

# حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی به کمک زئولیت طبیعی اصلاح شده

رضا نودهی<sup>۱</sup> و احمد رهبر کلیشمی<sup>۲</sup> \*

۱-کارشناس ارشد مهندسی شیمی، فرایندهای جداسازی، دانشکده مهندسی شیمی نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران، ایران ۲-دانشیار مهندسی شیمی، فرایندهای جداسازی، دانشکده مهندسی شیمی نفت و گاز، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران، ایران

دریافت: اردیبهشت ۱۳۹۸، بازنگری: خرداد ۱۳۹۸، پذیرش: آبان ۱۳۹۸

چکیده: زئولیتها، آلومینوسیلیکاتهای بلوری و آبدار فلزهای قلیایی و قلیایی خاکی هستند که به دلیل ساختار شیمیایی و سطح ویژه مناسب، برای حذف و جداسازی آلایندههای دارویی، رنگی و فلزی مورد استفاده قرار می گیرند. در پژوهش حاضر، زئولیت طبیعی با آسیاب توپی پودر شد. سپس، به کمک ماده سطحفعال کاتیونی ستیل تری متیل آمونیم برمید اصلاح سطح شد. زئولیت اصلاح شده با روشهای فلورسانس پرتو ایکس (XRF) طیف سنجی فروسرخ تبدیل فوریه (FTIR)، میکروسکوپی الکترونی روبشی (SEM)، پراش پرتو ایکس (XRD) و آزمون BET شناسایی شد. برپایه نتیجههای به دست آمده، سطح ویژه، میانگین قطر حفرهها و حجم کل حفرهها زئولیت به ترتیب gy (XRD)، و آزمون PTI شناسایی شد. برپایه به دست آمد. همچنین، کارایی نمونه اصلاح شده برای حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که عامل های محیطی مانند مقدار جاذب مصرفی، زمان تماس، PH، دما و غلظت اولیه محلول در بازدهی حذف دارو موثر هستند. همچنین، دادههای آزمایشگاهی فرایند جذب آموکسی سیلین با مدل هم دمای فرندلیچ و سینتیک شبه مرتبه دوم همخوانی بیشتری دارند. طبق مدل هم دمای فرندلیچ، ظرفیت جذب آموکسی سیلین با مقدار جاذب مصرفی ای ۲۶، زمان تماس ۱۸۰ دقیقه، PH برابر ۹ و غلظت اولیه ۲۰۰۹ داری وی ۱۲۰ رسید.

واژههای کلیدی: جذب سطحی، زئولیت، اصلاح سطح، حذف آموکسی سیلین

#### مقدمه

داروها و فراوردههای مراقبت شخصی، بهطور گسترده در زمینههای متفاوت مانند پزشکی، صنایع کشاورزی، آبزی پروری و دامداری در زندگی روزمره مردم استفاده می شوند. حضور داروها در پسابها، مشکلات زیست محیطی فراوانی را برای انسان، حیوانات و گیاهان

ایجاد میکنند. تولید جهانی دارو از سال ۲۰۰۰ روند افزایشی به خود گرفت، به طوری که در سال ۲۰۰۳ مقدار تولید داروی پنیسیلین به ۲۸۰۰۰ تن در سال رسید که معادل با ۶۰ درصد مصرف جهانی پادزیست<sup>۱</sup> در سال بود. بیش از ۵۰ فراورده پادزیست در جهان تولید میشود که در بین آنها آموکسیسیلین <sup>۲</sup>، استامینوفن<sup>۳</sup> و پنیسیلین<sup>۴</sup>

1. Antibiotic 2. Amoxicillin 3. Acetaminophen 4. Penicillin

«عهدهدار مكاتبات: ahmadrahbar@iust.ac.ir

حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی به کمک ....

بیش از سایر پادزیستها تولید می شود [۱]. آموکسی سیلین یکی از مهمترین گروههای دارویی پادزیست، بتالاکتام است که برای درمان عفونتهای بدن و بهعنوان یک داروی ضدویروس برای انسان تجویز می شود. این دارو هر چند که غلظت آن در محیط بسیار پایین باشد ولی بهراحتی میتواند کیفیت آب و اکوسامانه را تحت تاثیر قرار دهد و بهعنوان یک خطر جدی برای محیطزیست بشمار آید به گونهای که اثرهای سمی آن می تواند به موجودات زنده آسیب جدی برساند. حضور حلقه بتالاکتام در ساختار شیمیایی آموکسی،سیلین، افزون بر عدم تکثیر باکتریها، منجر به از بینبردن آنها بر دیواره سلولی می شود [۲]. حدود ۳۰ تا ۹۰ درصد ترکیبات دارویی در بدن انسان و حیوانات دگرگشت<sup>۲</sup> نمی شوند و از راه ادرار یا مدفوع بهصورت یک ترکیب فعال وارد محیطزیست شده که به دنبال أن پیامدهای جدی و خطرناکی را به همراه خواهند داشت [۱، ۳ تا ۶]. گزارشها حاکی از آن است که ۶۰ درصد آموکسی سیلین مصرف شده توسط انسان بدون تغییر از بدن دفع می شود [۲]. دستگاههای تصفیه شهری توانایی لازم برای حذف ترکیبات فعال دارویی در محیطزیست را ندارند [۷]. بنابراین، فناوریهای زیادی برای حذف ترکیبات دارویی از پسابها به کار گرفته شدهاند که می توان به فرایندهای اکسایش پیشرفته [۸]، تخریب فوتو کاتالیستی [۹]، رسوب شیمیایی، تبادل یونی [۱۰]، برق کافت، نانوصافش [11]، زیستواکنشگاه<sup>\*</sup>های غشایی [۱۲]، واکنشگاههای پلاسما [۱۳] و جذب سطحی اشاره کرد [۴ و۱۴]. در این میان، فرایند جذب به دلیل پایین بودن هزینههای عملیاتی، انعطاف پذیری بالا، عدم حساسیت به ترکیبات سمی و آلایندهها، عدم تولید ماده ثانویه در سامانه، امکان بازیابی و کاهش جاذب، بازده و سطحویژه بالا برای حذف، یک فرایند امیدوارکننده برای کاهش آلایندههای دارویی، فلزي و رنگي است [۲ و ۵].

