



## بررسی کارایی کیتوزان در جذب آنتی بیوتیک مترونیدازول از محیط‌های آبی: مدلینگ با استفاده از روش رویه سطح پاسخ بر اساس طراحی نقاط مرکزی، مطالعات ایزوترم و

### سینتیک

مهدی سالاری<sup>۱</sup>، امیر شعبانلو<sup>۲</sup>، محمد درویش متولی<sup>۳</sup>، شاهرخ نظم‌آرا<sup>۴</sup>، فاطمه اسلامی<sup>۵\*</sup>

۱- گروه مهندسی بهداشت محیط- دانشکده بهداشت- کمیته تحقیقات دانشجویی- دانشگاه علوم پزشکی همدان- همدان- ایران.

۲- گروه مهندسی بهداشت محیط- دانشکده بهداشت- دانشگاه علوم پزشکی همدان- همدان- ایران.

۳- گروه مهندسی بهداشت محیط- دانشکده بهداشت- دانشگاه علوم پزشکی اصفهان- اصفهان- ایران.

۴- گروه مهندسی بهداشت محیط- دانشکده بهداشت- دانشگاه علوم پزشکی تهران- تهران- ایران.

۵- گروه مهندسی بهداشت محیط- دانشکده بهداشت- دانشگاه علوم پزشکی جیرفت- جیرفت- ایران.

تاریخ دریافت: ۱۳۹۷/۱۱/۱۷، تاریخ پذیرش: ۱۳۹۸/۴/۳

### چکیده

**مقدمه:** وجود آنتی‌بیوتیک‌ها در آب‌های آشامیدنی سبب مشکلات بهداشتی برای انسان می‌گردد. مطالعه حاضر توانایی کیتوزان در جذب آنتی‌بیوتیک مترونیدازول از محیط‌های آبی را مورد بررسی قرار داد.

**مواد و روش‌ها:** این مطالعه در مقیاس آزمایشگاهی در یک سیستم ناپیوسته انجام پذیرفت. تأثیر متغیرهای ورودی شامل  $pH$ ، زمان تماس، دوز کیتوزان و غلظت مترونیدازول در غالب طراحی نقاط مرکزی بر اساس روش رویه پاسخ بر روی کارایی جذب مورد بررسی قرار گرفتند. مطالعات ایزوترمی و سینتیکی پس از بهینه‌سازی متغیرهای ورودی انجام پذیرفت. به‌منظور سنجش غلظت باقی‌مانده مترونیدازول از اسپکتروفوتومتر  $DR$  ۵۰۰۰ در طول موج ۳۲۰ nm استفاده شد.

**نتایج:** نتایج نشان داد فرآیند جذب از یک مدل درجه دوم چند جمله‌ای با مقادیر  $F$  و  $P$  به ترتیب ۹۹۰/۹۳۶ و  $P < 0/001$  و  $R^2 = 0/9989$  و  $Adj-R^2 = 0/9979$  پیروی می‌کند. شرایط بهینه  $pH = 4/74$ ،  $min 60$  زمان تماس،  $g/L 5/1$  دوز کیتوزان و  $mg/L 20$  غلظت مترونیدازول به دست آمد که در این شرایط بالاترین راندمان حذف حدود ۸۵٪ حاصل گردید. همچنین فرآیند جذب از ایزوترم لانگمویر و سینتیک شبه درجه اول با مقادیر  $R^2$  به ترتیب ۰/۹۹۶۵ و ۰/۹۸۵۹ پیروی می‌کند.

**نتیجه‌گیری:** در این مطالعه مشاهده شد که کیتوزان دارای کارایی بالایی در جذب مترونیدازول دارد، بنابراین کیتوزان را می‌توان به‌عنوان یک جاذب طبیعی با پتانسیل بالا در جذب مترونیدازول و سایر آنتی‌بیوتیک‌های مشابه از محیط‌های آبی پیشنهاد داد.

**واژه‌های کلیدی:** مترونیدازول، کیتوزان، جذب، محیط‌های آبی.

\* نویسنده مسئول: دانشگاه علوم پزشکی جیرفت، دانشکده بهداشت، گروه مهندسی بهداشت محیط، تلفن: ۰۹۱۳۶۳۹۷۳۲۷، نمابر: ۰۳۴۴۳۳۱۵۹۹۰، Email: fatemeh.eslami6397327@gmail.com

**ارجاع:** سالاری مهدی، شعبانلو امیر، درویش متولی محمد، نظم‌آرا شاهرخ، اسلامی فاطمه. بررسی کارایی کیتوزان در جذب آنتی‌بیوتیک مترونیدازول از محیط‌های آبی: مدلینگ با استفاده از روش رویه سطح پاسخ بر اساس طراحی نقاط مرکزی، مطالعات ایزوترم و سینتیک. مجله دانش و تندرستی در علوم پایه پزشکی ۱۳۹۷؛ ۱۴(۱): ۱۱-۳.

## مقدمه

آنتی‌بیوتیک‌ها به‌عنوان گروه مهمی از داروها عمدتاً به‌منظور ممانعت و درمان عفونت‌های باکتریایی در انسان و دام‌ها استفاده می‌گردد. آنتی‌بیوتیک‌ها یا متابولیت‌ها آن عمدتاً از طریق مدفوع، دفع نامناسب داروهای منقضی شده یا مزاد به بخش‌های مختلف محیطی وارد می‌شود. عمدتاً، این ترکیبات توسط تخلیه فاضلاب‌ها و خروجی‌های به خوبی تصفیه نشده، وارد مسیرهای آبی می‌شوند (۱ و ۲). بنابراین حضور آنتی‌بیوتیک‌های مختلف و متابولیت‌هایشان در آب‌های سطحی و زیرزمینی مشهود می‌باشد. در میان آنتی‌بیوتیک‌ها، مترونیدازول در درمان عفونت‌های روده‌ای و داخل شکمی ناشی از باکتری‌های بی‌هوازی و پروتوزایی، کاربرد گسترده‌ای دارد (۳). علاوه بر کاربرد در انسان، این آنتی‌بیوتیک در داروهای دامپزشکی و به‌عنوان یک افزودنی در غذای ماکیان و ماهیان استفاده می‌شود که در نهایت سبب تجمع این دارو در بدن حیوانات و فاضلاب پرورش ماهیان می‌شود (۴). آنتی‌بیوتیک‌های مختلفی وجود دارد که روش‌های متداول تصفیه توانایی حذف کامل‌شان را ندارند و به محیط‌های آبی رها می‌شوند. شواهد قابل توجه‌ای از ریسک‌های مرتبط به حضور آنتی‌بیوتیک‌ها در منابع آب سطحی و پتانسیل‌شان در ایجاد مقاومت آنتی‌بیوتیک باکتریایی و در پی آن بیمارهای انسانی غیرقابل درمان وجود دارد (۵ و ۱). همچنین حضور این ترکیبات در تصفیه‌خانه‌های فاضلاب ممکن است سبب تولید محصولات جانبی ناخواسته در اثر کلرزنی و ازن‌زنی فاضلاب شود که دارای خصوصیات سمی و سرطان‌زایی می‌باشند (۶ و ۷). در نتیجه تکنولوژی‌های کارآمدتر با خطر کمتر تولید محصولات جانبی باید گسترش یابد. در میان روش‌های مختلف تصفیه، فرآیند جذب توجه زیادی را به‌منظور حذف آنتی‌بیوتیک‌ها از محیط‌های آبی به خود جلب کرده‌اند. تکنولوژی ساده، توانایی احیاء مجدد مناسب و خصوصیات عملیاتی بدون لجن از جمله ویژگی‌های کاربرد فرآیند جذب می‌باشد (۸ و ۹). جاذب‌های طبیعی از جمله خاک رس، خاک اره، سیوس برنج، پوست نارگیل، خاکستر و ... به‌دلیل ارزان قیمت و زیست تجزیه‌پذیر بودنشان امروزه مورد توجه محققین قرار گرفته‌اند چراکه دارای صرفه اقتصادی و راندمان قابل قبولی می‌باشند (۱۰). کیتوزان یکی از جاذب‌های طبیعی می‌باشد که امروزه کاربرد گسترده‌ای در فرآیند جذب داشته است. کیتوزان یک جاذب و پلی‌الکترولیت کاتیونی طبیعی با جرم مولکولی بالا می‌باشد که دارای گروه‌های عاملی هیدروکسیل، کربوکسیل، آمین و آمیدی می‌باشد (۱۱). کیتوزان توسط فرآیند دی‌استیلاسیون گروه‌های استامید در شرایط قلیایی از کیتین تولید

