



Research Paper

Equilibrium and Kinetic Study of Ibuprofen Removal from Aqueous Solutions Using Modified Carbon Sesame Straw

Behrouz Sohrabian¹, Soheil Sobhanardakani^{2*}, Bahareh Lorestani³, Mehrdad Cheraghi³ and Heshmatollah Nourmoradi⁴

¹Ph.D. Scholar, Department of the Environment, College of Basic Sciences, Hamedan Branch, Islamic Azad University, Hamedan, Iran

²Professor, Department of the Environment, College of Basic Sciences, Hamedan Branch, Islamic Azad University, Hamedan, Iran

³Assoc. Professor, Department of the Environment, College of Basic Sciences, Hamedan Branch, Islamic Azad University, Hamedan, Iran

⁴Assoc. Professor, Department of Environmental Health Engineering, School of Health, Ilam University of Medical Sciences, Ilam, Iran

Article information

Received: October 12, 2021

Revised: November 15, 2021

Accepted: December 08, 2021

Keywords:

Activated Carbon
Adsorption Isotherm
Aqueous Solutions
Pharmaceutical Residue

*Corresponding author:

s_sobhan@iauh.ac.ir



Abstract

Ibuprofen is one of the most widely used drugs in the world, which affects the health of living organisms by causing pollution in water sources. Therefore, this study was conducted with the aim of determining the effectiveness of modified carbon of straw and sesame stubble in removing ibuprofen from aqueous solutions. For this purpose, ammonium chloride, zinc chloride, and phosphoric acid were used to optimize the adsorbent. Also, the changes in the adsorbent surface and its characteristics were studied using a scanning electron microscope (SEM) and infrared spectroscopy (FTIR) technique. After determining the optimal conditions of pH variables, contact time, temperature, and adsorbent dose, the surface adsorption process was investigated under three Langmuir, Freundlich, and Dubinin-Radoshkevich models. On the other hand, first-order and pseudo-second-order kinetic models were used to process the adsorption data. The results showed that the surface adsorption process followed the Freundlich isotherm model pseudo-second-order kinetics. pH, contact time, initial concentration of ibuprofen, and optimal adsorbent dose were 3, 120 min, 50 mg/l, and 0.10 g/l respectively at 25°C. The results of this study showed that agricultural residues such as straw and sesame stubble can be used as effective and cost-effective adsorbents to remove the remaining pharmaceutical compounds from aqueous solutions.

© Authors, Published by **Environment and Water Engineering** journal. This is an open-access article distributed under the CC BY (license <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).



Introduction

Nowadays, many aquatic ecosystems are threatened owing to growing anthropogenic

pollutants. Among these pollutants, pharmaceutical compounds such as sedatives are toxic compounds even in small amounts can pose serious adverse effects on human



and environmental health. The existence and destiny of these compounds, as emerging micropollutants, and also their residues and their effects on treated wastewater and water resources including rivers, lakes, and seas have encouraged many studies in recent years. The main sources of pharmaceutical residues are domestic and hospital sewage treatment plants. Ibuprofen (IBU) is one of the most widely used drugs all over the world, due to its anti-fever and analgesic properties. This drug infiltrates the environmental cycle in various ways and impacts the health of living organisms by polluting water sources. Nowadays, the production of carbon materials from biomasses such as graphene, activated carbon, carbon nanotube, and carbon nanofiber as adsorbents is growing due to such features as large adsorption capacity, high surface area, porosity, ease of operation, and the simplicity of design. Meanwhile, natural organic adsorbents are among the alternatives for wastewater treatment due to their lower density and price, biodegradability, and renewability. Pharmaceutical compounds are very resistant to hydrolysis and biological and photolytic degradations. Besides, the conventional wastewater treatment process usually is not designed for the complete and efficient removal of these compounds. Therefore, this study was conducted to remove ibuprofen from aqueous solutions using modified carbon sesame straw (MCSS).

Material and Methods

In the current study, all reagents were purchased from Sigma-Aldrich (Spain) and Merck (Germany). Stock solutions of IBU were created by adding 1 g of IBU powder in methanol, and for further tests, IBU solutions were supplied daily by diluting the stock solution using double-distilled water. Sesame straw was used as an adsorbent and ammonium chloride, zinc chloride, and phosphoric acid were utilized for

optimization and the adsorbent efficiency in removing ibuprofen from synthetic aqueous solutions was examined. Any changes in the adsorbent surface and its properties were analyzed using scanning electron microscopy (SEM) and Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR). Test adsorption of IBU onto the synthesized adsorbent was conducted through batch tests at 25 °C. After determining the optimal conditions for pH, contact time, temperature, and adsorbent dose, the adsorption process was evaluated under three models including Langmuir (L), Freundlich (F), and Dubinin–Radushkevich (D-R). The kinetic tests of IBU adsorption onto MCSS were checked at various primary contents (5.0-150 mg/L). Also, two pseudo-first-order (PFO) and pseudo-second-order (PSO) kinetic models were performed for processing the adsorption data. All the adsorption experiments were replicated thrice, and the mean values were considered the final results.

Results

The results indicated that the adsorption isotherm was fitting well with the Freundlich isotherm model, while the adsorption kinetics was well fitted by the PSO model (Tables 1).

Table 1 Obtained parameters for adsorption of IBU onto synthesized adsorbent

Isotherm Model	Parameters	IBU
L	qm (mg/g)	55.6
	b(L/mg)	0.028
	R ²	0.880
F	1/n	1.23
	n	0.815
	Kf (mg/g) (L/mg) ^{1/n}	2.26
	R ²	0.980
D-R	qm (mg/g)	29.8
	E(kj/mol)	0.513
	R ²	0.800

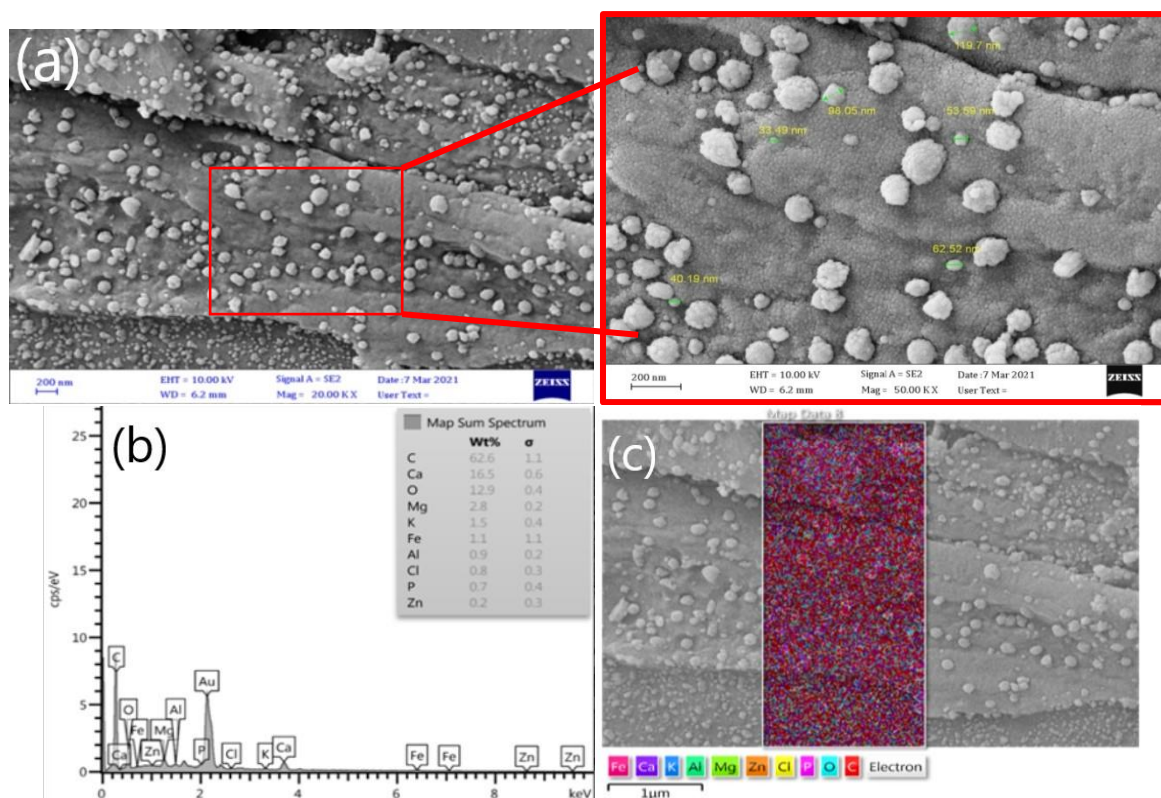


Fig. 1: a) Micrographs of FESEM, b) EDS spectrum, and c) elemental analysis map of activated carbon sample from sesame straw