انتخاب جاذب مناسب، یک عامل بسیار موثر در فرایند جذب سطحی بهشمار می آید. کربن فعال بهدلیل ویژگیهای ساختاری و بافت متخلخل، دارای سطح ویژه بالایی است. همچنین، بهدلیل طبیعت شیمیایی، این ماده به آسانی قابلیت اصلاح شیمیایی را

دارد. اما این ماده در کنار مزایای بسیار خوب، معایبی مانند قیمت بالا نسبت به سایر جاذبها، غیرانتخابی بودن و غیرموثر بودن در برابر آلایندهها، کاهش مجدد کربن فعال و قیمت بالای کاهش، آسان نبودن عمل کاهش و کاهش مقدار جذب پس از به کارگیری دوباره را نیز دارد. به همین دلیل برای تصفیه پسابها، تلاشهای بسیاری برای جایگزین کردن جاذبهای ارزان قیمت انجام شده است. از میان این جاذبهای ارزان قیمت و طبیعی می توان به مواد معدنی رسی، زئولیتها، مواد سیلیکایی، ضایعات کشاورزی، مواد زائد صنعتی و جاذبهای زیستی اشاره کرد [۱۵]. زئولیتها، آلومينوسيليكاتهاي بلوري و آبدار فلزهاي قليايي و قليايي خاکی هستند که به دلیل ویژگیهای ساختاری و شیمیایی خود مانند غربال ملکولی و تبادل یون، توانایی جذب و جداسازی مواد را دارند. ویژگیهای ساختاری مانند نسبت Si/Al، حجم، اندازه و شکل حفرهها و کانالها در ساختار زئولیت برای جذب آلايندهها موثر واقع مي شوند [١۶]. با توجه به پايين بودن ظرفيت جذب جاذبهای طبیعی، اصلاح آنها با یک محلول آنیونی و یا کاتیونی و یا به عبارت بهتر یک محلول اسیدی و یا یک محلول بازی، انجام می شود. برای این منظور، محلول های متفاوتی مانند H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 'MgCl<sub>2</sub> 'NaOH 'HCl و غیرہ به کار گرفته می شوند. یکی از موارد اصلی در اصلاح سطح با محلولها، مواد بسپاری، زیستی و ماده فعال در سطح، اثر افزایشی بر سطح ویژه جاذب است. در اثر این اصلاح در مرحله نخست، حذف ترکیبات زائد منافذ اتفاق میافتد. در این صورت منافذ در دسترستر، در تماس با محلول قرار می گیرند و در نتیجه مقدار بازده حذف افزایش مییابد [۱۷]. در این پژوهش، ابتدا برای تولید ذرات جاذب با مش ۲۰ تا ۵۰ (معادل ۸۴۱ تا ۲۹۷ میکرون)، از آسیاب توپی استفاده شد. سپس، سطح جاذب با بهرهگیری از عامل اصلاح کننده، پوشش داده شد. پس از شناسایی جاذب به روشهای متفاوت، به بررسی مدلهای همدما و سینتیک فرایند جذب داروی آموکسی سیلین از محیط آبی با جاذب اصلاح شده، يرداخته شد.

<sup>1.</sup> β-lactam 2. Metabolism 3. Nanofiltration 4. Bioreactor

# **بخش تجربی** مواد و روش ها

در این پژوهش، تمام مواد شیمیایی مورد استفاده شامل ماده سطحفعال ستیل تری متیل آمونیم برمید (CTAB)<sup>۱</sup>، سدیم هیدروکسید، هیدروکلریک اسید، سدیم نیتریت(NaNO<sub>2</sub>)، پارا آمینوبنزوئیک اسید (PABA)<sup>۲</sup> و آمونیاک ۲۶ درصد از شرکت مرک آلمان خریداری شد. همچنین، پودر آموکسیسیلین از شرکت داروسازی دانا تهیه شد. برای تهیه و رقیقسازی محلولها شرکت داروسازی دانا تهیه شد. برای تهیه و رقیقسازی محلولها در تمام آزمایش ها آب یونزدوده به کارگرفته شد. همچنین، زئولیت به کارگرفته شده در این پژوهش از معدن زئولیت روستای چاه سوخته در استان خراسان رضوی شهرستان سبزوار، تهیه شد. آماده شده با آزمون های TSR<sup>۳</sup>، SEM<sup>۵</sup>، CRS<sup>4</sup> و آماده شده با آزمون های TSR<sup>۳</sup>، SEM<sup>3</sup>، روستای قلظت محلول از دستگاه طیفسنج نور مرئی–فرابنفش مدل Shimadzu UV-Vis 1800

# آمادەسازى جاذب

آمادهسازی جاذب با روشی که شایسته و همکارانش در سال ۲۰۱۶ بهکارگرفتند، الگوبرداری شد [۸۸]. برای شروع بهمنظور حذف ناخالصی های موجود شامل خاک و گل بر زئولیت، ابتدا چندین بار با آب شهری و در ادامه ۵ مرتبه با آب یونزدوده، شسته شد. شستشو با آب شهری تا زمانی ادامه پیدا کرد که محلول به دست آمده از شستشو به طور کامل بی رنگ شود. زئولیت شستهشده به مدت ۱۲ ساعت در دمای C° ۸۰ در آون خشک شد. پس از آن برای تولید ذرات با مش ۲۰ تا ۵۰ (معادل ۸۴۱ تا ۲۹۷ میکرون)، آسیاب توپی بهکارگرفته شد. زئولیت پودر شده دوباره با آب مقطر شسته و به مدت ۲۴ ساعت در دمای C° ۸۰ خشک شد. زئولیت آمادهشده برای افزایش مقدار ظرفیت تبادل کاتیونی با محلول سدیم کلرید، با هدف از بینبردن کاتیونهای ویژه ساختار زئولیت، اصلاح شد. برای انجام این کار، زئولیت به

محلول ۱ مولار سدیم کلرید افزوده و به مدت ۱۲ ساعت با سرعت ۱۵۰ rpm با دستگاه آون – لرزاننده هم زده شد. در پایان، زئولیت چندین بار با آب یونزدوده شسته شد و در دمای C° ۸۰ به مدت ۲۴ ساعت خشک شد. در ادامه، ۴۰ گرم زئولیت به ۴۰۰ میلیلیتر محلول یک درصد CTAB (~ ۲۰٫۰مولار) افزوده شد. سپس، زئولیت اصلاحشده را با تهنشین و صافکردن، برای حذف ماده سطحفال باقیمانده بر سطح آن، چندین بار با آب شهری و سپس، با آب یونزدوده شسته و در پایان در دمای C° ۲۰ به مدت ۸ ساعت خشک شد. همچنین، برای اطمینان از حذف ماده سطحفعال باقیمانده بر سطح زئولیت، عملیات شستوشو یکبار دیگر نیز انجام شد.