می‌شود. کیتین یک پلیمر طبیعی می‌باشد که از پوست سخت پوستانی مانند خرچنگ‌ها، میگوها، حشرات و بیومس قارچی حاصل می‌شود (۱۲). چایو و همکاران (۲۰۰۶) گزارش نمودند که کاربرد مهره‌های کیتوزان با پیوند مقاطع در حذف رنگ متانیل زرد و RB15 به‌ترتیب دارای ظرفیت جذب  $3/56 \text{ mmol/g}$  و  $0/56 \text{ mmol/g}$  می‌باشند (۱۳). در مطالعه دهقانی و همکاران (۲۰۱۶)، ظرفیت جذب کیتوزان تجاری و سنتز شده در حذف بیس فنل به‌ترتیب مقادیر  $27/02 \text{ mg/g}$  و  $34/48 \text{ mg/g}$  مشاهده شد (۱۴). با توجه به ویژگی‌های مناسب کیتوزان از جمله ظرفیت جذب مناسب، در این مطالعه به بررسی حذف مترونیدازول از محیط‌های آبی توسط این ترکیب پرداخته شد. بررسی اثر خطی، درجه دو و تلفیقی متغیرهای pH، زمان تماس، غلظت آلاینده، دوز جاذب با استفاده از روش رویه سطح پاسخ (RSM: Response surface methodology) براساس طراحی نقاط مرکزی (CCD: central composite design) انجام شد. این روش منجر به کاهش هزینه‌ها و مواد مصرفی می‌شود (طراحی آزمایشات با نرم‌افزار design expert نسخه ۷). در نهایت مطالعات سینتیک و ایزوترم به‌منظور شناسایی سرعت و ظرفیت جذب انجام شد.

## مواد و روش‌ها

مطالعه حاضر در مقیاس آزمایشگاهی در یک راکتور با حجم 200 mL و با جریان ناپیوسته انجام پذیرفت. کیتوزان مصرفی در این مطالعه از پوست میگو استخراج شد. مراحل تولید کیتوزان به این صورت بود که ابتدا پوست میگو به‌طور کامل شستشو داده شد و در دمای محیطی به مدت یک هفته قرار داده شد تا به‌طور کامل خشک گردد. در ادامه نمونه توسط آسیاب کاملاً به حالت پودری در آورده شد و در نهایت عمل استخراج صورت گرفت. مراحل استخراج به این شکل بود که در ابتدا پودر میگو در نسبت وزنی به حجمی  $1/14$  در اسید کلریدریک ۱ طبیعی برای زمان ۳۶ ساعت قرار داده شد. سپس ترکیب حاصل به‌طور کامل شستشو داده شد و برای ۲۴ ساعت در دمای محیط نگه داشته شد تا خشک گردد. مرحله بعدی شامل پروتئین‌زایی ترکیب حاصل می‌باشد که با قرار دادن در سود ۵ درصد با نسبت وزنی به حجمی  $1/12$  در دمای ۹۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۲۴ ساعت انجام گرفت. محصول حاصل به نام کیتین شناخته می‌شود که برای تولید کیتوزان، این ترکیب به مدت ۷۲ ساعت در سود ۷۰٪ با نسبت وزنی به حجمی  $1/14$  قرار داده شد. ترکیب حاصل با آب دو بار تقطیر شستشو داده شد و به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد در آون نگه داشته شد. نمونه برای استفاده در فرآیند جذب و سایر موارد به‌طور کامل خرد گردید و در دسیکاتور در دمای اتاق نگهداری شد. برای تهیه غلظت‌های موردنیاز مترونیدازول،

دقیقه سانتریفوژ گردید و سپس توسط فیلتر PTFE45/0 میکرون فیلتر گشت. در نهایت غلظت باقی‌مانده مترونیدازول توسط اسپکتروفوتومتر DR ۵۰۰۰ در طول موج ۳۲۰ نانومتر تعیین شد. به‌منظور تعیین میزان حذف از رابطه ۱ استفاده شد. در این رابطه C<sub>0</sub> غلظت اولیه مترونیدازول (mg) و C<sub>e</sub> غلظت مترونیدازول در زمان تعادل (mg) را نشان می‌دهند.

$$\text{حذف راندمان} (\%) = \frac{(C_0 - C_e)}{C_0} \times 100 \quad (1)$$

### نتایج

مقادیر آزمایشگاهی و پیش‌بینی شده جذب مترونیدازول توسط کیتوزان در جدول ۲ گزارش شده است. مقادیر پیش‌بینی شده از مدل چند جمله ای درجه دوم تبعیت می‌کند که این مدل در آزمون آنالیز واریانس دارای آماره‌های معناداری است (جدول ۳). مقادیر P و F برای این مدل به ترتیب ۹۹۰/۹۳۶ و  $P < 0.0001$  حاصل شد. همچنین اکثر اثرات متغیرهای ورودی به مدل از نظر آماری معنادار بودند. همان‌طور که در جدول ۳ مشاهده می‌شود، مقدار  $R^2 = 0.9989$  حاصل شد که بیانگر قدرت بالایی پیش‌بینی مدل می‌باشد به‌طوری‌که ۹۹/۸۹٪ از تغییرات حذف مترونیدازول توسط این مدل قابلیت پیش‌بینی دارد. همچنین مقدار  $Adj-R^2 = 0.9979$  به‌دست آمد که بسیار نزدیک به  $R^2$  می‌باشد که گویای فیت شدن بسیار خوب مدل می‌باشد. شاخص Lack of fit از نظر آماری با  $P = 0.6676$  معنادار به‌دست نیامد که شرط اول عدم فیت شدن مدل رد می‌شود و نشان می‌دهد که مدل به خوبی فیت شده است.