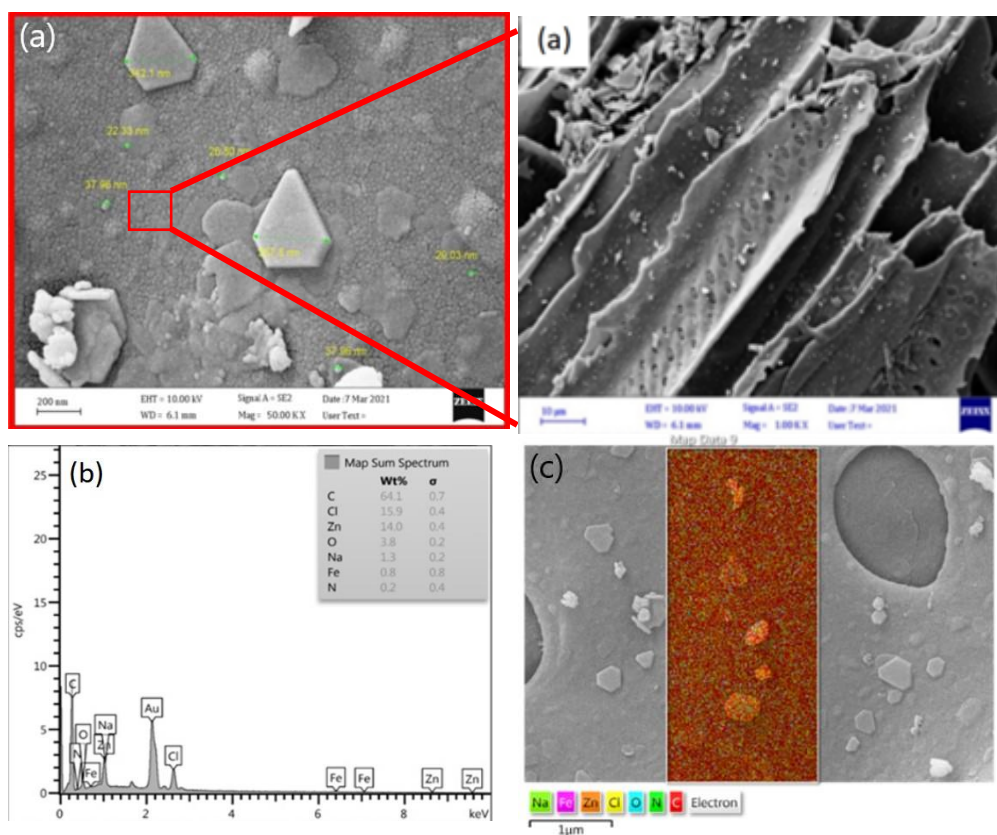


Fig. 2: a) Micrographs of the FESEM test, b) EDS spectrum and c) elemental analysis map of carbon sample modified with zinc chloride

Moreover, it was found that the optimum pH, contact time, initial concentration of

ibuprofen, and adsorbent dose values were 3, 120 min, 50 mg/l, and 0.10 g/l at 25 °C,

respectively. It was also noted that the mechanism of adsorption was complex where several types of interaction between ions and the surface of the prepared adsorbent were involved.

Micrographs of FESEM test; EDS spectrum and elemental analysis map of activated carbon sample from sesame straw are shown in Fig.1. Moreover, micrographs of the FESEM, EDS spectrum, and elemental analysis map of carbon sample modified with zinc chloride are illustrated in Fig. 2.

FT-IR analysis confirmed the existence of the bands at around 768, 871, 1026, and 1402 cm^{-1} , which can be attributed to calcium carbonate. In addition, the band at around 3433 and 1613 cm^{-1} can be attributed to tensile and bending vibration of O-H groups in water, respectively. While the band at around 2926 cm^{-1} can be attributed to asymmetric tensile vibration of C-H. On the other hand, the band at around 2304 cm^{-1} can be attributed to the tensile vibration of O-C-O bonding.

Conclusions

In this descriptive study, the MCSS was prepared and characterized for the removal of IBU from aqueous solutions. The equilibrium adsorption studies display that

the equilibrium data follow the Freundlich model, which indicates that the surface of the MCSS is heterogenous and the mechanism of adsorption does not follow ideal monolayer adsorption. Also, the kinetics of IBU adsorption onto the synthesized adsorbent indicates that the rate of adsorption is fast. Accordingly, based on the results obtained, agricultural residues such as sesame straw could be used as an effective, cost-effective, and eco-friendly adsorbent to remove residual drug compounds from aqueous solutions. Finally, as the reusability of adsorbents is a great important factor in evaluating their potential applications, therefore, design of desorption and reusability experiments are recommended in future studies.

Acknowledgment

The authors are grateful to the Hamedan Branch, Islamic Azad University, and also experts in the water and wastewater chemistry laboratory of Ilam University of Medical Sciences for providing facilities to conduct and complete this study.

Data Availability

The data used in this research are presented in the paper.

Conflicts of interest

The authors declare no competing interests.



ISSN: 2476-3683

محیط زیست و مهندسی آب

Homepage: www.jewe.ir

مقاله پژوهشی

مطالعه تعادلی و سینتیکی حذف ایوپروفن از محلول های آبی به وسیله کربن اصلاح شده کاه و کلش کنجد

بهروز سهرابیان^۱، سهیل سبحان اردکانی^{۲*}، بهاره لرستانی^۳، مهرداد چراغی^۴ و حشمت اله نورمرادی^۴

^۱ دانشجوی دکتری، گروه علوم و مهندسی محیط زیست، دانشکده علوم پایه، واحد همدان، دانشگاه آزاد اسلامی، همدان، ایران
^۲ استاد، گروه علوم و مهندسی محیط زیست، دانشکده علوم پایه، واحد همدان، دانشگاه آزاد اسلامی، همدان، ایران
^۳ دانشیار، گروه علوم و مهندسی محیط زیست، دانشکده علوم پایه، واحد همدان، دانشگاه آزاد اسلامی، همدان، ایران
^۴ دانشیار، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی ایلام، ایلام، ایران

اطلاعات مقاله

چکیده

تاریخ دریافت: [۱۴۰۰/۰۶/۳۱]

تاریخ بازنگری: [۱۴۰۰/۱۲/۱۲]

تاریخ پذیرش: [۱۴۰۰/۱۲/۱۴]

واژه های کلیدی:

ایزوترم جذب

باقی مانده دارویی

کربن فعال

محلول های آبی

*نویسنده مسئول:

s_sobhan@iauh.ac.ir

ایوپروفن یکی از داروهای پر مصرف در سطح جهان است که با ایجاد آلودگی در منابع آبی بر سلامت موجودات زنده تأثیر می گذارد. این پژوهش با هدف تعیین کارایی کربن اصلاح شده کاه و کلش کنجد در حذف ایوپروفن از محلول های آبی انجام شد. بدین منظور، از آمونیم کلرید، روی کلرید، و فسفریک اسید برای بهینه سازی جاذب استفاده شد. همچنین، تغییرات در سطح جاذب و ویژگی های آن با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و تکنیک طیف سنجی مادون قرمز (FTIR) مطالعه شد. بعد از تعیین شرایط بهینه متغیرهای pH، زمان تماس، دما و دوز جاذب، فرآیند جذب سطحی تحت سه مدل لانگمویر، فروندلیچ و دوبینین-رادوشکوچ مورد بررسی قرار گرفت. از طرفی، از مدل های جنبشی سینتیک درجه اول و شبه درجه دوم برای پردازش داده های جذب استفاده شد. نتایج نشان داد که، فرآیند جذب سطحی از مدل ایزوترمی فروندلیچ و سینتیک شبه درجه دو پیروی کرده است. pH، زمان تماس، غلظت اولیه ایوپروفن و دوز جاذب بهینه نیز به ترتیب برابر با ۳، ۱۲۰ min و ۵۰ mg/l و ۰/۱۰ g/l در دمای ۲۵ °C بود. نتایج این مطالعه نشان داد که از بقایای کشاورزی از جمله کاه و کلش کنجد می توان به عنوان جاذب مؤثر و مقرون به صرفه برای حذف باقی مانده ترکیبات دارویی از محلول های آبی استفاده کرد.

۱- مقدمه

مدت طولانی مورد تهدید قرار می دهد، آلودگی محیط به این ترکیبات مورد توجه ویژه ای قرار گرفته است (Ghoochian et al. 2019; Zandipak et al. 2020) که در این میان، به

در سال های اخیر همگام با شناسایی آلاینده های جدید مانند باقی مانده ترکیبات دارویی ناشی از دفع نامناسب پسماندهای حاصل از صنایع تولید دارو و مصرف بی رویه داروها که سلامت موجودات زنده و بوم سازگان های طبیعی را برای



جایگزین و مؤثر برای حذف آلاینده‌ها و به‌ویژه ترکیبات دارویی از محلول‌های آبی مورد استقبال محققان قرار گرفته است (Ahmad 2017). از مزایای اصلی استفاده از جاذب‌های زیستی نسبت به جاذب‌های سینتتیک می‌توان به هزینه کم، به حداقل رساندن مصرف مواد شیمیایی و قابلیت بازسازی آن‌ها اشاره کرد. در این میان، بقایای کشاورزی مواد ارزان قیمتی هستند که می‌توان از آن‌ها برای تولید کربن فعال مقرون به‌صرفه استفاده کرد (Nourmoradi et al. 2016). به‌طوری‌که، تاکنون در سایر مطالعات از انواع بقایای کشاورزی در دسترس همچون ساقه نیلوفر آبی (Njoku et al. 2014)، چوب کاج (Galhetas et al. 2014)، ضایعات زیتون (Baccar et al. 2012)، پوست نارگیل (Quesada-Peñate et al. 2009)، سبوس ذرت (Singh et al. 2006)، پوست گردو (Zabihi et al. 2009)، آرتیمیزیا (Dubey et al. 2010)، پوست لیمو ترش (Ahmad et al. 2017)، بامیه (Üner et al. 2017)، برگ سبز چای (Cheraghi et al. 2015)، دارچین و شاهدانه (Omid et al. 2019)، پوست چنار (Akar et al. 2019) و سبوس برنج (Sobhanardakani et al. 2013)، به‌عنوان جاذب ارزان قیمت استفاده شده است.

