، مقدار جاذب و دما عوامل موثر بر جذب داروی آزیترومایسین بر جاذب هستند. در تحلیل وردایی هر چه مقدار f بالاتر و مقدار P پایین‌تر باشد داده‌های مدل دقیق‌تر و قابل اعتمادتر خواهند بود. با بررسی نتیجه‌ها جدول ۳ مشخص می‌شود که مقدار f در میزان بالا و بسیار قابل قبولی است و مقدار عامل P نیز پایین و مورد تایید است. ضریب R<sup>2</sup> معیاری برای ارزیابی رابطه بین عوامل و پاسخ‌ها است و مقدار آن هر چقدر به ۱ نزدیک‌تر باشد، به این معنا است که رابطه قوی‌تری وجود دارد. R<sup>2</sup> برای این مدل برابر ۰/۹۹۸۱ است. سایر عامل‌های آماری تاییدکننده صحت مدل، Adj. R<sup>2</sup> و Pred. R<sup>2</sup> که مقدارهای آن‌ها به ترتیب معادل ۰/۹۹۵۷ و ۰/۹۸۳۴ هستند که با یکدیگر همخوانی دارند. مقدار دقت کافی<sup>۲</sup> برابر با ۶۵/۴۲۲ به دست آمد. مقادیر بالای ۴ برای این عامل، مقادیر مطلوبی هستند.

برای نشان دادن متناسب بودن مدل پیش‌بینی شده با داده‌های آزمایشگاهی می‌توان با رسم داده‌های آزمایشگاهی در مقابل داده‌های مدل، همخوانی آن‌ها را نشان داد. نتایج نشان دادند که مدل پیشنهادی با داده‌های آزمایشگاهی انطباق بسیار بالایی را دارد.

معادله چند جمله‌ای مرتبه دوم (معادله ۱) مابین پاسخ‌های به دست آمده در آزمایش‌ها و متغیرهای مستقل برای داده‌های جذب داروی آزیترومایسین به دست آمد. این معادله نشان می‌دهد عامل (A) pH با ضریب ۱۴/۷۳ با پاسخ نسبت عکس دارد. بیشینه و کمینه ضریب عوامل موثر بر جذب داروی آزیترومایسین مربوط به مقدار جاذب (B) و اثر دما (C) به ترتیب معادل ۲/۱۹ و ۲۵/۲۳ است که هر دوی این عوامل با مقدار جذب نسبت مستقیم دارند. شکل ۶-الف نمودار تغییرهای جذب



جدول ۴ مقادیرهای بهینه متغیرهای مربوط به جذب داروی

آزیترومایسین بر جاذب MGAC

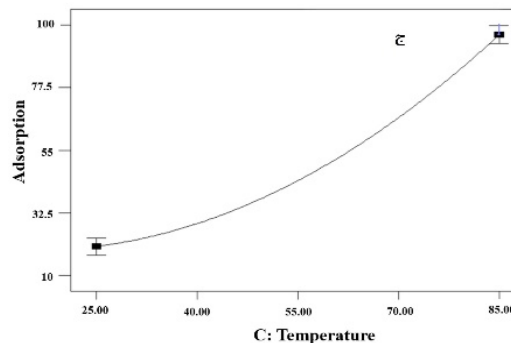
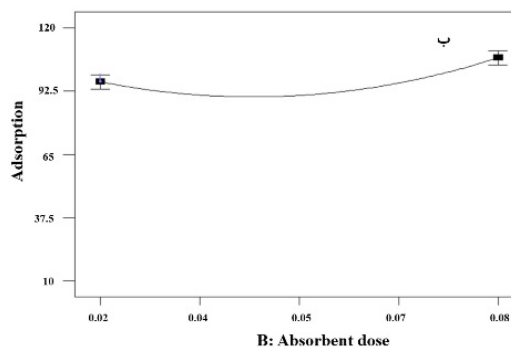
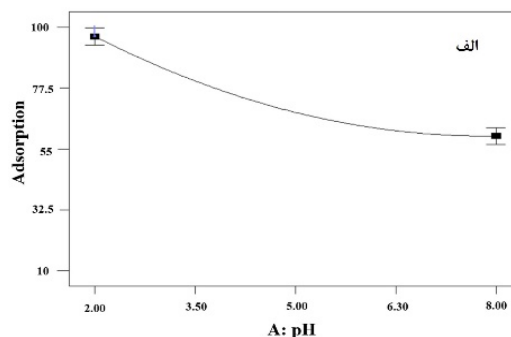
عامل	pH	مقدار جاذب (گرم)	دما (°C)	درصد حذف	
				پیش بینی شده	تجربی
مقدار	۲	۰/۰۸	۸۵	۹۹	۹۷/۸۳