روش اندازه گیری آموکسی سیلین در محلول های آبی

محلول اکثر دارو ها در آب بی رنگ است. برای تهیه محلول مادر آموکسی سیلین، ۱ گرم از این دارو در ۱ لیتر آب یون زدوده تهیه شد. محلول های با غلظت کمتر با به حجم رساندن مقادیر معینی از محلول مادر، به دست آمدند. m<sub>av</sub> در گستره ۲۷۲ nm مربوط به جذب آموکسی سیلین است. برای شناسایی داروی آموکسی سیلین در آب از شناساگرهای سدیم نیتریت (۰٫۰۰۱ M)، پارا آمینوبنزوئیک اسید (۰٬۰۰۱ M)، هیدروکلریک اسید (۱ M) و آمونیاک ۲۶ درصد استفاده شد. برپایه این روش، ۱ میلی لیتر از محلول سدیم نیتریت ۰۰۰۱ مولار و ۱ میلی لیتر از محلول ۰٬۰۰۱ مولار PABA به همراه ۰٫۵ میلیلیتر از هیدروکلریک اسید ۱ مولار، درون بشر آزمایشگاهی به حجم ۱۰ میلی لیتر افزوده شد و به مدت ۲ دقیقه در شرایط اختلاط گردابی قرار گرفت تا محلول یکنواختی ایجاد شود. سپس، ۳ میلی لیتر از محلول حاوی آموکسی سیلین (در گستره غلظت ۲٫۵ تا ۵ ppm) به آن افزوده شد. در نهایت، برای اعمال تغییر رنگ، ۱ میلی لیتر محلول آمونیاک به درون بشر آزمایشگاهی ریخته شد. رنگ محلول از حالت بیرنگ به زرد تغییر پیدا کرد و پس از ۱۵ دقیقه واکنش کامل شد و رنگ محلول به مدت ۱۵ دقیقه در حالت پایدار باقی

 1. Cetyltrimethylammonium bromide
 2. Para-aminobenzoic Acid
 3. X-ray fluorescence
 4. Fourier Transform Infrared Spectroscopy

 5. scanning electron microscope
 6. X-ray powder diffraction
 7. Brunauer–Emmett–Teller

نشریه پژوهشهای کاربردی در شیمی (JARC)

حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی به کمک ....

ماند. با افزودن شناساگر آمونیاک، طول موج بیشینه محلول حاوی آموکسی سیلین از ۲۷۲ به ۳۵۳ مافزایش پیدا کرد [۱۹]. در این پژوهش، برای محاسبه تغییرات غلظت باقیمانده محلول آموکسی سیلین از نمودار استاندارد جذب در برابر غلظت، ضریب جذب مولی آموکسی سیلین محاسبه و با قانون بیرلامبرت<sup>۱</sup> غلظت های نهایی به دست آمد. همچنین، نمودارهای همدما جذب برای توضیح حالت تعادل جذبی در محلولهای آبی بررسی شدند.

درصد حذف آموکسی سیلین از معادله ۱ و مقدار ظرفیت جذب از معادله ۲ بهدست آمد.

$R = ((C_0 -$	$C_{0}/C_{0} \times 1$	100 (	۱)
	- ez 11z	1	

 $q_e = (C_0 - C_e) (V/M)$ <sup>(Y)</sup>

که در آنها،  $C_0$ ،  $C_0$  و R به ترتیب غلظت اولیه، غلظت تعادلی  $C_0$ ،  $C_0$ ، الیتر) و M دارو (mg/l)، بازده دارو جذبشده، V حجم محلول (لیتر) و مقدار وزن جاذب (گرم) است.

#### نتيجه ها و بحث

آزمون XRF

درصد وزنی (٪)	ترکیب
۶۲, <b>۲</b>	SiO <sub>2</sub>
٩,۶	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
۱٫٨	K <sub>2</sub> O
<٠,١	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
$\Delta / \Delta$	CaO
۲٫۴	Na <sub>2</sub> O
• , <b>A</b>	MgO
<•, \	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
• / • •	SO <sub>3</sub>
٠,٢	TiO <sub>2</sub>
• / ١	MnO
۱ <i>۶</i> /۹	ترکیبهای فرار*
* Loss of ignition	

جدول ۱ آزمون XRF زئولیت کلینوپتیلولیت

برپایه نتیجه های بهدست آمده از آزمون زئولیت منطقه سبزوار با دستگاه XRF، ۷۶ درصد زئولیت طبیعی منطقه سبزوار، کلینوپتیلولیت و بقیه آن کلسیت است. نتیجه های آزمون زئولیت با دستگاه XRF در جدول شماره ۱ آمده است. طبق این نتیجه نسبت جرمی SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> در این زئولیت برابر ۶٬۵۵ و درصد ترکیب های فرار ۱۶٬۹ درصد است.

طیفهای FTIR

شکل ۱ طیف FTIR زئولیت در گستره ۵۰۰ تا ۴۵۰۰ cm<sup>-۱</sup>، ماده فعال در سطحفعال CTAB و زئولیت اصلاحشده با CTAB، را در گستره ۵۰۰ تا ۴۵۰۰ cm<sup>-۱</sup> نشان میدهد.