برآوردها نشان داده است که حدود ۴۰٪ از مردم ایران به‌صورت خودسرانه دارو مصرف می‌کنند. لذا، ایران با سرانه مصرف سه برابر استاندارد جهانی در زمره ۲۰ کشور پرمصرف دارو در جهان به‌شمار می‌رود و در آسیا بعد از چین مقام دوم را به‌خود اختصاص داده است. از این‌رو، با هدف کاهش مخاطرات ناشی از باقی‌مانده این ترکیبات در محیط‌زیست، در این مطالعه برای اولین بار کارایی حذف ایوپروفن از محلول‌های آبی با استفاده از کربن اصلاح‌شده حاصل از کاه و کلش کنگد ارزیابی شد.

۲- مواد و روش‌ها

۲-۱- مواد مورد استفاده

کاه و کلش کنگد از مزارع کشاورزی اطراف شهر ایلام جمع‌آوری شد. محلول استوک (مادر) 1000 mg/l ایوپروفن از شرکت سیگما-آلدریج اسپانیا و فسفریک اسید، آمونیم کلراید، روی کلرید، سولفوریک اسید، کلریدریک اسید، و سدیم هیدروکسید نیز از شرکت مرک آلمان خریداری شدند. ساختار شیمیایی ایوپروفن در شکل (۱) آورده شده است.

بسیاری از ترکیبات مختلف غیراستروئیدی ضدالتهابی^۱ از جمله ایوپروفن، کتوپروفن و استامینوفن و غیره که در محیط‌های آبی شناسایی شده‌اند، می‌توان اشاره کرد (Nourmoradi et al. 2018).

ایوپروفن به‌عنوان سومین داروی پرمصرف غیراستروئیدی جهان، برای درمان التهاب، دردهای مزمن، تب، درد عضلانی و میگرن مورد استفاده قرار می‌گیرد و غلظت آن در پساب‌های خروجی تصفیه‌خانه فاضلاب شهری در حدود 25 mg/l گزارش شده است (Guedidi et al. 2017). این دارو همانند سایر ترکیبات مشابه، از طریق فعالیت‌های انسانی و به‌صورت مستقیم و غیرمستقیم به محیط و به‌ویژه منابع آب سطحی وارد می‌شود (Hernando et al. 2006).

تاکنون، چندین روش از جمله اولتراسونیک (Méndez-Arriaga et al. 2008)، تخریب الکتروشیمیایی (Ciríaco et al. 2009)، فرآیند اکسیداسیون پیشرفته (Lu et al. 2012; De Luna et al. 2016)، تصفیه زیستی (Pajoum Shariati et al. 2010)، جذب سطحی (Dubey et al. 2010)، استفاده از نانوکمپوزیت‌ها (Cheraghi et al. 2022)، فیلتراسیون و ترسیب شیمیایی (Sharma et al. 2017)، برای حذف باقی‌مانده ترکیبات دارویی به‌عنوان آلاینده‌های نوظهور مورد مطالعه قرار گرفته است. با توجه به هزینه‌های بالا و تولید مواد خطرناک ثانویه توسط بسیاری از روش‌های مورد اشاره (Hu et al. 2018)، فرآیند جذب سطحی به‌دلیل کارایی بالا و مؤثر، مقرون به‌صرفه بودن، قابلیت طراحی و استفاده آسان، عدم تولید محصولات جانبی و نیاز به انرژی کم‌تر، در سال‌های اخیر مورد توجه قرار گرفته است (Dotto and McKay, 2020; Sobhanardakani et al. 2020).

کربن فعال یکی از بروزترین جاذب‌ها برای حذف آلاینده‌هاست که سطح ویژه، تخلخل و ظرفیت جذب بالا باعث شده است به‌طورگسترده برای جذب بسیاری از مواد آلی در آب و فاضلاب مورد استفاده قرار گیرد (Njoku et al. 2016; Nourmoradi et al. 2014). این در حالی است که، هزینه سرمایه‌گذاری بالا و مشکلات مربوط به کنترل دمای کربن مصرفی محدودیت‌های استفاده از آن محسوب می‌شود (Galhetas et al. 2014). برای غلبه بر این محدودیت‌ها، استفاده از جاذب زیستی، به‌عنوان یک روش

¹Non-steroidal Anti-inflammatory Drugs

میانگین مقادیر برای آنالیز داده‌ها مورد استفاده قرار گرفت. در این مطالعه، مقادیر ظرفیت جذب به‌وسیله رابطه (۱) محاسبه شد.

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{M} \quad (1)$$

که، q_e بیان‌گر ظرفیت جذب بر حسب mg/g C_0 ، نشان‌دهنده غلظت اولیه ماده جذب شونده بر حسب mg/L ، C_e بیان‌گر غلظت تعادل ماده جذب شونده بر حسب mg/L ، V نشان‌دهنده حجم نمونه (l) و M نیز بیان‌گر جرم جاذب (g) هستند (Nourmoradi et al. 2016).

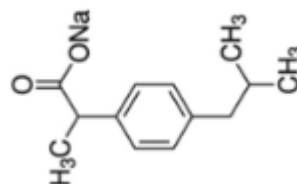
پس از انجام آزمایش‌های جذب سطحی، رفتار سیستم جذب توسط سه مدل ایزوترم مورد ارزیابی قرار گرفت که معادلات مربوط به مدل لانگمویر (Langmuir: L) در رابطه‌های (۲) و (۳) آورده شده‌اند.

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{qmC_e} + \frac{1}{KLqm} \quad (2)$$

$$RL = \left[\frac{1}{(1 + KL C_0)} \right] \quad (3)$$

که، q_e و q_e به‌ترتیب بیان‌گر میزان ایوبورفن جذب شده به روی سطح جاذب (mg/L) و زمان تعادل T هستند. K نشان‌دهنده ثابت سرعت درجه اول ($1/\text{min}$) و k_2 نیز نشان‌دهنده ثابت سرعت واکنش درجه ۲ (g/mg.min) است. در معادله ایزوترم، q_e نشان‌دهنده مقدار جذب‌شده در واحد جرم جسم جاذب (mg/g)، C_e نشان‌دهنده غلظت تعادلی ماده جذب شدنی در محلول بعد از جذب سطحی (mg/L) و q_m و k نیز به‌ترتیب بیان‌گر ظرفیت جذب و ثابت لانگمویر (l/mg) هستند (Talebzadeh et al. 2016). R_L نشان‌دهنده ضریب جداسازی و مؤلفه‌ای بدون بعد است. C_0 بیان‌گر غلظت اولیه ماده جذب‌شونده در محلول (mg/L) و K_L نیز ثابت ایزوترم لانگمویر است. R_L بزرگ‌تر از یک، به‌مفهوم جذب نامطلوب، R_L مساوی با یک، بیان‌گر جذب خطی، R_L بین صفر و یک نشان‌دهنده جذب مطلوب و R_L برابر با صفر نیز نشان‌دهنده جذب برگشت‌ناپذیر است (Santaeufemia et al. 2018). در این مطالعه، به‌جز مدل لانگمویر، رفتار سیستم جذب توسط مدل‌های فروندلیچ (Freundlich: F) (رابطه ۴) و دوبینین-رادوشکویچ (Dubinin-Radushkevich: D-R) (رابطه‌های ۵ تا ۷) نیز به‌شرح مندرج در ذیل مورد ارزیابی قرار گرفت.