### نتیجه گیری

در این پژوهش، کربن از دانه کنجد تهیه و به کمک روی کلرید فعال سازی شد. با توجه به اینکه یکی از مشکل های روش های حذف آلاینده ها به روش جذب سطحی جداسازی جاذب پس از استفاده است، یکی از کاربردی ترین و آسان ترین روش ها، مغناطیسی کردن جاذب است که در این کار از  $Fe_3O_4$  استفاده شد. بیشینه مغناطش اشباع برای جاذب کربن فعال مغناطیسی برابر با  $A.m^2/kg$  ۶/۵۱ بود.

الگوی XRD و تصویرهای SEM نشان داد که کربن فعال مغناطیسی در ابعاد نانو تشکیل شده بود و داده های BET نیز سطح ویژه بالا ( $112/23$  مترمربع بر گرم) را برای کربن فعال نشان داد. این نتیجه بیانگر آن است که کربن فعال به دست آمده می تواند به عنوان یک جاذب مناسب برای حذف آلاینده ها در نظر گرفته شود.

کربن فعال مغناطیسی تهیه شده برای حذف داروی پادزیست آزیترومایسین که از آلاینده های زیست محیطی است، به کار گرفته شد. برای به دست آوردن مقادیر بهینه از روش باکس بنکن استفاده شد. نتیجه ها نشان داد که سه عامل pH، مقدار جاذب و دما بر روی مقدار جذب تاثیر می گذارند. مقادیرهای بهینه به صورت pH برابر با ۲، مقدار جاذب برابر ۰/۰۸ گرم و دمای بهینه معادل  $85^\circ C$  به دست آمد. در این مقادیرها بهینه درصد جذب آلاینده آزیترومایسین با کربن فعال مغناطیسی، ۹۹٪ بود. در این



شکل ۶ نمودارهای رابطه بین عوامل موثر A, B, C و درصد جذب

با توجه به شرایط بهینه پیشنهادی با نرم افزار (مقدار جاذب ۰/۰۸ گرم، pH برابر ۲ و دمای  $85^\circ C$ )، درصد جذب پیش بینی شده برابر ۹۹٪ و با درصد تخریب آزمایش تجربی که ۹۷/۸۳٪ است، تفاوت بسیار ناچیز و در حد ۱/۱۷٪ دارد.

عنوان یک جاذب سبز برای حذف پادزیست آزیترومايسين " است که با حمایت مالی دانشگاه آیتالله العظمی بروجردی (ره) و با کد رهگیری ۱۶۸۱۴۳-۱۵۶۶۴ انجام پذیرفته است. از این رو، نویسندگان از حمایت مالی و پشتیبانی دانشگاه آیتالله العظمی بروجردی (ره) برای ارائه این مقاله سپاسگزارند.

شرایط بهینه مقدار جذب دارو به روش تجربی ۹۷/۸۳ درصد آمد.

### سپاسگزاری

این پژوهش برگرفته از طرح پژوهشی با عنوان "تهیه و کاربرد مزومتخلخل کربن فعال از پسماندهای کنجد به