طیف FTIR زئولیت نشان میدهد که قلههای اصلی این ماده در ناحیههای ۲۴۴۴، ۱۹۳۷، ۱۹۲۹، ۱۰۶۱، ۲۹۶، ۶۰۶ و ۴۷۰ cm<sup>-1</sup> تشکیل شده است. نوار جذبی مشاهدهشده در ۱۰۶۱ cm<sup>-1</sup> میتوان مربوط به ارتعاش های کششی نامتقارن ۱۰۶۱ cm<sup>-1</sup> میتوان مربوط به ارتعاش های کششی نامتقارن داm<sup>-1</sup> میتوان مربوط به ارتعاش های کششی نامتقارن Si-O-Si و Si-O-Al به ترتیب در پیوندهای Si-O-Si و Si-O-Al است. از طرفی، نوار جذبی <sup>1</sup>-



شکل ۱ طیفهای FTIR زئولیت کلینوپتیلولیت، CTAB و زئولیت اصلاحشده با CTAB

<sup>1.</sup> Beer Lambert Law

می توان مربوط به ارتعاش های کربنی در شبکه بلوری زئولیت دانست. از طرفی، نوار پهن ایجادشده در <sup>۱-</sup> ۳۴۴۴ بهدلیل ارتعاشات پیوند OH- گروههای سیانولی سطح (بهدلیل آب جذب شده از محیط و حضور گروههای غیرمتراکم OH-) است. همچنین، ارتعاشهای خمشی مولکولهای H-O-H همراه با NA و Ca نیز در <sup>۱-</sup> ۲۵۳ مهای خمشی مولکولهای H-O-H همراه با NA و Ca نیز در <sup>۱-</sup> ۲۵۳ مهای خشی مشاهده شده <sup>۱-</sup> ۲۵۳ د<sup>1-</sup> می توان به ارتعاش های کششی نامتقارن در ۴۷۰ و <sup>۱-</sup> ۲۵۴ را می توان به ارتعاش های کششی نامتقارن که در شکل ۱ نشان داده شده است، CTAB دارای دو نوار جذبی اصلی در گستره ۲۸۰۰ تا <sup>1-</sup> ۲۰۰۰ ست. نوارهای شدید ۲۸۴۸ و اصلی در گستره ۲۸۰۰ تا <sup>1-</sup> ۲۰۰۰ ست. نوارهای شدید ۲۸۴۸ و زنجیره متیلن (ارتعاشات H-O- در <sub>2</sub> CTAB به ترتیب به ارتعاشهای زنجیره متیلن (ارتعاشات H-O- در <sub>2</sub> CTAB) نامتقارن انبساطی و <sup>1-</sup> ۲۹۲۰ در ساختار CTAB به ترتیب به ارتعاشهای زنجیره متیلن (ارتعاشات H-O- در <sub>2</sub> CTAB) مامتقارن انبساطی و زنجیره متیلن (ارتعاشات H-O- در <sub>2</sub> CTAB) مامتقارن انبساطی و راتجار داد. همچنین، قله شدید مشاهده در در CT<sub>4</sub> ممکن است بهدلیل ارتعاش های برشی گروه <sub>2</sub> CH–

# تصویرهای SEM

به منظور ریختشناسی زئولیت و زئولیت اصلاحشده از آزمون SEM استفاده شد. در شکل ۲ تصویر SEM ذرات زئولیت پیش از اصلاح نشان داده شده است. بهروشنی میتوان دید که ذرات زئولیت بهصورت نامنظم و صفحه صفحه است که این صفحهها بهصورت لایه ای روی هم قرار گرفته اند، که در این حالت مکانهای جذبی مناسبی را برای جذب گونههای متفاوت فراهم میکند.

از طرفی، پس از اصلاح سطح زئولیت با ماده سطحفعال CTAB، شکل ذرات زئولیت دچار تغییر محسوسی شد (شکل ۳). به عبارت بهتر، سطح خارجی زئولیت با ماده سطحفعال پوشیده شده و سطحی به نسبت یکنواخت و هموار را ایجاد کرده اما همچنان حالت لایه ای خود را حفظ کرده است.



شكل ۲ تصوير SEM زئوليت طبيعي پيش از اصلاح



شكل ٣ تصوير SEM زئوليت طبيعي اصلاح شده با CTAB

# آزمون BET

پارهای از ویژگیهای فیزیکی زئولیت با آزمون جذب گاز  $N_2 N_2$  در دمای K دمای V/PK و در گستره فشار نسبی (P/P) (P/P) مشخص شد. نمونه مورد آزمایش پیش از جذب  $N_2 N_2$  به مدت دو ساعت در دمای نمونه مورد آزمایش پیش از جذب N به مدت دو ساعت در دمای C °C °C گازدایی شد. همان طور که در شکل ۴ مشاهده می شود، زئولیت از مدل همدمای نوع IIB بر پایه گروهبندی IUPAC پیروی می کند. بر این پایه، مقدار سطح ویژه، میانگین قطر و

<sup>1.</sup> International Union of Pure and Applied Chemistry



حجم کل حفرههای زئولیت با روش استاندارد BET اندازه گیری شد که به ترتیب ۳۱٬۵۵ nm ،۱۱٬۹۳۱ m٫/g و ۹۴۱ cm₃/g به دست آمد. همچنین، بهمنظور بررسی توزیع حفرهها از آزمون جذب BJH استفاده شد. همان طور که در شکل ۵ دیده می شود، توزیع حفرههای زئولیت بیشتر در گستره ۱ تا ۱۰۰ نانومتر است.



شکل ۴ هم دمای جذب و دفع گاز N<sub>2</sub>





الگوي XRD

به منظور بررسی ساختار بلوری و بی شکل نمونه، آزمون پراش پرتو ایکس (XRD) با دستگاه ژاپنی آزمایشگاه بیم گستر تابان انجام شد. گستره زوایای heta برای انجام آزمون XRD بین ۵٬۱۵ تا ۸۰ درجه انتخاب شد. الگوی پراش پرتو ایکس زئولیت طبیعی مورداستفاده در شکل ۶ نشان داده شده است. بررسی و تحلیل الگوی پراش پرتو ایکس این نمونه با توجه به جدول ۲، نشان میدهد که درصد بالایی از این ماده را کلسیم کربنات تشکیل داده است. همچنین، می توان دریافت که ماده فازهای بلوری زیادی دارد.