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



شکل ۱- ساختار شیمیایی ایوبورفن

Fig. 1 Chemical structure of IBU

۲-۲- آماده‌سازی کربن فعال

برای آماده‌سازی کربن فعال، ابتدا کاه و کلش کنگد به قطعات $0.5 \times 1 \text{ cm}$ برش داده شد و پس از آن فرآیند تولید کربن طی سه مرحله خرد کردن و شستشو، کربنیزاسیون و فعال‌سازی انجام شد. بدین صورت‌که، در مرحله شستشو و خرد کردن، مواد خردشده در داخل فور و در دمای 105°C به‌مدت 24 h قرار داده شد. برای کربنیزاسیون، مواد تهیه شده از مرحله قبل به‌مدت 1 h در کوره 600°C حرارت داده شد. در نهایت، مرحله فعال‌سازی با روش شیمیایی حرارتی انجام شد. در این پژوهش، از آمونیم کلراید، روی کلراید و فسفریک اسید در دو نسبت جرمی $1:1$ و $1:2$ برای فعال‌سازی استفاده شد. بدین منظور، 4 g و 8 g از این مواد شیمیایی به‌طور جداگانه در لوله فالتکون 50 ml حاوی 20 ml آب مقطر حل شد. سپس، 4 g جاذب کربن به محلول‌ها اضافه شد و در مرحله بعد نسبت به فعال‌سازی سوسپانسیون‌هایی که به‌مدت 2 h در دمای 90°C حرارت داده شده بودند، اقدام شد (Nourmoradi et al. 2018). پس از آن، کربن فعال تولیدی، آسیاب و برای دستیابی به ذرات 200 تا $500 \mu\text{m}$ مش‌بندی شد. در گام آخر، ذرات حاصل چندین بار با آب دوبار تقطیر شستشو داده شده و سپس به‌مدت 2 h در دمای 105°C خشک شدند.

۲-۳- آزمایش‌های جذب سطحی

این مطالعه توصیفی، در مقیاس آزمایشگاهی و به‌صورت ناپیوسته در دمای اتاق یعنی $25 \pm 2^\circ\text{C}$ انجام شد. به‌منظور انجام آزمایش‌های جذب سطحی، 100 ml از محلول ایوبورفن و 0.1 g از جاذب تهیه شده داخل ارلن 250 ml ریخته شد و توسط همزن با شدت اختلاط 200 rpm هم‌زده شد. پس از انجام فرآیند جذب، سوسپانسیون، از فیلتر $0.2 \mu\text{m}$ عبور داده شد و توسط دستگاه اسپکتوفوتومتر مدل DR5000 ساخت شرکت Hach آمریکا در طول موج 220 nm اندازه‌گیری شد (Nourmoradi et al. 2018). لازم به‌ذکر است که همه آزمایش‌ها در سه تکرار انجام شد و

موج ۲۲۰ nm اندازه گیری شد (Nourmoradi et al. 2018).

۲-۳-۲- تأثیر سایر پارامترها بر فرآیند جذب

در این مطالعه، تأثیر زمان تماس از ۲۰۰-۰ min در ۷ = pH، مقدار جاذب برابر با ۰/۱۰۰ g/l و غلظت ایوپروفن برابر با ۵۰/۰ mg/l؛ تأثیر pH محلول در دامنه ۹/۰۰-۳/۰۰ در زمان ۱۲۰ min، مقدار جاذب برابر با ۰/۱۰۰ g/l و غلظت ایوپروفن برابر با ۵۰/۰ mg/l؛ تأثیر غلظت ایوپروفن در دامنه ۵۰/۰-۱۵۰ mg/l در زمان ۱۲۰ min، pH = ۳ و مقدار جاذب برابر با ۰/۱۰۰ g/L و همچنین، تأثیر مقدار جاذب در دامنه ۰/۵۰۰-۰/۰۵۰ g/l در زمان ۱۲۰ min، pH = ۳ و مقدار ماده جذب شونده برابر با ۵۰/۰ mg/l بر فرآیند جذب ایوپروفن توسط جاذب همگی در دمای اتاق (۲۵ °C) مورد بررسی قرار گرفتند.

۲-۴- مشخصات جاذب سنتز شده

از طیفسنجی مادون قرمز (FT-IR)^۱ برای بررسی گروه های عاملی موجود روی سطح جاذب در محدوده (۴۰۰۰-۴۰۰ cm⁻¹) به وسیله دستگاه اسپکتروم مدل Two ساخت شرکت PerkinElmer کشور آمریکا و برای تجزیه و تحلیل ریخت شناختی، سطح ویژه و توزیع اندازه منافذ جاذب از دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)^۲ ساخت شرکت Philips هلدن استفاده شد. همچنین، غلظت محلول ایوپروفن در حداکثر طول موج جذب یعنی ۲۲۰ nm توسط اسپکتروفتومتر مدل DR۵۰۰۰ ساخت شرکت Hach آمریکا خوانده شد (Nourmoradi et al. 2018).

برای آنالیز کربن فعال و کربن اصلاح شده از آنالیزهای طیفسنجی پراش انرژی پرتو ایکس (EDS)^۳ و نقشه آنالیز عنصری از مدل سیگما وی پی دستگاه FESEM ساخت شرکت زایس آلمان مجهز به دکتورهای EDS، Mapping و WDS و EBSD استفاده شد.

۳- یافته ها و بحث

۳-۱- خصوصیات جاذب

میکروگراف سطح کربن فعال تولید شده از کاه و کلش کنجد در شکل (۲-الف) نشان داده شده است. با استناد به این شکل و همچنین نتایج

که، C_e نشان دهنده غلظت تعادلی (mg/l)، q_e بیان گر ظرفیت جذب در زمان تعادل (mg/g)، k_f و n نیز به ترتیب بیان گر ثابت های فروندلیچ بر حسب ظرفیت و شدت جذب هستند (Sobhanardakani et al. 2018).

$$\ln q_e = \ln q_m + \beta \varepsilon^2 \quad (5)$$

$$\varepsilon = RT \left[1 + \frac{1}{C_e} \right] \quad (6)$$

$$E = \frac{1}{\sqrt{2\mu}} \quad (7)$$

که، E بیان گر قابلیت پولانی (انرژی آزاد جذب)، R نشان دهنده ثابت عمومی گازها و برابر با ۸/۳۱۴ J/k/mol، T بیان گر دما (K)، q_m نشان دهنده ظرفیت جذب بر حسب mg/g و β نیز بیان گر انرژی جذب (kJ²/m.l²) هستند (Bello et al. 2019).

علاوه بر آن، از دو مدل سینتیکی درجه اول (Pseudo-first Order: PFO) و شبه درجه دوم (Pseudo-second Order: PSO) (روابط ۸ و ۹) نیز برای مطالعه سینتیک واکنش جذب ایوپروفن بر روی جاذب سنتز شده استفاده شد.

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \quad (8)$$

$$\frac{t}{q_e} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_{eq}} t \quad (9)$$

که، q_e نشان دهنده ظرفیت جذب جاذب در حالت تعادل (mg/g)، q_t بیان گر مقدار ماده جذب شده در زمان t بر حسب K₁ و K₂ نیز به ترتیب نشان دهنده ثابت سرعت شبه درجه اول (1/min) و ثابت سینتیک شبه مرتبه دوم (g/mg/min) هستند (Talebzadeh et al. 2017).

۲-۳-۱- تأثیر نوع جاذب بر کارایی جذب

برای بررسی تأثیر نوع جاذب بر کارایی جذب، از انواع کربن اصلاح شده با کلرید آمونیم، کلرید روی، اسید سولفوریک، به نسبت جرمی مختلف (۱:۱ و ۲:۱) در دمای ۹۰۰ °C استفاده شد. بدین منظور، مقدار ۰/۱۰۰ g جاذب به طور جداگانه در ۱۰۰ ml محلول ایوپروفن با غلظت ۱۰۰ mg/l و pH = ۷ به یک ارلن ۲۵۰ ml منتقل شد و توسط شیکر با سرعت ۲۰۰ rpm به مدت ۲۴۰ min در دمای اتاق هم زده شد. سپس، محلول حاصل را از فیلتر ۰/۲۰ μm عبور داده و غلظت نهایی ایوپروفن با دستگاه اسپکتروفتومتر در طول

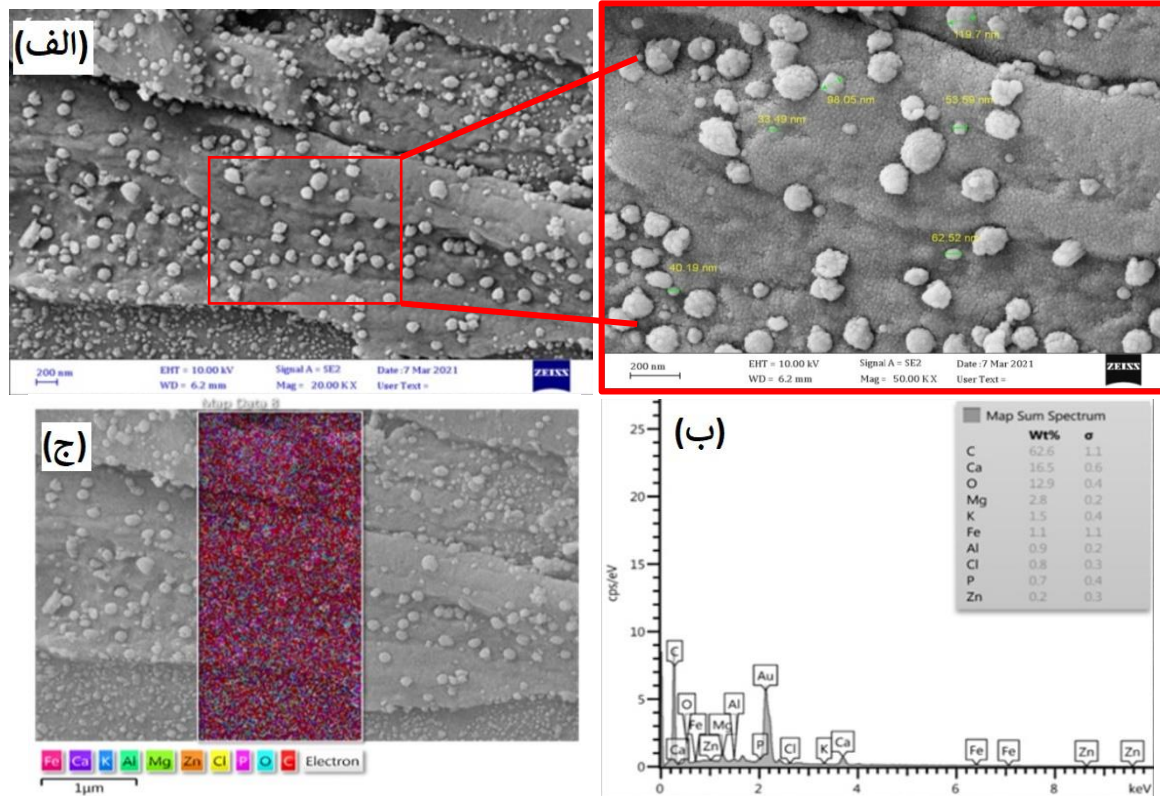
¹Fourier-Transform Infrared Spectroscopy