### مراجع

- [1] Martinez, J.L.; Environ. Pollut. 157, 2893-902, 2009.
- [2] Emad, S.E.; Chaudhur, M.; Desalin. 272, 218-24, 2011.
- [3] Emad, S.E.; Chaudhuri, M.; Desalin. 256, 43-47, 2010.
- [4] Kümmerer, K.; Chemosphere 75, 417-34, 2009.
- [5] Emad, S.E.; Chaudhuri, M.; Desalin. 256, 43-47, 2010.
- [6] Amsaleg, C.; Laverman, A.M.; Environ. Sci. Pollut. Res. 23, 4000-4012, 2016.
- [7] Homem, V.; Santos, L.; J. Environ. Manage. 92, 2304-47, 2011.
- [8] Dashti Khavidaki, H.; Fekri, M.H.; J. Adv. Chem. 11, 3777-3788, 2015.
- [9] Razavi Mehr, M.; Fekri, M.H.; Omidali, F.; Eftekhari, N.; Akbari-adergani, B.; J. Chem. Health Risks 9, 75-86, 2019.
- [10] Fekri, M.H.; Banimahd Keivani, M.; Razavi Mehr, M.; Akbari-adergani, B.; J. Mazandaran Univ. Med. Sci. 29, 166-179, 2019.
- [11] Shen, S.; Ren, J.; Chen, J.; Lu, X.; Deng, C.; Jiang, X.; J. Chromatogr. A 1218, 4619-26, 2011.
- [12] Iram, M.; Guo, C.; Guan, Y.; Ishfaq, A.; Liu, H.; J. Hazard. Mater. 181, 1039-50, 2010.
- [13] Qu, S.; Huang, F.; Yu, S.; Chen, G.; Kong, J.; J. Hazard. Mater. 160, 643-47, 2008.
- [14] Chegeni, M.; Etemadpour, S.; Fekri, M.H.; Phys. Chem. Res. 9(1), 1-16, 2021.
- [14] Burchell, D. T., "Carbon materials for advanced technologies", Elsevier Science Ltd, 1999.
- [15] Ai, L.; Huang, H.; Chen, Z.; Wei, X.; Jiang, J.; Chem. Eng. J. 156, 243-249, 2010.
- [16] Yegane Badi, M.; Azari, A.; Pasalari, H.; Esrafil, A.; Farzadki, M.; J. Mol. Liq. 261, 146-154, 2018.

## Synthesis of magnetic activated nanocarbons ( $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{AC}$ ) using sesame waste as the green antibiotic adsorbent of azithromycin and optimization of effective parameters by Taguchi and Bax-Beckman methods

M.H. Fekri<sup>1,\*</sup>, M. Razavi Mehr<sup>2</sup>, S. Isanejad Mohamareh<sup>3</sup>, M.Sh. Zarei<sup>4</sup>

1. Assistant Prof. of Physical Chemistry, Department of Chemistry, Faculty of Basic Sciences, Ayatollah Borujerdi University, Borujerd, Iran.
2. Ph.D in Inorganic Chemistry, Department of Chemistry, Faculty of Basic Sciences, Ayatollah Borujerdi University, Borujerd, Iran.
3. M.Sc. in Physical Chemistry, Department of Chemistry, Faculty of Basic Sciences, Ayatollah Borujerdi University, Borujerd, Iran.
4. Assistant Prof. of Mechanic, Department of Mechanic, Faculty of Engineering, Ayatollah Borujerdi University, Borujerd, Iran.

**Abstract:** In this study, carbon was extracted from sesame plant waste and activated carbon was obtained by using  $\text{ZnCl}_2$ . Magnetic  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  nanoparticles were loaded by in situ method onto activated carbon. Magnetic activated carbon (MGAC) was used to remove the azithromycin antibiotic from the desired samples. The results showed that magnetically activated carbon was formed in nanoscale and the size of the nanopores was about 26 nanometers. Its specific surface area was  $112.23 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ , which was desirable and acceptable. Optimization of the important factors in the adsorption of azithromycin on magnetic activated carbon was performed by Design Expert 7 software and response surface method. Using Box-Behnken design method, the effect of three effective factors of pH, adsorbent dosage, and temperature were investigated. Their optimal values were 2, 0.08 g, and  $85 \text{ }^\circ\text{C}$ , respectively. By considering these optimal values, predicted absorption percent of the drug by the adsorbent was 99 %. In this optimal condition, the amount of drug absorption was obtained 97.83% experimentally.

**Keywords:** Magnetic activated carbon, Azithromycin, Sesame, Green method, Experimental design.