ابتدا محلول استوک مترونیدازول با حل ۱ گرم این آنتی‌بیوتیک در یک لیتر آب مقطر تهیه گردید و غلظت موردنظر با رقیق‌سازی از محلول استوک تهیه می‌شد. براساس روش CCD، ۴ متغیر مورد مطالعه که شامل pH، زمان تماس، دوز کیتوزان و غلظت مترونیدازول می‌باشند در ۵ سطح مطابق جدول ۱ وارد طراحی شد و در نهایت ۳۰ آزمایش حاصل شد (جدول ۲). از این ۳۰ آزمایش، ۱۶ آزمایش مربوط به نقاط Factorial  $(\alpha \pm 1)$ ، ۸ آزمایش مربوط به نقاط Axial  $(\alpha \pm 2)$  و ۶ آزمایش دیگر مربوط به تکرار آزمایشات در نقطه مرکزی  $(\alpha = 0)$  می‌باشد.

جدول ۱- متغیرهای مستقل و محدوده و مقادیر هر متغیر در آزمایشات

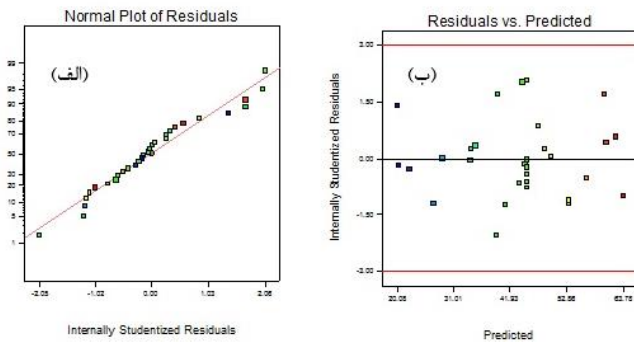
متغیر	نماد	-۲	-۱	۰	+۱	+۲
pH	X <sub>1</sub>	۳	۵	۷	۹	۱۱
زمان تماس (min)	X <sub>2</sub>	۱۰	۲۲/۵	۳۵	۴۷/۵	۶۰
دوز کیتوزان (g/L)	X <sub>3</sub>	۰/۳	۰/۶	۰/۹	۱/۲	۱/۵
غلظت مترونیدازول (mg/L)	X <sub>4</sub>	۲۰	۳۵	۵۰	۶۵	۸۰

مطالعات ایزوترمی و سینتیکی فرآیند جذب مترونیدازول توسط کیتوزان در شرایط پهنه از متغیرهای ورودی مورد مطالعه قرار گرفت. مطالعات ایزوترمی برای ۳ مدل فروندلیخ، لانگمویر، تمکین و مطالعات سینتیکی برای ۳ مدل شبه درجه اول، شبه درجه دوم و نفوذ بین ذره‌ای انجام گرفت. جهت تنظیم pH محلول، از محلول ۰/۱ نرمال NaOH و H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> استفاده شد و قرائت آن توسط دستگاه pH meter مدل Kent EIL7020 انجام پذیرفت. به‌منظور جداسازی کیتوزان، در ابتدا هر نمونه توسط دستگاه Heraeus Labofuge 200 در دور rpm5000 برای ۵

جدول ۲- طراحی آزمایش و راندمان حذف آزمایشگاهی و پیش‌بینی شده مترونیدازول توسط کیتوزان

شماره آزمایش	pH	زمان تماس (min)	دوز کیتوزان (g/L)	غلظت مترونیدازول (mg/L)	راندمان آزمایشگاهی (%)	راندمان پیش‌بینی شده (%)
۱	۷	۳۵	۰/۹	۵۰	۵۰/۶	۵۰/۶
۲	۷	۳۵	۰/۳	۵۰	۳۰/۸	۳۱/۰
۳	۷	۳۵	۰/۹	۵۰	۵۱/۴	۵۰/۶
۴	۹	۲۲/۵	۰/۶	۳۵	۴۳/۸	۴۴/۰
۵	۵	۲۲/۵	۱/۲	۶۵	۴۷/۱	۴۷/۲
۶	۹	۲۲/۵	۱/۲	۶۵	۴۶/۷	۴۶/۶
۷	۷	۳۵	۰/۹	۸۰	۳۱/۱	۳۱/۵
۸	۵	۴۷/۵	۱/۲	۶۵	۵۰/۷	۵۰/۰
۹	۷	۱۰	۰/۹	۵۰	۴۴/۶	۴۴/۴
۱۰	۹	۴۷/۵	۱/۲	۶۵	۴۷/۷	۴۸/۰
۱۱	۹	۴۷/۵	۰/۶	۳۵	۴۸/۵	۴۸/۷
۱۲	۵	۴۷/۵	۰/۶	۶۵	۳۰/۴	۳۰/۵
۱۳	۵	۲۲/۵	۰/۶	۳۵	۴۵/۶	۴۵/۷
۱۴	۹	۴۷/۵	۰/۶	۶۵	۳۰/۳	۲۹/۸
۱۵	۵	۲۲/۵	۱/۲	۳۵	۶۱/۶	۶۱/۶
۱۶	۹	۲۲/۵	۱/۲	۳۵	۵۸/۴	۵۸/۶
۱۷	۳	۳۵	۰/۹	۵۰	۴۵/۵	۴۶/۰
۱۸	۷	۳۵	۱/۵	۵۰	۶۵/۲	۶۵/۱
۱۹	۹	۴۷/۵	۱/۲	۳۵	۶۴/۳	۶۴/۳
۲۰	۷	۶۰	۰/۹	۵۰	۵۱/۵	۵۱/۹

۲۸/۸	۲۹/۳	۶۵	۰/۶	۲۲/۵	۵	۲۱
۵۰/۶	۴۹/۷	۵۰	۰/۹	۳۵	۷	۲۲
۶۴/۸	۶۵/۱	۲۰	۰/۹	۳۵	۷	۲۳
۵۱/۹	۵۲/۳	۳۵	۰/۶	۴۷/۵	۵	۲۴
۴۲/۳	۴۲/۶	۵۰	۰/۹	۳۵	۱۱	۲۵
۵۰/۶	۵۰/۴	۵۰	۰/۹	۳۵	۷	۲۶
۵۰/۶	۵۰/۸	۵۰	۰/۹	۳۵	۷	۲۷
۲۹/۵	۲۹/۳	۶۵	۰/۶	۲۲/۵	۹	۲۸
۵۰/۶	۵۰/۴	۵۰	۰/۹	۳۵	۷	۲۹
۶۸/۸	۶۸/۷	۳۵	۱/۲	۴۷/۵	۵	۳۰



جدول ۳- نتایج آنالیز واریانس مدل چند جمله‌ای درجه دوم پیش‌بینی حذف مترونیدازول توسط کیتوزان