²Scanning Electron Microscope

³Energy Dispersive X-ray Spectroscopy

بیان‌گر غالب بودن فاز کربن فعال در نمونه است. از طرفی، وجود بیش‌تر از ۱۶٪ وزنی کلسیم و حدود ۱۳٪ وزنی اکسیژن در کنار عنصر کربن مؤید وجود مقادیر متنابهی کلسیم کربنات در ساختار کربن فعال است که در نتایج آزمون میکروسکوپی مشاهده می‌شود و همان‌طور که عنوان شد به‌صورت نانوذراتی بر روی سطح کربن فعال قرار گرفته است.

نقشه آنالیز عنصری مشخص شد که دانه‌های کلسیت یا کلسیم کربنات یعنی دانه‌هایی حاوی عناصر کلسیم و اکسیژن بر روی بستری از کربن قرار گرفته است. میانگین اندازه این دانه‌ها که در تصویر بزرگ‌نمایی شده در شکل (۲-ا) نشان داده شده است برابر با ۶۷/۶ nm است. مطابق نتایج آزمون ایدکس نیز وجود بیش‌تر از ۶۲٪ وزنی کربن در عناصر سازنده این کامپوزیت

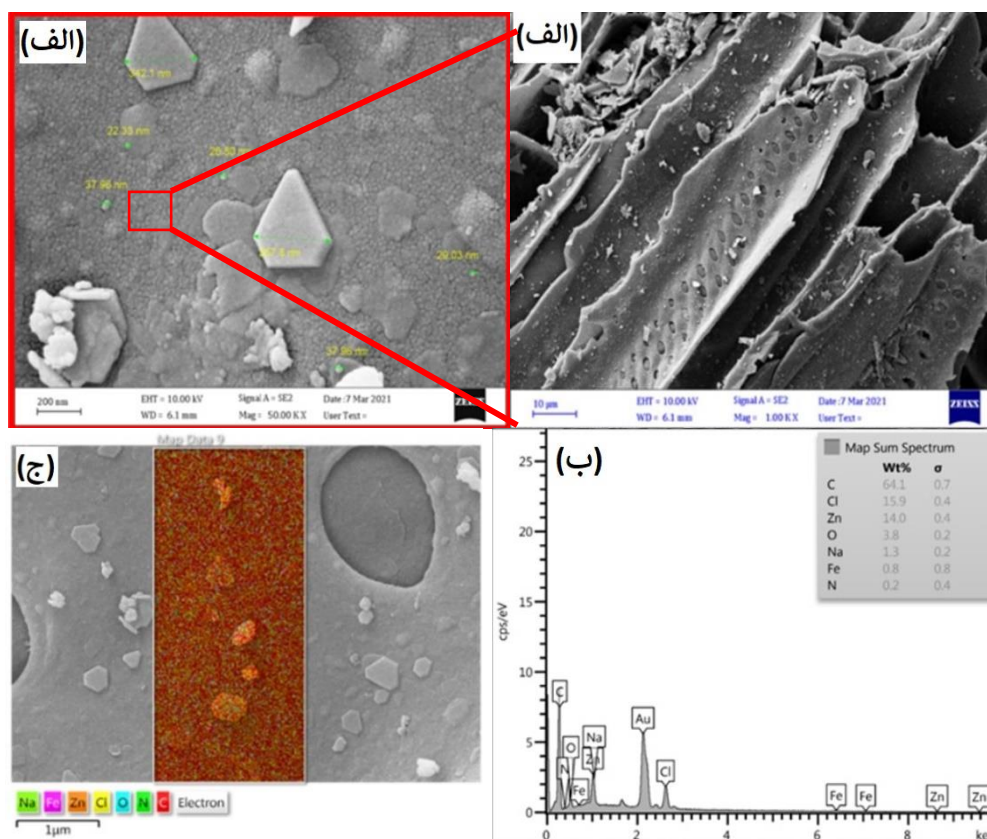


شکل ۲- الف- میکروگراف‌های حاصل از آنالیز FESEM، ب- طیف EDS، و ج- نقشه آنالیز عنصری مربوط به نمونه کربن فعال حاصل از کاه و کلش کجند

Fig. 2: a) Micrographs of FESEM, b) EDS spectrum, and c) elemental analysis map of activated carbon sample from sesame straw

تشکیل‌دهنده کربن اصلاح شده را به‌خود اختصاص داده‌اند. بنابراین، می‌توان نتیجه گرفت که ذرات چندضلعی منظم قابل مشاهده بر روی سطح، به احتمال زیاد بلورهای کریستالی کلرید روی است که به‌منظور اصلاح سطحی این ترکیب کربنی استفاده شده است. اندازه این ذرات همان‌طور که در شکل با بزرگ‌نمایی بالا نشان داده شده است حدود ۳۵۰ nm است، در حالی که، دانه‌های کربنی بستر این کامپوزیت دارای ابعاد متوسطی در حدود ۳۱ nm بوده است.

میکروگراف‌ها و نتایج آنالیز عنصری نمونه کربن اصلاح‌شده با کلرید روی نیز در شکل (۳) نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود، ذراتی چندضلعی با مورفولوژی کاملاً منظم بر روی بستری از کربن قرار گرفته است. نتایج آزمون ایدکس و نقشه آنالیز عنصری نیز بیان‌گر آن است که در کنار کربن که با بیش‌تر از ۶۴٪ وزنی عنصر غالب در این کامپوزیت است، عناصر کلر و روی با مقادیر تقریبی به‌ترتیب برابر با ۱۶ و ۱۴٪ وزنی بیش‌ترین عناصر



شکل ۳: الف- میکروگراف های FESEM، ب- طیف EDS، و ج) نقشه آنالیز عنصری مربوط به نمونه کربن اصلاح شده با روی کلرید
Fig. 3: a) FESEM micrographs, b) EDS spectrum, and c) elemental analysis map of carbon sample modified with zinc chloride