شكل ۶ الگوى يراش يرتو ايكس زئوليت

جدول ۲ اجزای تشکیل دهنده زئولیت طبیعی مورداستفاده با توجه به الگوی يراش يرتو ايكس آن

نماد	Ref. Code	نام ماده	فرمول شيميايي
α	۹۸-۰۱۱-۵۶۵۷	ترىكلسيم اكسايدسيليكات*	Ca <sub>3</sub> O <sub>5</sub> Si
β	••-•74-••74	كلسيم كربنات	CaCO <sub>3</sub>
δ	۰۷۱۴-۰۰۴-۹۸	ترىآلومينيم ترىفسفاتپنتاهيدرات**	$H_{10}Al_{3}O_{17}P_{3}$

\* Alite \*\* Zeolite VPI-5

نتايج بهدست آمده از بررسی فرايند حذف آموکسی سيلين در این پژوهش، حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی به کمک جاذب طبیعی زئولیت اصلاح شده، انجام شد. به منظور بررسی بهتر فرایند، اثر عاملهای متفاوتی همچون زمان، pH، مقدار جاذب، غلظت اولیه محلول و دما مورد بررسی قرار گرفت. پس از انجام آزمایش ها، به منظور جداسازی جاذب از محلول دارو، از دستگاه گریزانه با دور ۶۰۰۰ rpm به مدت یک ساعت استفاده شد.

تاثیر مقدار جاذب مصرفی بر فرایند حذف داروی آموکسی سیلین تاثیر مقدار جاذب مصرفی بر فرایند حذف داروی آموکسی سیلین با غلظت PH و PH برابر ۷ در مدت ۱۸۰ دقیقه و در دمای محیط بررسی شد. نتایج این مرحله در شکل ۷ نشان

نشریه یژوهشهای کاربردی در شیمی (JARC)

یا خنثی باشد. رفتار داروی آموکسی سیلین در گسترههای متفاوت pH را می توان با در نظر گرفتن pH توصیف کرد. pH برای زئولیت و زئولیت اصلاحشده به ترتیب برابر با ۰٫۰ و ۰٫۴ به دست آمد (شکل ۹). زمانی که pH محلول از pH بیشتر است، سطح جاذب بار منفی و در pHهای کمتر از pH<sub>nzc</sub> سطح جاذب بار مثبت دارد. در شکل ۸ مشاهده می شود که ظرفیت جذب در گستره pH برابر با ۳ تا ۹، افزایش پیدا کرده است. این روند ممکن است به دلیل تغییر گروه های کربوکسیل (COOH) موجود در ساختار مولکولی آموکسی سیلین به کربوکسیلات (-COO-) باشد كه بهدنبال آن جاذبه الكترواستاتيكي بين مولكول هاي آنيوني آموكسى سيلين (-COO-) و سطح با بار مثبت زئوليت اصلاح شده، افزایش یافته و بنابراین، بازدهی حذف افزایش پیدا کرده است. کاهش بازدهی حذف در pHهای بازی می تواند ناشی از دافعه الكترواستاتيكي بين سطح با بار منفى زئوليت اصلاح شده و آنیون ها برای جذب بر جایگاه های فعال، بر سطح جاذب باشد. در گستره pH بین ۹ تا ۱۱ نیز مشاهده می شود که ظرفیت جذب روند كاهشي داشته است. اين حالت به دليل افزايش تشكيل هيدروكسيدها (OH-) و رقابت شديد بين أن ها و أنيون هاي (-COO-) موجود در مولکول های آموکسی سیلین برای جذب بر مكان هاى فعال موجود در سطح زئوليت اصلاح شده باشد [٢۴].

می دهد که با افزایش جرم جاذب از ا/g ۵/۰ تا ا/g ۲۰، ظرفیت جذب کاهش ولی بازده جذب افزایش می یابد. ازاینرو، بهدلیل در دسترس بودن بیشتر مکانهای فعال جذب و سطح تماس بیشتر جاذب در مقابل مولکولهای جذب شونده، مقدار بازده حذف با افزایش مقدار جاذب افزایش مییابد. از طرف دیگر، در همه حالتها با افزایش مقدار جاذب، ظرفیت جذب روند کاهشی را نشان داد و این کاهش در مقدار ظرفیت جذب را میتوان ناشی و حجم ثابت دارو، تعداد مکانهای جذبی غیراشباع باقی مانده در طول فرایند بیشتر می شود و دوم با افزایش جاذب و همپوشانی مکانهای جذبی در اثر متراکم شدن مقدار جاذب، ظرفیت جذب تعادلی کاهش مییابد.

# تاثیر pH بر فرایند حذف داروی آموکسی سیلین

در این بررسی، مقدار P/l ۲ جاذب در تماس با محلول آموکسی سیلین با غلظت P۲۰ ppm در PHهای متفاوت و دمای C° C قرار گرفت. از آنجایی که مولکول های آموکسی سیلین طبیعتی آمفوتریک داشته و نقطه ایزوالکتریک برابر با ۵٫۲ دارد، pH فاز محلول، تعیین کننده حالت یونش مولکول های آموکسی سیلین است و بسته به مقادیر pH ممکن است، دارای بار مثبت یا منفی و



شکل ۷ تاثیر مقدار جاذب طبیعی اصلاح شده بر فرایند حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی

سال سیزدهم، شماره۴، زمستان ۹۸

حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی به کمک ....



شکل ۸ تاثیر pH بر فرایند حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی



شکل ۹ تعیین نقطه بار صفر (pH<sub>pzc</sub>) زئولیت و زئولیت اصلاح شده

تاثیر زمان تماس بر فرایند حذف آموکسی سیلین

در این بررسی مقدار ا/g ۲ جاذب در تماس با ۵۰ میلیلیتر محلول آموکسی سیلین با غلظت pm ۲۰ در pH برابر ۷ و دمای <sup>C</sup> ۲۵ قرار گرفت. همان طور که در شکل ۱۰ مشاهده می شود، ظرفیت جذب داروها با افزایش زمان تماس روندی افزایشی داشته و پس از مدت زمان معینی با گذشت زمان، این روند کاهش یافته و پس از رسیدن به حالت تعادل با گذشت زمان، تغییری در مقدار جذب رخ نمی دهد. در این پژوهش، فرایند جذب داروها بر جاذب اصلاح شده با تغییرات زمان تماس را می توان شامل دو مرحله دانست؛ جذب اولیه سریع و جذب آهسته در مرحله انتهایی فرایند. بهروشنی معلوم است که جذب سریع اولیه به دلیل میل ترکیبی بالا بین دارو و جاذب رخ می دهد. همچنین، می توان وجود مکان های جذب زیاد و شیب غلظتی انتقال جرم بین جذب شونده و جاذب

را ازجمله دلایل این جذب سریع دانست. از سوی دیگر، بهدلیل اشباعشدن مکانهای جذب و کاهش تعداد فضاهای خالی برای جذب، سرعت جذب در زمانهای پایانی روندی کاهشی دارد.