P.V	F.V	Sum of Squares	Source
<۰/۰۰۰۱	۹۹۰/۹۳۶	۳۶۲۶/۲۷۴	مدل
<۰/۰۰۰۱	۸۰/۶۹۹	۲۱/۰۹۴	pH-X <sub>1</sub>
<۰/۰۰۰۱	۳۲۱/۳۶۲	۸۴	X <sub>2</sub> - زمان تماس (min)
<۰/۰۰۰۱	۶۶۶۶/۳۵۲	۱۷۴۲/۵۱	X <sub>3</sub> - غلظت مترونیدازول (mg/L)
<۰/۰۰۰۱	۶۳۵۷/۰۸۱	۱۶۶۱/۶۷	X <sub>4</sub> - دوز کیتوزان (g/L)
۰/۰۱۱۳	۸/۳۲۳	۲/۱۷۶	X <sub>1</sub> X <sub>2</sub>
۰/۰۲۰۴	۶/۷۱۷	۱/۷۵۶	X <sub>1</sub> X <sub>3</sub>
۰/۰۰۰۳	۲۲/۴۹۸	۵/۸۸۱	X <sub>1</sub> X <sub>4</sub>
۰/۰۶۳۴	۴/۰۱۹	۱/۰۵۱	X <sub>2</sub> X <sub>3</sub>
<۰/۰۰۰۱	۷۴/۹۱	۱۹/۵۸۱	X <sub>2</sub> X <sub>4</sub>
۰/۰۰۰۲	۲۴/۳۹۱	۶/۳۷۶	X <sub>3</sub> X <sub>4</sub>
<۰/۰۰۰۱	۲۷۰/۳۸۳	۷۰/۶۷۵	X <sub>1</sub> <sup>2</sup>
<۰/۰۰۰۱	۳۸/۴۳۵	۱۰/۰۴۶	X <sub>2</sub> <sup>2</sup>
<۰/۰۰۰۱	۴۰/۰۳۹	۱۰/۴۶۶	X <sub>3</sub> <sup>2</sup>
<۰/۰۰۰۱	۳۶/۸۶۴	۹/۶۳۶	X <sub>4</sub> <sup>2</sup>
		۳/۹۲۱	باقی مانده
۰/۶۶۷۶	۰/۷۶۱	۲/۳۶۶	Lack of Fit
=۰/۹۹۸۹R <sup>2</sup>	=۰/۹۹۷۹Adj-R <sup>2</sup>	۰/۹۹۵۶Pred R <sup>2</sup> =	

شکل ۱- تجزیه و تحلیل تأییدی مدل برازش شده برای حذف فنل توسط کیتوزان

براساس نتایج به دست آمده و رگرسیون بین متغیرهای مستقل با میزان حذف مترونیدازول یک مدل تجربی (رابطه ۲) حاصل گشت که میزان ارتباط بین متغیرهای مستقل و میزان پاسخ را براساس مقادیر واقعی متغیرها نشان می‌دهد.

$$R(\%) = 12.334 + 5.152X_1 + 0.757X_2 + 35.215X_3 - 0.352X_4 - 0.0147X_1X_2 - 0.552X_1X_3 + 0.0202X_1X_4 + 0.0683X_2X_3 - 0.0059X_2X_4 + 0.1402X_4X_3 - 0.4013X_1^2 - 0.0038X_2^2 - 6.863.8X_3^2 - 0.0026X_4^2 \quad (۲)$$

همچنین نمودار پارتو به منظور مقایسه میزان اثر متغیرهای مورد مطالعه و محاسبه درصد اثر هر فاکتور بر پاسخ در نمودار ۱ نشان داده شد که توسط رابطه ۳ قابل محاسبه است.

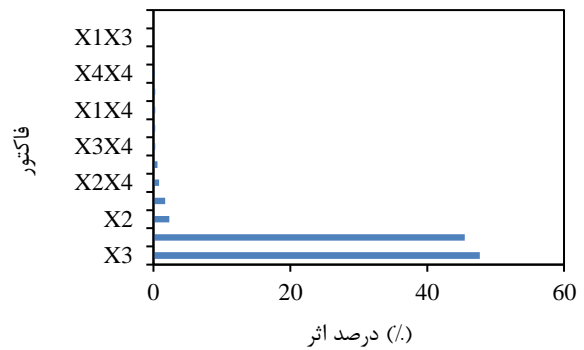
$$P_i = \left[ \frac{(b_i^2)}{\sum b_i^2} \right] \times 100 \quad (۳)$$

در این رابط b، ضریب رگرسیون هر ترم را براساس مقادیر کد شده نشان می‌دهد.

همان‌طور که از نمودار ۱ مشخص است، بالاترین اثر بر پاسخ مربوط به دوز کیتوزان، غلظت مترونیدازول و زمان با درصد اثرهای به ترتیب ۴۷/۷، ۴۵/۵ و ۲/۳ درصد می‌باشد.

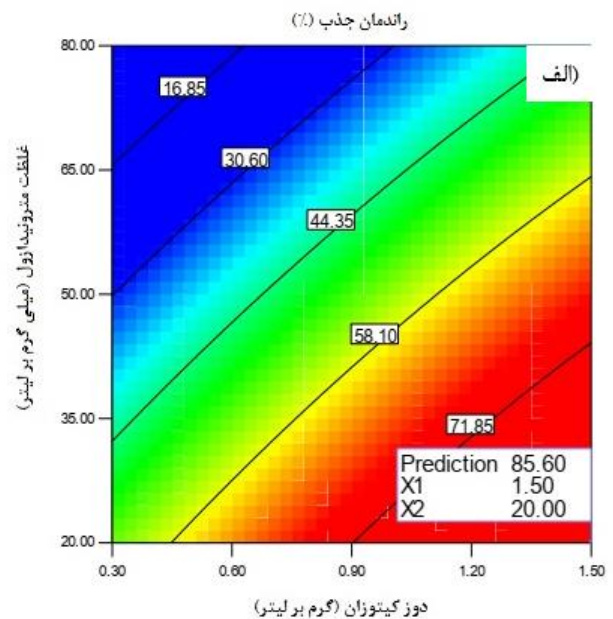
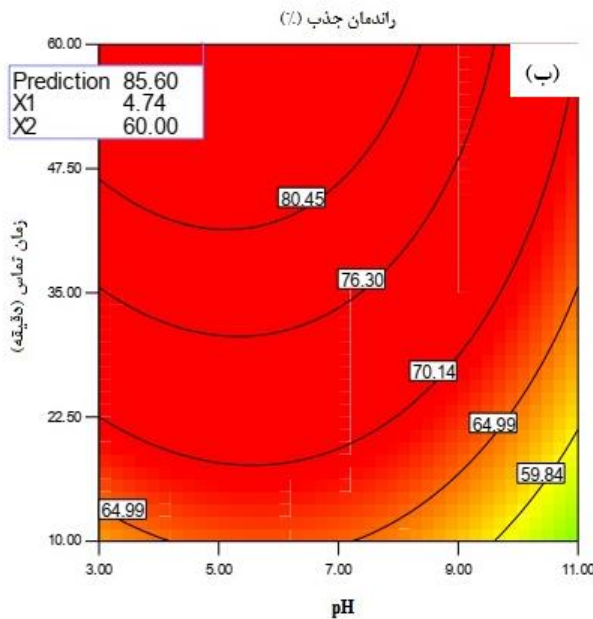
تست کفایت مدل برازش شده همچنین از طریق نمودارهای توزیع مقادیر باقی‌مانده مورد بررسی قرار گرفت. شکل ۱ (الف) توزیع مقادیر باقی‌مانده را بر روی خط راست در مقابل درصد نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود مقادیر باقی‌مانده بر روی خط و یا در نزدیکی خط قرار گرفته‌اند و با نزدیک شدن به قسمت مرکزی خط درصد مقادیر باقی‌مانده افزایش می‌یابد. این نوع پراکندگی گویای توزیع طبیعی مقادیر باقی‌مانده می‌باشد. شکل ۱ (ب) مقادیر باقی‌مانده را در برابر مقادیر پیش‌بینی شده نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود تقریباً نیمی از باقی‌مانده‌ها بالا و نیمی دیگر در پایین خط قرار دارند. این توزیع نشان می‌دهد که میانگین این مقادیر نزدیک به صفر می‌باشد و تغییرات مقادیر باقی‌مانده از روند خاصی پیروی نمی‌کند و کفایت مدل را تأیید می‌کند.