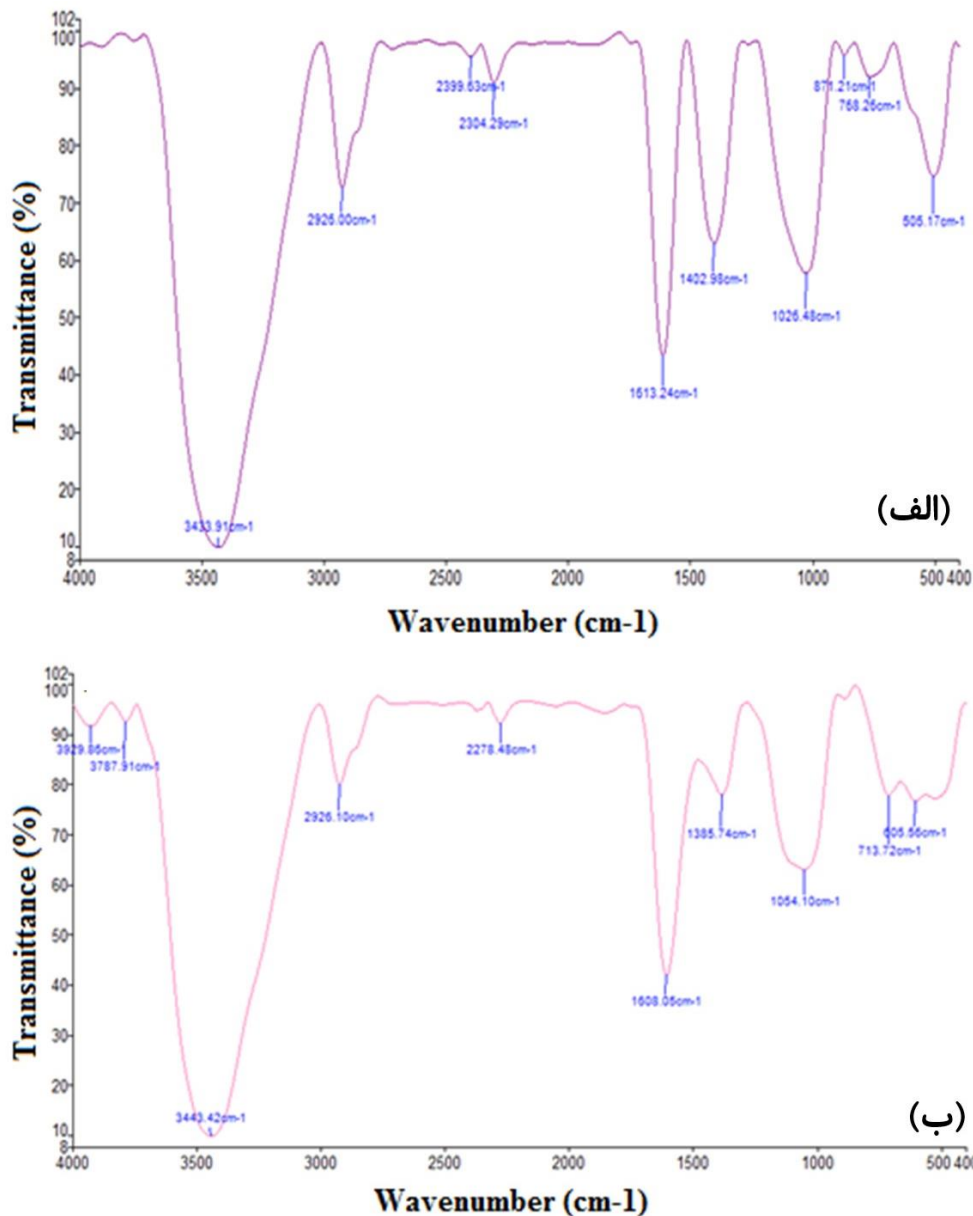
گرفته در 2304 cm^{-1} نیز مربوط به ارتعاش کششی پیوندهای O-C-O در گاز کربن دی اکسید موجود در محفظه آزمون FT-IR است (Xin et al. 2012). از طرفی، پیک واقع شده در عدد موج 505 cm^{-1} نیز مربوط به ارتعاش خمشی حلقه های آروماتیک کربنی است (Javidparvar et al. 2019b) که از بستر کربنی این کامپوزیت حاصل شده است.

در طیف مربوط به نمونه کربن اصلاح شده با کلرید روی، پیک های واقع شده در عدد موج های 3443 cm^{-1} و 1608 cm^{-1} به ترتیب مربوط به ارتعاش کششی و خمشی پیوندهای O-H در آب جذب سطحی شده (Javidparvar et al. 2020)، پیک های واقع شده در 2926 cm^{-1} و 1385 cm^{-1} به ترتیب مربوط به ارتعاش کششی و خمشی پیوندهای C-H مربوط به بستر کربنی این کامپوزیت (Jung et al. 2019; Nandiyanto et al. 2018; al. 2018)، پیک واقع در 2304 cm^{-1} مربوط به ارتعاش کششی پیوندهای موجود در گاز کربن دی اکسید موجود در محفظه آزمون (Xin et al. 2012) و پیک واقع شده در عدد موج 605 cm^{-1} نیز مربوط به ارتعاش خمشی حلقه های آروماتیک کربنی است (Javidparvar et al. 2019b) که از

در طیف مربوط به نمونه کربن فعال حاصل از کاه و کلش کنجد، پیک های قابل مشاهده در عدد موج های 768 ، 871 ، 1026 و 1402 cm^{-1} در مطالعات مشابه به عنوان پیک های مشخصه یون کربنات (CaCO_3^{2-}) در ساختار مولکولی کربنات کلسیم معرفی شده است (Shafiu Kamba et al. 2013; Linga Raju et al. 2002). پیک های قابل مشاهده در 1026 و 871 cm^{-1} به ترتیب مربوط به ارتعاش کششی متقارن (ν_1) و ارتعاش خمشی خارج از صفحه (ν_2) پیوندهای یون کربنات است (Shafiu Kamba et al. 2013). همچنین، پیک های واقع شده در 1402 و 768 cm^{-1} به ترتیب به ارتعاش کششی نامتقارن (ν_3) و ارتعاش خمشی درون صفحه ای (ν_4) یون های کربنات مربوط است (Shafiu Kamba et al. 2013). دو پیک واقع شده در 3433 و 1613 cm^{-1} نیز به ترتیب به ارتعاش کششی و خمشی پیوندهای O-H در آب جذب سطحی شده به مواد، مربوط است (Javidparvar et al. 2019a). به علاوه، پیک واقع شده در 2926 cm^{-1} مربوط به ارتعاش کششی نامتقارن پیوندهای C-H است (Shahmoradi et al. 2021) که به دلیل وجود ساختار کربنی در بستر این ماده ایجاد شده است. پیک قرار

داده است (Farhadian et al. 2021). بنابراین، نتایج آزمون FT-IR مؤید تشکیل فازهای کربنات کلسیم و کلرید روی به ترتیب در نمونه کربن فعال حاصل از کاه و کلش کنگد و نمونه کربن اصلاح شده با کلرید روی است.

بستر کربنی این کامپوزیت حاصل شده است. همچنین، در این طیف ارتعاش کششی پیوند Zn-Cl در ساختار کلرید روی در عدد موج 713 cm^{-1} (Deubner et al. 2020) و ارتعاش کششی پیوندهای C-O مربوط به ساختار کربنی اکسید شده نیز در عدد موج 1054 cm^{-1} پیک جذبی نشان

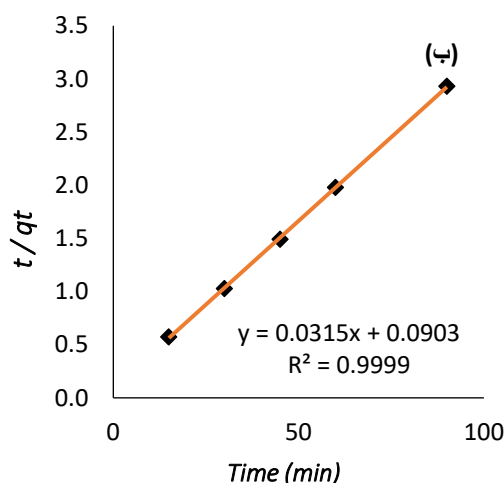
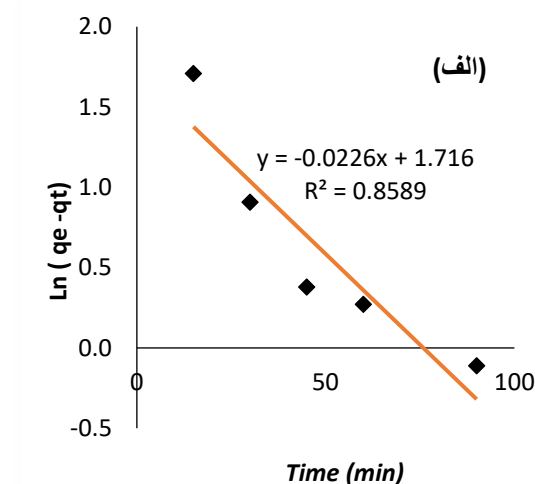


شکل ۴- طیف‌های آنالیز FT-IR مربوط به: (الف) نمونه کربن فعال حاصل از کاه و کلش کنگد و (ب) نمونه کربن اصلاح شده با کلرید روی
Fig. 4 FT-IR spectra of: a) activated carbon sample from sesame straw and b) carbon sample modified with zinc chloride

آن مقدار جذب ایوپروپن توسط جاذب در زمان ۲۰۰ min -۲۰ با 0.100 g/l از جاذب در $\text{pH} = 7$ و دمای 25°C مورد مطالعه قرار گرفت، نشان داد که جذب ایوپروپن به دلیل فضاهای خالی در دسترس سطح جاذب در ۴۰ min -۴۰ ۳۰ آغازین به سرعت افزایش یافت و با گذشت زمان، میزان

۲-۳- تأثیر زمان تماس بر ظرفیت جذب
زمان تماس در فرآیند جذب و همچنین میزان زمانی که برای تماس بین مولکول‌های ایوپروپن و کربن فعال ایجاد می‌شود، از اهمیت به‌سزایی برخوردار است (Mashayekh-Salehi and Moussavi 2016). یافته‌های پژوهش که در

ایبوپروفن با استفاده از پوست نارگیل از مدل سینتیک شبه درجه دو مطابقت کرده است (Bello et al. 2020).