شکل ۱۰ تاثیر زمان تماس بر فرایند حذف داروی آموکسی سیلین از محیط آبی

تاثیر دمای محلول بر فرایند حذف آموکسی سیلین دمای محلول یکی دیگر از عاملهای تاثیرگذار بر فرایند جذب سطحی است. اثر تغییرات دما بر مقدار ظرفیت جذب زئولیت اصلاح شده در شکل ۱۱ آورده شده است. با افزایش دما از ۲۵ تا ۲٫۵ mg/g خدب آموکسی سیلین از ۲٫۸ mg/g به ۲٫۸ mg/g افزایش پیدا می کند که بیانگر گرماگیر بودن جذب آموکسی سیلین بر زئولیت اصلاح شده است.



شکل ۱۱ تاثیر دمای محلول بر فرایند حذف داروی آموکسیسیلین از محیط آبی

تائیر غلظت اولیه محلول بر فرایند حذف آموکسی سیلین در این بررسی مقدار ۲ g/l ۲ از جاذب در تماس با محلول های آموکسی سیلین در حدود غلظت ۲۰ تاpH،۱۲۰ ppm برابر ۹ و

سال سیزدهم، شماره۴، زمستان ۹۸

دمای C<sup>o</sup> ۲۵ قرار گرفت. با توجه به شکل ۱۲ با افزایش غلظت اولیه محلول آموکسی سیلین از ۲۰ تا ۳۷،۳ مقرایش جذب آموکسیسیلین از ۱۱٫۵ به ۳۷٫۳ mg/g افزایش پیدا می کند. زیرا با افزایش غلظت اولیه در اثر غلبه بر مقاومت انتقال جرم، نیروی محرکه برای انتقال جرم بین فاز محلول و جاذب بیشتر می شود. از طرفی، با افزایش غلظت اولیه، احتمال برخوردهای بیشتر بین مولکول های دارو و جاذب، وجود دارد.



شكل ١٢ تاثير غلظت اوليه محلول بر فرايند حذف داروي آمو كسى سيلين از محيط آبي

بررسی هم دماهای جذب

در این پژوهش، برای بررسی وضعیت تعادلی یک سامانه همدماهای لانگمویر، فروندلیچ و تمکین مورد بررسی قرار گرفتند. همدما لانگمویر، توصیف یک سامانه جاذب-جذبشونده است که در آن مقدار پوشش جذبشونده به صورت تک لایه است. افزون بر آن، این همدما به آسانی برای توصیف رفتار سامانه های دوتایی نیز توسعه یافته است. معادله همدمای لانگمویر به صورت غیر خطی و خطی به مانند زیر بیان می شود:

$$q_e = \frac{q_m K_L C_e}{1 + K_L C_e} \tag{(7)}$$

$$\frac{1}{q_e} = \frac{1}{q_m} + \frac{1}{q_m K_L C_e} \tag{(f)}$$

 ${
m C_e}$  مقدار ماده جذب شده در حال تعادل،  ${
m q_e}\,({
m mg/g})$  علظت ماده جذب شده در حالت تعادل،  ${
m q_m}$  بیش ترین مقدار ظرفیت جذب و  ${
m K_L}$  ثابت لانگمویر است. یکی از عامل های مهم مدل

که به صورت زیر بیان می شود: R\_L است که  $\mathbf{R}_{\mathrm{L}}$ 

$$R_L = \frac{1}{1 + K_L C_0} \tag{(a)}$$

 $\rm R_L>1$  هرگاه ۱ ماده جذب شده است. هرگاه ۲  $\rm R_L>1$  غلظت اولیه ماده جذب شده است. هرگاه ۲ منو باشد جذب سطحی نامطلوب، ۲  $\rm R_L=1$  جذب خطی، R بین صفر و یک، جذب مطلوب و در حالت ،  $\rm R_L=1$  جذب غیرقابلبرگشت است [۲۵].

همدما فرندلیچ برای سامانههای ناهمگن مفید است. حالت خطی و غیرخطی معادله همدمای فرندلیچ به صورت زیر بیان می شود.

$$q_e = k_f C_e^{\frac{1}{n}} \tag{8}$$

$$Logq_e = Logk_f + \frac{1}{nLogC_e} \tag{Y}$$

 $C_{e}$  (mg/g) مقدار ماده جذبشده در حال تعادل،  $P_{e}$  (mg/g) نعادل،  $C_{e}$  ماده جذبشده در حالت تعادل،  $K_{f}$  و n ثابت های جذب فرندلیچ است. به مقدار 1/n شدت جذب نیز گفته می شود [۲۵]. برپایه مدل تمکین، بهدلیل برهم کنشهای بین جاذب و جذب شونده، مقدار گرمای جذب در تمام مولکولهای سطح، بهصورت خطی کاهش یافته و جذب با توزیع یکنواخت از انرژیهای پیوند مشخص می شود.

فرم غیرخطی و خطی همدمای تمکین بهصورت زیر آورده میشود:

$$q_e = \frac{RT}{b_1} Ln(k_t C_e) \tag{A}$$

$$q_e = B_1 Ln(k_t) + B_1 LnC_e \tag{9}$$

(kJ/mol) که در آنها،  $b_1 \cdot B_1 = RT/b_1$  گرمای جذب سطحی (kJ/mol) که در آنها،  $b_1 \cdot B_1 = RT/b_1$  و  $k_1$  ثابت تعادل پیوند برای بیش ترین انرژی جذب است. مقدار

نشریه پژوهشهای کاربردی در شیمی (JARC)

سال سیزدهم، شماره۴، زمستان ۹۸

حذف داروی آموکسیسیلین از محیط آبی به کمک ....

بالای  $b_1$  نمایانگر این است که در مرحله اولیه، مقدار جذب ماده جذبشونده سریع است و مقدار  $k_1$  کم اشاره به پیوند ضعیف میان جذبشونده و جاذب دارد [20 و ۲۶].

نتایج به دست آمده از بررسی هم دماهای جذب لانگمویر، فرندلیچ و تمکین در مورد جذب آموکسی سیلین با زئولیت اصلاح شده در جدول ۳ آمده است. همان طور که مشاهده می شود با در نظر گرفتن ضرایب همبستگی خطی در جذب سطحی داروی آموکسی سیلین بر زئولیت اصلاح شده، می توان گفت که هم دمای فرندلیچ برای آموکسی سیلین همخوانی بیشتری با دادههای تجربی دارند.