۷۱٪ و در pH برابر با ۳ راندمان به ۸۴٪ افزایش یافت. همچنین در pH بهینه ۴/۷، راندمان حذف به ۸۵/۶٪ افزایش یافت. این درحالی است که ارتباط بین زمان با راندمان حذف مستقیم به دست آمد به طوری که با افزایش زمان تماس، راندمان حذف افزایش یافت. نتایج نشان داد که در pH برابر با ۴/۷ و زمان تماس ۱۰ min راندمان حذف ۶۵/۵٪ می باشد؛ در حالی که در زمان ۶۰ min راندمان حذف به ۸۵/۶٪ افزایش می یابد. نمودار ۲ (الف) ارتباط بین راندمان حذف با شاخص های غلظت اولیه مترونیدازول و دوز جاذب (pH=۴/۷ و زمان تماس ۶۰ دقیقه) را نشان می دهد. همان طور که در نمودار مشخص می باشد با افزایش غلظت اولیه مترونیدازول، راندمان حذف کاهش می یابد به طوری که در دوز جاذب ۱/۵g/l و در غلظت اولیه مترونیدازول برابر با ۸۰mg/l راندمان حذف ۴۵/۷٪ و در غلظت برابر با ۲۰mg/l راندمان به ۸۵/۶٪ افزایش یافت. قابل ذکر است که ظرفیت جذب در غلظت ۸۰mg/l مقدار ۴/۸۷mg/g و در غلظت ۲۰mg/l مقدار ۲/۲۸mg/g حاصل شد. در ادامه مشاهده شد که در غلظت اولیه مترونیدازول ۲۰mg/l و دوز جاذب ۰/۳ g/l راندمان حذف ۵۳٪ (۷/۰۶۶mg/g) می باشد درحالی که در دوز جاذب ۱/۵g/l راندمان حذف به ۸۵/۶٪ (۲/۲۸ mg/g) افزایش می یابد.



نمودار ۱- اثر پار تو شاخص های ورودی به مدل بر پاسخ

نمودارهای کانتور به منظور مشاهده اثرات تغییرات همزمان دو فاکتور بر روی پاسخ پیش بینی شده مدل استفاده شد. نمودار ۲ (ب) حذف مترونیدازول در شرایط تغییر متغیرهای pH و زمان تماس را نشان می دهد ( غلظت مترونیدازول ۲۰ mg/l و مقدار جاذب ۱/۵g). همان طور که در نمودار مشخص می باشد با افزایش pH، راندمان حذف کاهش می یابد به طوری که در زمان ۶۰ min و در pH برابر با ۱۱ راندمان حذف



نمودار ۲- نمودار کانتور حذف مترونیدازول توسط کیتوزان (ب) pH در برابر زمان تماس (غلظت مترونیدازول ۲۰mg/l و غلظت جاذب ۱/۵g/l) (الف) دوز جاذب در برابر غلظت مترونیدازول (pH=۴/۷ و زمان تماس ۶۰ min)

ارایه شده است. همچنین نتایج برازش داده های به دست آمده با مدل های سینتیک نشان داد که فرآیند جذب از سینتیک شبه درجه اول با  $R^2$  برابر با ۰/۹۸۵۹ پیروی می کند (جدول ۵).

نتایج مطالعه ۳ ایزوترم فروندلیخ، لانگمویر و تمکین به منظور شناخت نحوه جذب مترونیدازول بر روی جاذب نشان داد که فرآیند جذب از ایزوترم لانگمویر با  $R^2$  برابر با ۰/۹۹۶۵ پیروی می کند. ثابت ها و ظرفیت های جذب به دست آمده از این مدل های ایزوترمی در جدول ۴

جدول ۴- اطلاعات ایزوترمی جذب مترونیدازول بر روی کیتوزان

جاذب	ایزوترم فروندلیخ			ایزوترم لانگمویر			ایزوترم تمکین		
	$R^2$	n	$k_f$	$R^2$	b	$q_m$	$R^2$	$k_T$	$B_T$
کیتوزان	۰/۸۹۹	۳/۳۹۱	۱/۷۸۷	۰/۹۹۶۵	۰/۸۸۱	۵/۳۱۳	۰/۹۲۷۳	۳/۶۵۹	۱/۰۲۶۸

جدول ۵- اطلاعات سینتیکی جذب مترونیدازول بر روی کیتوزان

جاذب	سینتیک شبه درجه اول			سینتیک شبه درجه دوم			سینتیک نفوذ بین ذره‌ای		
	$R^2$	$K_1$	qe (mg/g)	$R^2$	$K_2$	qe (mg/g)	$R^2$	$K_i$	
کیتوزان	۰/۹۸۵۹	۰/۰۴۳۹	۲/۱۰۹	۰/۶۶۸۱	۲/۶۵۳	۲/۱۰۹	۰/۸۱۰۵	۰/۰۹۰۲	