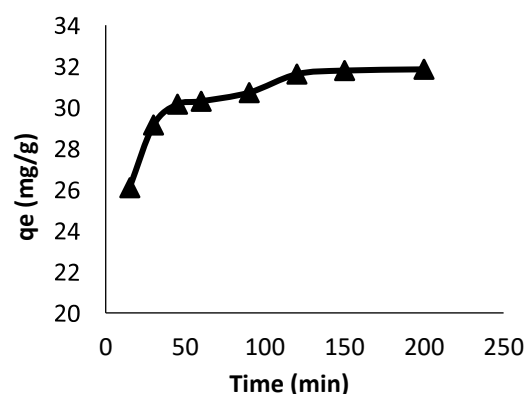
شکل ۶- نمودار: الف) پارامترهای سینتیک درجه اول و ب) شبه درجه دوم

Fig. 6 Kinetic parameters of: a) PFO and b) PSO

۴-۳- تأثیر pH محلول بر کارایی جذب

نتایج بررسی تأثیر pH بر جذب ایبوپروفن توسط کربن فعال در شکل (۷) آورده شده است. همان طور که نتایج نشان می دهد، با کاهش pH، جذب ایبوپروفن افزایش یافته است. بدین صورت که، در $pH = 3$ بیشینه ظرفیت جذب برابر با $35/5 \text{ mg/g}$ حاصل شد و با افزایش pH، آهنگ جذب کاهش یافت. نتیجه این رفتار را می توان با ماهیت اسیدی محلول حاوی ایبوپروفن و بارهای روی سطح جاذب که با یونیزاسیون جاذب همراه بوده است، مرتبط دانست (Iovino et al. 2015). در پژوهشی که به منظور حذف استامینوفن با استفاده از تفاله برگ چای انجام یافت، گزارش شد که

جذب به صورت تدریجی افزایش یافت. به طوری که، از $120 - 200 \text{ min}$ مقدار جذب تقریباً ثابت ماند و بیشینه زمان تعادل در 120 min با ظرفیت جذب $31/6 \text{ mg/g}$ برای ماده جذب شونده در نظر گرفته شد (شکل ۵) که این نتایج با دستاورد پژوهش های انجام شده توسط موندال، فرولیچ و صداقت مطابقت دارد (Mondal et al. 2016; Frohlich et al. 2019; Sedaghat et al. 2020).



شکل ۵- نمودار تأثیر زمان تماس بر کارایی حذف ایبوپروفن توسط جاذب

Fig. 5 Effect of contact time on the removal of IBU by AC

جدول ۲- پارامترهای سینتیک جنبشی جذب ایبوپروفن توسط جاذب

Table 2 Kinetic parameters for adsorption of ibuprofen onto synthesized adsorbent

Kinetic Model	Parameters	0.100 CEC
PFO	K	0.023
	qe	5.56
	R ²	0.859
PSO	K	0.001
	qe	31.8
	R ²	0.999

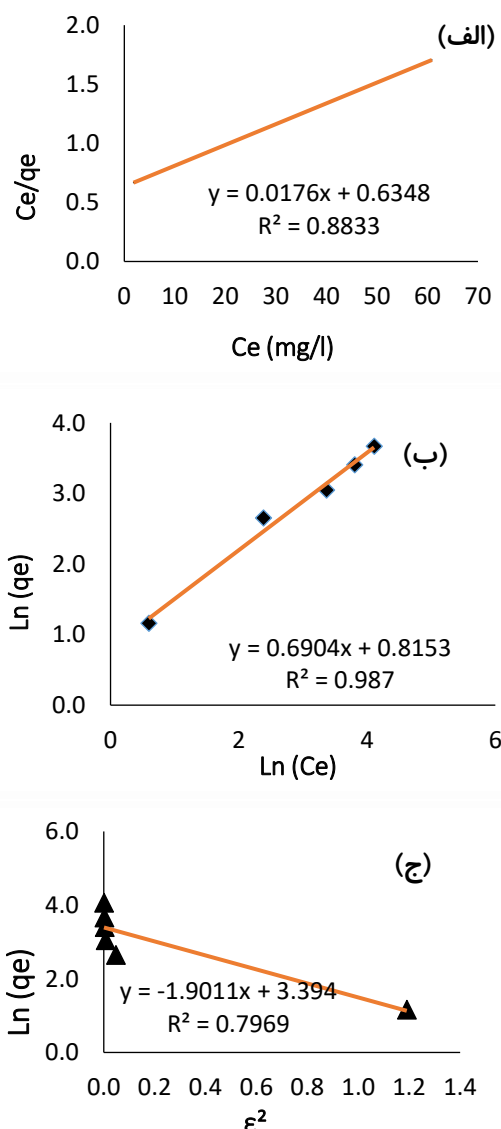
۳-۳- سینتیک جذب

پارامترهای سینتیک برای جذب ایبوپروفن بر روی جاذب در جدول (۲) و شکل (۶) نشان داده شده است. با استناد به نتایج، می توان اذعان داشت که مدل سینتیک شبه درجه دوم، فرآیند جذب به وسیله جاذب را به دلیل برخورداری از مقدار رگرسیون بزرگ تر، بهتر از مدل درجه اول توصیف کرده است. بنابراین، جذب سطحی از نوع شیمیایی با تبادل الکترون بین جاذب و ترکیب جذب شونده است (Ghemit et al. 2017). در پژوهشی دیگر که با هدف حذف ایبوپروفن با استفاده از پوست نارگیل انجام شد، گزارش شد که حذف

انجام شد، گزارش گردید که جذب یون‌های سرب با کاهش غلظت اولیه فلز کاهش یافته است (Cheraghi et al. 2015).

۳-۶- نتایج مطالعه ایزوترم‌های جذب

به‌منظور محاسبه ظرفیت جذب کُنجد از سه مدل لانگمویر، فروندلیچ و دوبینین-رادوشکویچ استفاده شد. نتایج مطالعه ایزوترم‌های جذب (شکل ۹) نشان داد که استفاده از کربن اصلاح شده منجر به افزایش نرخ حذف ایبوپروفن شده است. تجزیه تحلیل، ثابت‌های تخمینی معادلات ایزوترم‌های لانگمویر، فروندلیچ و دوبینین-رادوشکویچ و ضرایب همبستگی در جدول (۳) نشان داده شده است.

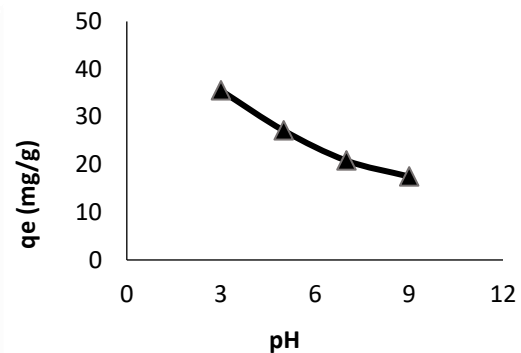


شکل ۹- نمودار ایزوترم جذب ایبوپروفن؛ الف) مدل لانگمویر، ب)

فروندلیچ و ج) دوبینین-رادوشکویچ

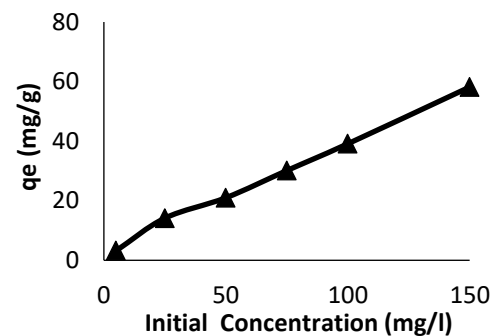
Fig. 9 Adsorption study of IBU onto synthesized adsorbent; a) Langmuir, b) Freundlich and c) Dubinin-Radushkevich

حداکثر کارایی جذب در $\text{pH} = 3$ حاصل شده است (Wong et al. 2018).



شکل ۷- نمودار تأثیر pH محلول بر کارایی حذف ایبوپروفن توسط جاذب

Fig. 7 Effect of solution pH on the adsorption of IBU by synthesized adsorbent



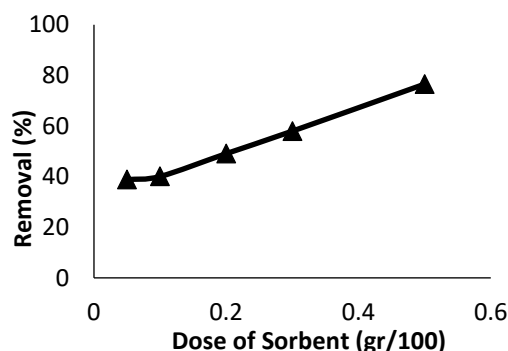
شکل ۸- نمودار تأثیر غلظت محلول بر کارایی حذف ایبوپروفن توسط جاذب

Fig. 8 Effect of initial concentration on the adsorption of IBU by synthesized adsorbent

۳-۵- تأثیر غلظت ایبوپروفن بر کارایی جذب

نتایج بررسی تأثیر غلظت‌های مختلف ایبوپروفن (۵، ۲۵، ۵۰، ۷۵، ۱۰۰، ۱۵۰ mg/l) بر کارایی جذب در حضور ۰/۱۰۰ g جاذب در ۱۰۰ ml از محلول در زمان و pH بهینه در شکل ۸ نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، با افزایش غلظت ماده جذب‌شونده در محلول، ظرفیت جذب افزایش یافته است. به‌طوری‌که، با افزایش غلظت دارو در محلول از ۵ تا ۱۵۰ mg، مقدار ایبوپروفن جذب‌شده توسط جاذب از ۳/۲۰ تا ۵۸/۲ mg/g افزایش یافت که دلیل آن را می‌توان با افزایش نیروهای کششی-واندروالسی که به مقاومت انتقال جرم از ایبوپروفن به جاذب غلبه می‌کند، مرتبط دانست (Normoradi et al. 2016; 2018). در تأیید نتایج حاصل، در پژوهشی که به‌منظور حذف سرب دو ظرفیتی از محلول‌های آبی با استفاده از زائدات برگ چای

تصفیه خانه فاضلاب با استفاده از کربن فعال اقدام کردند، مطابقت دارد.