## بررسی سینتیک جذب

انتقال جرم جذب بر مکانهای سطحی جاذب و انتشار مولکولهای جذبشده، مراحل متفاوت سینتیک فرایند جذب

سطحی هستند. از این رو، بررسی صحیح از روند فرایند جذب، نیازمند درک صحیح از سینتیک جذب است. به همین دلیل، برای شناسایی مدل مناسب سینتیکی، مدلهای شبهمرتبه اول و شبهمرتبه دوم در این پژوهش مورد استفاده قرار گرفت. برحسب مدلهای داده شده، عاملهای محاسبهشده از هر مدل در جدول ۴ گزارش شده است. برپایه نتایج به دست آمده و با مقایسه ضرایب همبستگی ( $(\mathbf{R}^2)$ ) معادلات سینتیک، مشخص میشود که معادله سینتیک شبهدرجه دوم، همخوانی بهتری با دادههای آزمایشگاهی دارد. افزون براین، از جدول ۴ میتوان دریافت که مقدار ظرفیت تعادلی محاسبهشده ( $(\mathbf{q}_{e,cal})$ ) از معادله شبهمرتبه دوم با ظرفیت تعادلی بهدست آمده از آزمایشها ( $(\mathbf{q}_{e,exp})$ ) همخوانی بهتری دارند. از این رو، معادله شبهمرتبه دوم با دقت بیشتری میتواند جذب داروی آموکسی سیلین بر جاذب مورد استفاده در این پژوهش را، داروی آموکسی سیلین بر جاذب مورد استفاده در این پژوهش را،

جدول ۳ نتایج بهدست آمده از همدماهای جذب برای جذب آموکسی سیلین با زئولیت اصلاح شده

همدما لانگموير			همدما فرندليچ				همدما تمكين			
q <sub>m</sub> (mg/g)	K <sub>L</sub> (L/mg)	R <sub>L</sub>	R <sup>2</sup>	${ m K_F} \ (mg/g)(L/mg)^{1/n}$	n	(1/n)	R <sup>2</sup>	b <sub>T</sub> (J/mol)	K <sub>T</sub> (L/g)	R <sup>2</sup>
۳۳٬۱۱	۰,۱۸۹۵	•,• ۴-•,۲١	۰,۹۲۹	۷٫۶۰۸	۲/۶۲	• ،۳۸	۰ <sub>/</sub> ۹۹۱	۲۸۷٫۹	۱٬۰۸۰	۰,۹۳۸



شکل ۱۳ نمودار هم دماهای لانگمویر، فرندلیچ و تمکین و مقایسه آن ها با دادههای تجربی

## نتيجه گيري

در پژوهش حاضر، اصلاح سطح جاذب طبیعی زئولیت با ماده سطحفعال کاتیونی ستیل تری متیل آمونیم برمید انجام شد. با توجه به تصاویر SEM، می توان گفت که زئولیت ریختی لایه لایه دارد. برپایه آزمون BET، مقدار سطح ویژه، میانگین قطر و حجم کل حفرههای زئولیت به ترتیب g/۹۳ ۱۱٬۹۳۱، سا ۲۱٬۵۵ و مریم کل حفرههای زئولیت به ترتیب g/۹۳ ۱۱٬۹۳۱، سا ۲۵٬۵۵ و مریم کل حفرههای زئولیت به ترتیب g/۹۳ مریم منان داد که مقدار مریم داروی آموکسی سیلین با افزایش دما، زمان تماس و مقدار جاذب افزایش یافته ولی با افزایش غلظت اولیه مقدار حذف کاهش پیدا می کند. شرایط بهینه برای جذب آموکسی سیلین در این پیدا می کند. شرایط بهینه برای جذب آموکسی سیلین در این پروهش عبارت از مقدار جاذب ایر ۲ موکسی سیلین در این مدل در این جذب داروی آموکسیسیلین نشان داد که فرایند جذب با مدل فرندلیچ سازگاری بیشتری نسبت به مدل لانگمویر و تمکین دارد. نتایج نشان داد که جذب داروی آموکسیسیلین بر زئولیت

#### مراجع

- Wang, J.; Wang, S.; Journal of Environmental Management 182, 620-640, 2016.
- [2] Fallahzadeh, R.A.; Korean Journal of Chemical Engineering, journal article 36, 713-721, 2019.
- [3] Xing Zha, S.; Zhou, Y.; Jin, X.; Chen, Z.; Journal of Environmental Management 129, 569-576, 2013.
- [4] Weng, X.; Lin, S.; Zhong, Y.; Chen, Z.; Chemical Engineering Journal 229, 27-34, 2013.
- [5] Kerkez-Kuyumcu, Ö.; Bayazit, S.; Salam, M.A.; Journal of Industrial and Engineering Chemistry 36, 198-205, 2016.
- [6] Liu, H.; Liu, W.; Zhang, J.; Zhang, C.; Ren,

در سال ۱۸۹۸ لاگرگرن<sup>۰</sup> معادله سرعت شبهمرتبه اول را بهصورت معادله ۱۰بیان کرد.

$$\frac{dq_t}{dt} = k_1(q_e - q_t) \tag{1.}$$

که در آن  $q_e e_1 p_1 e_1$  به ترتیب، مقدار میلی گرم ماده جذب شده بر حسب گرم جاذب (mg/g) در حالت تعادل و در زمان (min) هستند. (min<sup>-1</sup>) ثابت سرعت معادله بوده و با انتگرال گیری از معادله ۱۰ در گستره t از صفر تا t و  $q_1$  از صفر تا تا  $q_1$  داریم:

$$Ln(q_e - q_t) = Lnq_e - k_1 t \tag{11}$$

در سال ۱۹۹۵، هو<sup>۲</sup> جذب یونهای فلزی دوظرفیتی را بر سنگ شرح داد [۲۷]. این مدل که به مدل شبهمرتبه دوم معروف است، بهصورت معادله ۱۲ بیان می شود.