## بحث

یکی از شاخص‌های مهم در فرآیند جذب، تعیین زمان تعادل می‌باشد که بررسی آن در مطالعات مربوط به جذب حائز اهمیت می‌باشد. فراوانی دسترسی به سطوح و مکان‌های جذب فراوان در زمان ابتدایی جذب بر روی جاذب کیتوزان را می‌توان دلیل اصلی افزایش راندمان جذب با افزایش زمان دانست. با گذشت زمان و اشباع شدن سطح جاذب به وسیله مترونیدازول، سطح و تهیگاه‌ها جاذب کاهش می‌یابد و در نتیجه سرعت جذب کاهش پیدا می‌کند و در نهایت میزان جذب ثابت می‌گردد. از طرفی کاهش غلظت آلاینده و در نتیجه کاهش احتمال برخورد با جاذب در زمان‌های بالاتر را می‌توان به عنوان یکی دیگر از عوامل کاهش سرعت جذب در زمان‌های بالاتر دانست. در مطالعه سیو و همکاران (۲۰۱۷) بر روی حذف نیترونیمازول توسط جاذب چهارچوب آلی-فلزی، مشاهده شد که با افزایش زمان تماس، راندمان حذف نیترونیمازول افزایش و سرعت حذف کاهش می‌یابد (۱۵). در بررسی تأثیر pH بر میزان حذف مترونیدازول مشاهده شد که با افزایش pH راندمان حذف کاهش می‌یابد و بیشترین درصد حذف در  $pH=4/74$  می‌باشد.  $pka$  مترونیدازول حدود ۲/۸ گزارش شده است. این  $pka$  نشان می‌دهد که مترونیدازول باز ضعیفی می‌باشد که در pHهای کمتر از ۲/۸، پروتونه می‌شود و بار مثبت کسب می‌کند. در pHهای بالاتر، این آنتی‌بیوتیک به حالت مولکولی می‌باشد؛ هر چند گروه نیترو موجود در سطح این ترکیب دارای بار منفی می‌شود (۱۵). در آزمایش تعیین نقطه بار صفر کیتوزان مشخص شد که  $pH_{zpc}$  کیتوزان حدود ۷/۲ می‌باشد که در pH بالاتر و پایین‌تر از این مقدار سطح جاذب به ترتیب به بار منفی و مثبت تغییر بار می‌دهد. بنابراین در pHهای پایین‌تر از  $pH_{zpc}$  و بالاتر از  $pKa$ ، برهم کنشی بین گروه نیترو سطح مترونیدازول و بار مثبت سطح کیتوزان ایجاد شده که منجر به افزایش راندمان خواهد شد. لازم به ذکر است که در pHهای قلیایی بین یون‌های مترونیدازول و  $OH^-$  در نشست بر روی جاذب رقابت ایجاد می‌شود که می‌تواند در کاهش راندمان نقش مؤثری داشته باشد (۱۶). نتایج نشان داد که با افزایش غلظت مترونیدازول راندمان افزایش و ظرفیت جذب کاهش می‌یابد. این نتیجه پر واضح می‌باشد چراکه با ثابت بودن جاذب و افزایش غلظت آلاینده، سطح در دسترس کاهش می‌یابد و منجر به کاهش راندمان حذف می‌گردد. این

در حالی است که به علت افزایش احتمال برخورد مترونیدازول در غلظت‌های بالا با سطح جاذب میزان ظرفیت جذب افزایش پیدا می‌کند. این واقعیت بدین صورت قابل تفسیر است که با افزایش غلظت مترونیدازول، نیروی محرک انتقال جرم و بنابراین سرعت عبور مولکول‌های مترونیدازول از محلول به طرف لایه مایع احاطه‌کننده جاذب و نهایتاً به طرف سطح ذرات جاذب افزایش می‌یابد. بنابراین با افزایش غلظت آلاینده مقدار جذب به ازای واحد جرم جاذب روند افزایشی دارد (۱۰ و ۱۷). در مطالعه‌ای که وو و همکاران در خصوص حذف ۲ و ۴ دی کلروفلن توسط بیومس قارچ کرایزوسپوریوم انجام دادند، مشاهده شد که با افزایش غلظت آلاینده راندمان حذف کاهش و ظرفیت جذب افزایش می‌یابد (۱۸). ارتباط بین دوز جاذب با راندمان حذف مستقیم به دست آمد به طوری که با افزایش دوز جاذب، راندمان حذف افزایش یافت. این نتایج را می‌توان به این شکل تفسیر کرد که در غلظت‌های بالا جاذب، به دلیل افزایش سطح قابل دسترس برای جذب، راندمان جذب افزایش پیدا می‌کند در حالی که در غلظت‌های پایین، سطح جاذب به سرعت با مولکول‌های آلاینده اشباع می‌شود و باعث کاهش میزان جذب می‌گردد. این در حالی است که میزان ظرفیت جذب نسبت به واحد جرم جاذب در غلظت‌های پایین نسبت به غلظت‌های بالاتر افزایش پیدا می‌کند که می‌توان این افزایش را به علت افزایش احتمال تعداد برخورد آلاینده به ازای واحد جرم جاذب در دوزهای پایین جاذب نسبت داد (۱۰ و ۱۹). در این مطالعه ۳ مدل برای بیان ارتباط بین مقدار مترونیدازول جذب شده و غلظت تعادلی آن در محلول به کار رفته است که شامل ایزوترم‌های فروندلیخ، لانگمویر و تمکین می‌باشد. فرم خطی ایزوترم فروندلیخ به شکل زیر می‌باشد.

$$(4) \quad \ln q_e = \ln K_f + \frac{1}{n} \ln C_e$$

در این رابطه  $q_e$  مقدار آلاینده جذب شده به ازای یک گرم جاذب در شرایط تعادل (mg/g)،  $C_e$  غلظت تعادل آلاینده،  $K_f$  ثابت فروندلیخ و شاخص نسبی از ظرفیت جذب (mg. g-1) و ضریب n نشان‌دهنده شدت جذب می‌باشد که بزرگ بودن آن مطلوبیت فرآیند جذب را بیان می‌کند. مقادیر n بالاتر از ۱ نشان‌دهنده طبیعت مناسب و مطلوب جذب می‌باشد. در صورتی که مقدار n برابر با یک باشد، فرآیند جذب خطی می‌باشد و اگر زیر یک باشد جذب شیمیایی و در حالت بالاتر از یک نشان‌دهنده

در این معادله  $q_e$  و  $qt$  مقدار آلاینده جذب شده به ازای گرم جاذب (mg/g) به ترتیب در زمان تعادل و در زمان  $t$  می‌باشد و  $K_2$  نیز ثابت سرعت جذب سینتیک شبه درجه دوم ( $g\ mg^{-1}\ min^{-1}$ ) می‌باشد.

همچنین مدل نفوذ بین ذره‌ای دارای فرم خطی زیر می‌باشد.

$$^{(9)}\quad q_t = K_p t^{0.5} + C$$

در این معادله  $qt$  مقدار آلاینده جذب شده به ازای گرم جاذب (mg/g) در زمان  $t$ ،  $K_p$  ثابت سرعت نفوذ بین ذره‌ای ( $mg/g\ min^{1/2}$ ) و  $C$  نیز عرض از مبدأ می‌باشد. در نتایج مشخص شد که فرآیند جذب از سینتیک شبه درجه اول پیروی می‌کند که دارای ضریب تبیین  $0.98859$  می‌باشد در حالی که ضریب تبیین در مدل شبه درجه دوم و نفوذ بین ذره‌ای مقادیر پایین‌تری بودند. از طرفی دیگر ظرفیت جذب آزمایشگاهی با ظرفیت جذب محاسبه شده برای مدل شبه درجه اول نزدیک‌تر می‌باشد که تأییدی بر پیروی فرآیند جذب از سینتیک شبه درجه اول می‌باشد. مدل سینتیک درجه اول در فرآیند جذب در محیط‌های آبی کاربرد زیادی دارد. در این مدل فرض بر این است که نسبت جذب آلاینده در زمان با غلظت اشباع متناسب می‌باشد در حالی که مدل سینتیک درجه دوم رفتار کلی فرآیند جذب را پیش‌بینی می‌کند. از آنجایی که فرآیند جذب کیتوزان در این مطالعه از مدل سینتیک شبه درجه اول پیروی می‌کند، می‌توان عامل جذب را نیروهای واندروالسی با تبادل یا اشتراک‌گذاری یون دانست و جذب فیزیکی به‌عنوان جذب اصلی جاذب می‌باشد (۲۲).

مطالعه حاضر به‌منظور بررسی توانایی کیتوزان در جذب آنتی‌بیوتیک مترونیدازول از محیط‌های آبی مورد بررسی قرار گرفت. روش آماری CDD نشان داد که ارتباط بین متغیرهای ورودی با راندمان حذف مترونیدازول از یک مدل درجه دوم چندجمله‌ای پیروی می‌کند. شرایط بهینه  $pH = 4.74$ ،  $\text{min} = 60$ ، زمان تماس،  $1/5\ mg/L = 1$  دوز کیتوزان و  $20\ mg/L = 2$  غلظت مترونیدازول به‌دست آمد که در این شرایط بالاترین راندمان حذف حدود  $85\%$  حاصل گردید. همچنین نتایج نشان داد که فرآیند جذب از ایزوترم لانگمویر و سینتیک شبه درجه اول پیروی می‌کند. در نهایت می‌توان کیتوزان را به‌عنوان یک جاذب طبیعی با پتانسیل بالا در جذب مترونیدازول و سایر آنتی‌بیوتیک‌های مشابه از محیط‌های آبی پیشنهاد داد.

### تشکر و قدردانی

بدین وسیله از همکاری گروه مهندسی بهداشت محیط دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی تهران صمیمانه تشکر و قدردانی می‌شود.

### References

- Göbel A, Thomsen A, McArdeil CS, Joss A, Giger W. Occurrence and sorption behavior of sulfonamides, macrolides, and trimethoprim in activated sludge treatment. *Environ Sci Technol* 2005;39:3981-9. doi: 10.1021/es048550a

یک جذب فیزیکی مطلوب می‌باشد.  $1/n$  نیز فاکتور هتروژن بودن جذب را نشان می‌دهد. در شرایطی که مقدار این ضریب بین صفر و یک باشد هتروژن بودن جذب و در حالت کمتر از صفر شرایط جذب هموژن را نشان می‌دهد. در صورتی این شاخص بالاتر از یک باشد جذب مشترکی از دو شرایط هموژن و هتروژن را نشان می‌دهد. فرم خطی ایزوترم لانگمویر به شکل زیر می‌باشد.

$$^{(5)}\quad \frac{1}{q_e} = \frac{1}{q_m} + \frac{1}{K_L q_m} \left( \frac{1}{C_e} \right)$$

در این رابطه  $C_e$  غلظت تعادل آلاینده (mg/L)،  $q_e$  مقدار آلاینده جذب شده به ازای گرم جاذب (mg/g)،  $q_m$  حداکثر ظرفیت جذب تک لایه (mg/g) و  $K_L$  ثابت ایزوترم لانگمویر (L/mg) را نشان می‌دهد. ایزوترم تمکین که به‌طور معمول در مطالعات به‌کار می‌رود به‌صورت معادله ۶ می‌باشد.

$$^{(6)}\quad q_e = B_1 \ln K_T + B_2 \ln C_e$$

در مدل تمکین  $C_e$  غلظت تعادل آلاینده (mg/L)،  $q_e$  مقدار آلاینده جذب شده به ازای گرم جاذب (mg/g)،  $B_1$  ثابتی می‌باشد که به گرمای جذب سطحی مرتبط است و  $K_T$  ثابت پیوند تعادلی (L.g-1) می‌باشد. همان‌طور که مشخص شد فرآیند جذب بیشترین پیروی را از مدل لانگمویر داشت. پیروی مدل فروندلیخ از فرآیند جذب نشان‌دهنده‌ی جذبی غیریکنواخت و ناهمگون آلاینده بر روی جاذب می‌باشد و سایت‌های جاذب دارای میزان انرژی متفاوت و غیر یکنواخت می‌باشند. در مقابل در مدل لانگمویر فرض بر این است که فرآیند جذب در سطوح همگن و یکنواخت جاذب به‌صورت تک‌لایه‌ای اتفاق می‌افتد که سایت‌های جذب شبیه به هم و دارای انرژی یکسان می‌باشند. پیروی فرآیند جذب از مدل لانگمویر نشان می‌دهد که جاذب کیتوزان به‌صورت یکنواخت و تک‌لایه‌ای عمل جذب فنل را انجام می‌دهد و تمام سطوح جاذب دارای انرژی یکسانی در فرآیند جذب می‌باشند (۲۰ و ۲۱). همچنین این مدل نشان می‌دهد که حداکثر ظرفیت جذب این جاذب مقدار  $5/13$  میلی‌گرم به ازای هر گرم جاذب کیتوزان می‌باشد.

به‌منظور مطالعه مکانیسم‌های کنترلی فرآیند جذب از جمله انتقال جرم و واکنش‌های شیمیایی و همچنین آگاهی از سرعت جذب از معادلات سینتیک شبه درجه اول و دوم و نفوذ بین ذره استفاده شد. مدل شبه درجه اول دارای فرم خطی زیر می‌باشد:

$$^{(7)}\quad \ln(q_e - q_t) = \ln q_e - K_1 t$$

در این معادله  $q_e$  و  $qt$  مقدار آلاینده جذب شده به ازای گرم جاذب (mg/g) به ترتیب در زمان تعادل و در زمان  $t$  می‌باشد و  $K_1$  نیز ثابت سرعت جذب سینتیک شبه درجه اول ( $\text{min}^{-1}$ ) می‌باشد.

مدل شبه درجه دوم دارای فرم خطی مطابق با معادله ۸ می‌باشد.

$$^{(8)}\quad \frac{t}{qt} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t$$