$$\frac{dq_t}{dt} = k_2 (q_e - q_t)^2 \tag{17}$$

که در آن  $q_{e} e_{f}$  و  $q_{p}$  به ترتیب، مقدار میلی گرم ماده جذب شده بر حسب گرم جاذب (mg/g) در حالت تعادل در زمان (min) t است. عامل (g/mg min) k<sub>2</sub> (g/mg min) نابت سرعت معادله است. با انتگرال گیری از معادله ۱۲ در گستره t از صفر تا t  $q_{t}$  از صفر تا تا  $q_{t}$  و بازنویسی آن به صورت خطی داریم:

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} \tag{17}$$

جدول ۴ نتایج بهدست آمده از سینتیک جذب برای جذب آموکسیسیلین با زئولیت اصلاح شده

سينتيک شبهمرتبه دوم			ه اول	، شبەمر تبا	سينتيك
$\mathbb{R}^2$	k <sub>2</sub> (g/m min)	q <sub>e ,calc</sub> (mg/g)	R <sup>2</sup>	k <sub>1</sub> (1/min)	q <sub>e,calc</sub> (mg/g)
۰٫۹۸۱	•,•• ١٣۶	۵,۱۱۷۷	۰,۹۳۵	•,••••	۵/۹۷۳

<sup>1.</sup> Lagergern 2. Ho

L.; Li, Y.; Journal of Hazardous Materials 185, 1528-1535, 2011.

- [7] Lima, D.R; Environmental Science and Pollution Research 54, 1-13, 2019.
- [8] Elmolla, E.S.; Chaudhuri, M.; Desalination 256, 43-47, 2010.
- [9] Tran, M.L.; Fu, C.C.; Juang, R.S.; Environmental Science and Pollution Research 80, 1-10, 2019.
- [10] Landry, K.A.; Boyer, T.H.; Water research47, 6432-6444, 2013.
- [11] Vergili, I.; Journal of Environmental Management 127, 177-187, 2013.
- [12] Le, T.H.; Ng, C.; Tran, N.H.; Chen, H.; Gin, K. Y.H.; Water Research 145, 498-508, 2018.
- [13] Tang, S.; Yuan, D.; Rao, Y.; Zhang, J.; Qu, Y.; Gu, J.; Journal of Environmental Management 226, 22-29, 2018.
- [14] Jafari, K.; Heidari, M.; Rahmanian, O.; Ultrasonics Sonochemistry 45, 248-256, 2018.
- [15] Crini, G.; Bioresource technology 97, 1061-1085, 2006.
- [16] Davis, M.E.; Lobo, R.F.; Chemistry of Materials 4, 756-768, 1992.
- [17] Sepehr, M.N.; Amrane, A.; Karimaian, K.A.; Zarrabi, M.; Ghaffari, H.R.; Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers 45, 635-647, 2014.
- [18] Shayesteh, H.; Rahbar-Kelishami, A.; Norouzbeigi, R.; Journal of Molecular Liquids

221, 1-11, 2016.

- [19] Al-Uzri, W.A.; Iraqi Journal of Science 53, 713-723, 2012.
- [20] Kowalczyk, P.; Sprynskyy, M.; Terzyk, A.P.; Lebedynets, M.; Namieśnik, J.; Buszewski, B.; Journal of Colloid and Interface Science 297, 77-85, 2006.
- [21] Mollahosseini, A.; Toghroli, M.; Journal of Asian Scientific Research 5, 120-125, 2015.
- [22] Favvas, E.P.; Tsanaktsidis, C.G.; Sapalidis, A.A.; Tzilantonis, G.T.; Papageorgiou, S.K.; Mitropoulos, A.C.; Microporous and Mesoporous Materials 225, 385-391, 2016.
- [23] Bhadra, B.N.; Ahmed, I.; Kim, S.; Jhung, S.H.; Chemical Engineering Journal 314, 50-58, 2017.
- [24] Kakavandi, B.; Esrafili, A.; Mohseni-Bandpi, A.; Jonidi Jafari, A; Rezaei Kalantary, R.; Water Science and Technology 69, 147-155, 2014.
- [25] Sepehr, M.N.; Kazemian, H.; Ghahramani, E.; Amrane, A.; Sivasankar, V.; Zarrabi, M.; Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers 45, 1821-1834, 2014.
- [26] Allen, S.; Mckay, G.; Porter, J. F.; Journal of Colloid and Interface Science 280, 322-333, 2004.
- [27] Qiu, H.; Lv, L.; Pan, B.C.; Zhang, Q.J.; Zhang, W.M.; Zhang, Q.X.; Journal of Zhejiang University-Science A 10, 716-724, 2009.



# Removal of amoxicillin from an aqueous medium with the modified natural zeolite

R. Nodehi<sup>1</sup> and A. Rahbar-Kelishami<sup>2,\*</sup>

1. M.Sc. in Chemical Engineering, Separation Process, Faculty of Chemical Engineer, Iran University Science & Technology, Tehran, Iran

2. Ph.D. in Chemical Engineering, Separation Process, Faculty of Chemical Engineer, Iran University Science & Technology, Tehran, Iran

Recieved: April 2019, Revised: May 2019, Accepted: November 2019

**Abstract:** Zeolites are crystalline and hydrated aluminosilicates from earth alkali and alkaline metals, which are used for the removal and separation of Pharmaceutical, colored, and metallic pollutants due to their chemical structure and proper surface area. In the present study, first, natural zeolite was powdered by ball mill, and after that, it was modified by a cationic surfactant of the cetyltrimethylammonium bromide. The modified zeolite was investigated by XRF, FTIR, SEM, BET, and XRD techniques, which is based on the BET test, The specific surface area, mean pore diameter, and total volume cavities of zeolite were 11.931 m<sup>2</sup>/g, 31.546 nm, and 0.0941 cm<sup>3</sup>/g, respectively. Additionally, the efficiency of the sample was studied for removal of Amoxicillin from the aqueous medium. The results showed that environmental factors such as Adsorbent dose, contact time, pH, Temperature, and Amoxicillin concentration were effective in removal percentage. In addition, the experimental data of the amoxicillin-adsorption process better matched with the isothermal model of Ferndlich as well as kinetic of the pseudo-second order. According to the Freundlich model, adsorption capacity of amoxicillin with the adsorbent dosage 2 g/l, contact time of 180 min, pH=9, and initial concentration of 120 ppm was 37.3 mg/g.

Keywords: Adsorption, Zeolite, Surface modification, Amoxicillin Removal

<sup>\*</sup>Corresponding author Email: ahmadrahbar@iust.ac.ir