2. Lindberg R, Jarnheimer P-Å, Olsen B, Johansson M, Tysklind M. Determination of antibiotic substances in hospital sewage water using solid phase extraction and liquid chromatography/mass spectrometry and group analogue internal standards. *Chemosphere* 2004;57:1479-88. doi: 10.1016/j.chemosphere.2004.09.015
3. Çalışkan E, Göktürk S. Adsorption characteristics of sulfamethoxazole and metronidazole on activated carbon. *Separation Science and Technology* 2010;45:244-55. doi: 10.1080/01496390903409419
4. Sepehr MN, Al-Musawi TJ, Ghahramani E, Kazemian H, Zarrabi M. Adsorption performance of magnesium/aluminum layered double hydroxide nanoparticles for metronidazole from aqueous solution. *Arabian Journal of Chemistry* 2017;10:611-23. doi: 10.1016/j.arabjc.2016.07.003
5. Cunningham VL, Buzby M, Hutchinson T, Mastrocco F, Parke N, Roden N. Effects of human pharmaceuticals on aquatic life: next steps. *ACS pub*;2006. doi: 10.1021/es063017b
6. Le-Minh N, Khan S, Drewes J, Stuetz R. Fate of antibiotics during municipal water recycling treatment processes. *Water Research* 2010;44:4295-323. doi: 10.1016/j.watres.2010.06.020
7. Zhou LJ, Ying GG, Liu S, Zhao JL, Yang B, Chen ZF, et al. Occurrence and fate of eleven classes of antibiotics in two typical wastewater treatment plants in South China. *Sci Total Environ* 2013;452:365-76. doi: 10.1016/j.scitotenv.2013.03.010
8. Ranjan D, Talat M, Hasan S. Biosorption of arsenic from aqueous solution using agricultural residue 'rice polish'. *J Hazard Mater* 2009;166:1050-9. doi: 10.1016/j.jhazmat.2008.12.013
9. Sulaymon AH, Mohammed AA, Al-Musawi TJ. Removal of lead, cadmium, copper, and arsenic ions using biosorption: equilibrium and kinetic studies. *Desalination and Water Treatment* 2013;51:4424-34. doi: 10.1080/19443994.2013.769695
10. Zazouli MA, Balarak D, Mahdavi Y, Barafrashtehpour M, Ebrahimi M. Adsorption of bisphenol from industrial wastewater by modified red mud. *Journal of Health and Development* 2013;2:1-11.
11. Mahdi Nejad M, Bina B, Nik Aein M, Movahedian Attar H. Effectiveness of alum in injection chitosan and moringa oleifera in removal of turbidity and bacteria from turbid water. *J of Gorgan University of Medical Sciences* 2009;11:60-9.
12. Nadavala SK, Swayampakula K, Boddu VM, Abburi K. Biosorption of phenol and o-chlorophenol from aqueous solutions on to chitosan-calcium alginate blended beads. *Journal of Hazardous Materials* 2009;162:482-9. doi: 10.1016/j.jhazmat.2008.05.070
13. Chiou M-S, Chuang G-S. Competitive adsorption of dye metanil yellow and RB15 in acid solutions on chemically cross-linked chitosan beads. *Chemosphere* 2006;62:731-40. doi: 10.1016/j.chemosphere.2005.04.068
14. Dehghani MH, Ghadermazi M, Bhatnagar A, Sadighara P, Jahed-Khaniki G, Heibati B, et al. Adsorptive removal of endocrine disrupting bisphenol A from aqueous solution using chitosan. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 2016;4:2647-55. doi: 10.1016/j.jece.2016.05.011
15. Seo PW, Khan NA, Jhung SH. Removal of nitroimidazole antibiotics from water by adsorption over metal-organic frameworks modified with urea or melamine. *Chemical Engineering Journal* 2017;315:92-100. doi: 10.1016/j.ccej.2017.01.021
16. Li J-M, Meng X-G, Hu C-W, Du J. Adsorption of phenol, p-chlorophenol and p-nitrophenol onto functional chitosan. *Bioresource Technology* 2009;100:1168-73. doi: 10.1016/j.biortech.2008.09.015
17. Qadri S, Ganoe A, Haik Y. Removal and recovery of acridine orange from solutions by use of magnetic nanoparticles. *Journal of Hazardous Materials* 2009;169:318-23. doi: 10.1016/j.jhazmat.2009.03.103
18. Wu J, Yu H-Q. Biosorption of 2, 4-dichlorophenol from aqueous solution by *Phanerochaete chrysosporium* biomass: Isotherms, kinetics and thermodynamics. *J Hazard Mater* 2006;137:498-508. doi: 10.1016/j.jhazmat.2006.02.026
19. Sari A, Tuzen M. Equilibrium, thermodynamic and kinetic studies on aluminum biosorption from aqueous solution by brown algae (*Padina pavonica*) biomass. *J Hazard Mater* 2009;171:973-9. doi: 10.1016/j.jhazmat.2009.06.101
20. Rivera-Utrilla J, Prados-Joya G, Sánchez-Polo M, Ferro-García M, Bautista-Toledo I. Removal of nitroimidazole antibiotics from aqueous solution by adsorption/bioadsorption on activated carbon. *J Hazard Mater* 2009;170:298-305. doi: 10.1016/j.jhazmat.2009.04.096
21. Shaarani F, Hameed B. Batch adsorption of 2, 4-dichlorophenol onto activated carbon derived from agricultural waste. *Desalination* 2010;255:159-64. doi:10.1016/j.desal.2009.12.029
22. Wang J-P, Feng H-M, Yu H-Q. Analysis of adsorption characteristics of 2, 4-dichlorophenol from aqueous solutions by activated carbon fiber. *J Hazard Mater* 2007;144:200-7. doi: 10.1016/j.jhazmat.2006.10.003





## Performance Evaluation of Chitosan in the Adsorption of Antibiotic Metronidazole from Aquatic Environments: Molding Using Response Surface Methodology Based on Central Composite Design, Isotherm and Kinetic Studies

Mehdi Salari (Ph.D. Student)<sup>1</sup>, Amir Shabanloo (Ph.D. Student)<sup>2</sup>, Mohammad Darvish Motevalli (Ph.D. Student)<sup>3</sup>, Shahrokh Nazmara (Ph.D. Student)<sup>4</sup>, Fatemeh Eslami (M.Sc.)<sup>5\*</sup>

1- Dept. of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Science, Student Research Committee, Hamadan, Iran.

2- Dept. of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Science, Hamadan, Iran.

3- Dept. of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Isfahan University of Medical Sciences, Isfahan, Iran.

4- Dept. of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Tehran University of Medical Sciences, Tehran, Iran.

5- Dept. of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Jiroft University of Medical Sciences, Jiroft, Iran.

Received: 6 February 2019, Accepted: 24 June 2019

### Abstract:

**Introduction:** Antibiotics presence in drinking waters causes health problems for humans. The present study investigated chitosan potential in the adsorption of antibiotic Metronidazole from aquatic environments.

**Methods:** The current study was conducted in an experimental scale in a batch system. The effect of input variables including pH, operating time, chitosan dose, and Metronidazole concentration on the adsorption performance was investigated in a central composite design upon on response surface methodology. Isotherm and kinetic studies also were explored in optimum condition of inputs variables. To detect the residual concentration of Metronidazole, the DR 5000 spectrophotometer at the 320 nm wavelength was applied.

**Results:** The results showed that the adsorption process follows a second-order polynomial model with  $F$ -value=990.936 and  $P < 0.0001$ ,  $R^2 = 0.9989$  and  $Adj-R^2 = 0.9979$ . The optimum level of independent variables includes  $pH = 4.74$ , contact time = 60 min, chitosan dose = 1.5 g/L and Metronidazole concentration = 20 mg/L, in which the highest removal efficiency was obtained about 85%. In the following, it was observed that the adsorption process corresponds to Langmuir isotherm and pseudo-first-order kinetic models with  $R^2$  value of 0.9965 and 0.9859, respectively.

**Conclusion:** In this study, it was observed that the chitosan has a high ability in the adsorption of Metronidazole; therefore, chitosan compound can be proposed as neutral adsorbent with major potential in adsorption of Metronidazole and other similar antibiotics from aqueous environments.

**Keyword:** Metronidazole, Chitosan, Adsorption, Aquatic environments.

Conflict of Interest: No

\*Corresponding author: F. Eslami, Email: fatemeh.eslami6397327@gmail.com

**Citation:** Salari M, Shabanloo A, Darvish Motevalli M, Nazmara Sh, Eslami F. Performance evaluation of chitosan in the adsorption of antibiotic Metronidazole from aquatic environments: molding using response surface methodology based on central composite design, isotherm and kinetic studies. Journal of Knowledge & Health in Basic Medical Sciences 2019;14(1):3-11.