شکل ۱۰- نمودار تأثیر دوز جاذب بر کارایی حذف ایبوپروفن توسط جاذب

Fig. 10 Effect of adsorbent dose on the adsorption of IBU by synthesized adsorbent

۴- نتیجه گیری

۱- مقادیر بهینه پارامترهای زمان تماس، pH، غلظت آلاینده و دوز جاذب برای حذف داروی ایبوپروفن به وسیله جاذب به ترتیب برابر با ۱۲۰ min، سه، ۵۰ mg/l و ۰/۱۰۰ g/l در دمای ۲۵ °C بوده است.

۲- فرآیند جذب سطحی از مدل شبه درجه دوم تبعیت کرده است.

۳- فرآیند حذف داروی ایبوپروفن با ضریب همبستگی برابر با ۰/۹۸۰ از مدل فروندلیچ تبعیت کرده است و از این رو، می توان اذعان داشت که سطح جاذب اصلاح شده یکنواخت نبوده و از ماهیت جذب متفاوتی برخوردار بوده است.

از آن جا که نتایج این مطالعه نشان دهنده کارایی قابل قبول کاه و کلش کجند به عنوان یک جاذب کارآمد و کم هزینه برای حذف باقی مانده داروی ایبوپروفن از نمونه ها بود، لذا، استفاده از بقایای کشاورزی برای حذف باقی مانده ترکیبات دارویی از محیط پیشنهاد می شود.

سپاسگزاری

این مقاله برگرفته از رساله دکتری تخصصی محیط زیست مصوب دانشگاه آزاد اسلامی واحد همدان با کد ۱۷۱۴۸۰۰۶۹۰۷۶۴۲۱۱۶۲۲۹۱۸۷۵ است. بدین وسیله نویسندگان از معاونت محترم پژوهش و فن آوری دانشگاه آزاد اسلامی واحد همدان و همچنین کارشناسان آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب دانشکده بهداشت دانشگاه علوم پزشکی

جدول ۳- پارامترهای مدل های ایزوترم جذب سطحی ایبوپروفن
Table 3 Obtained parameters for adsorption of IBU onto synthesized adsorbent

Isotherm Model	Parameters	298 K
L	qm (mg/g)	55.6
	b(L/mg)	0.028
	R ²	0.880
F	1/n	1.23
	n	0.815
	Kf (mg/g) (L/mg) ^{1/n}	2.26
	R ²	0.980
D-R	qm (mg/g)	29.8
	E(kj/mol)	0.513
	R ²	0.800

* دوز جاذب = ۰/۱ g

نتایج این مطالعه نشان داد که جذب ایبوپروفن به ترتیب به- وسیله ایزوترم های فروندلیچ ($R^2 = 0.980$)، لانگمویر ($R^2 = 0.880$) و دوبینین- رادوشکویچ ($R^2 = 0.800$) به بهترین شکل ممکن توصیف شده اند. بنابراین، می توان اذعان داشت که سطح جاذب اصلاح شده یکنواخت نبوده و ماهیت جذب متفاوتی داشته است (Gulnaz et al. 2011). یافته های این پژوهش با یافته های مطالعه هایی که با هدف حذف داروهای ایبوپروفن و استامینوفن با استفاده از کربن فعال حاصل از میوه بلوط انجام شد (Normoradi et al. 2018) و همچنین با نتایج پژوهشی که با هدف حذف استامینوفن توسط کربن فعال سنتز شده از تفاله برگ چای انجام یافت (Wong et al. 2018) مطابقت دارد.

۳-۷- اثر دوز جاذب بر کارایی جذب ایبوپروفن

نتایج بررسی اثر دوز جاذب بر کارایی جذب ایبوپروفن در شکل (۱۰) نشان داده شده است. بر این اساس، مشخص شد که با افزایش دوز جاذب، نرخ جذب ایبوپروفن افزایش یافته است که این موضوع ممکن است با تعداد مول های فعال و افزایش مکان های جذب در سطح نسبت به مقدار ثابت مولکول های حل شونده (برای به دام انداختن ایبوپروفن) در هر مرحله مرتبط باشد (Ghemit et al. 2017; Mouni et al. 2018). نتایج این پژوهش با دستاورد مطالعه (2019) Ghemit et al. که نسبت به حذف داروهای دیکلوفناک و ایبوپروفن از محلول های آبی به وسیله ارگانوبنتونیت ها و از طرفی، نتایج مطالعه (2021) Streit et al. که نسبت به حذف داروهای ایبوپروفن، کتوپروفن و پاراستامول از پساب

تضاد منافع نویسندگان

نویسندگان این مقاله اعلام می‌دارند که، هیچ‌گونه تضاد منافی در رابطه با نویسندگی و یا انتشار این مقاله ندارند.

ایلام برای فراهم کردن امکانات اجرای مطالعه، تشکر و قدر-دانی می‌کنند.

دسترسی به داده‌ها

داده‌های استفاده‌شده و یا تولیدشده در این پژوهش در متن مقاله ارائه شده است.

References

- Ahmad, M. A., Afandi, N. S. and Bello, O. S. (2017). Optimization of process variables by response surface methodology for malachite green dye removal using lime peel activated carbon. *Appl. Water Sci.*, 7, 717–727. DOI. 10.1007/s13201-015-0284-0.
- Akar, S., Lorestani, B., Sobhanardakani, S., Cheraghi, M. and Moradi, O. (2019). Surveying the efficiency of *Plantanus orientalis* bark as biosorbent for Ni and Cr(VI) removal from plating wastewater as a real sample. *Environ. Monit. Assess.*, 191(6), 373. DOI. 10.1007/s10661-019-7479-z.
- Baccar, R., Sarrà, M., Bouzid, J., Feki, M. and Blánquez, P. (2012). Removal of pharmaceutical compounds by activated carbon prepared from agricultural by-product. *Chem. Eng. J.*, 211, 310–317. DOI. 10.1016/j.cej.2012.09.099.
- Bello, O. S., Alao, O. C., Alagbada, T. C. and Olattunde, A. M. (2019). Biosorption of ibuprofen using functionalized bean husks. *Sustain. Chem. Pharm.*, 13, 100–151. DOI. 10.1016/j.scp.2019.100151.
- Bello, O. S., Moshood, M. A., Ewetumo, B. A. and Afolabi, I. C. (2020). Ibuprofen removal using coconut husk activated Biomass. *Chem. Data Collect.*, 29, 100533. DOI. 10.1016/j.cdc.2020.100533.
- Cheraghi, M., Lorestani, B., Zandipak, R. and Sobhanardakani, S. (2022). GO@Fe₃O₄@ZnO@CS nanocomposite as a novel adsorbent for removal of doxorubicin hydrochloride from aqueous solutions. *Tox. Rev.*, 41(1): 82-91. DOI. 10.1080/15569543.2020.1839910.
- Cheraghi, M., Sobhanardakani, S., Zandipak, R., Lorestani, B. and Merrikhpour, H. (2015). Removal of Pb(II) from aqueous solutions using waste tea leaves. *Iran. J. Toxicol.*, 9(28), 1247–1253.
- Ciríaco, L., Anjo, C., Correia, J., Pacheco, M. and Lopes, A. (2009). Electrochemical degradation of ibuprofen on Ti/Pt/PbO₂ and Si/BDD electrodes. *Electrochim. Acta*, 54, 1464–1472. DOI. 10.1016/j.electacta.2008.09.022.
- De Luna, M. D. G., Veciana, M. L., Su, C. C. and Lu, M. C. (2012). Acetaminophen degradation by electro-Fenton and photo electro-Fenton using a double cathode electrochemical cell. *J. Hazard. Mater.*, 217, 200–207. DOI. 10.1016/j.jhazmat.2012.03.018.
- Deubner, H. L., Bandemehr, J., Karttunen, A. J. and Kraus, F. (2020). A brief visit to the BeCl₂/ZnCl₂ system and the prediction of a new polymorph of ZnCl₂. *Zeitschrift Für Naturforsch. B*, 75, 491–496. DOI. 10.1515/znB-2020-0023.
- Dotto, G. L. and McKay, G. (2020). Current scenario and challenges in adsorption for water treatment. *J. Environ.Chem.Eng.*, 8, 103988. DOI. 10.1016/j.jece.2020.103988.
- Dubey, S. P., Dwivedi, A. D., Sillanpää, M. and Gopal, K. (2010). *Artemisia vulgaris* derived mesoporous honey comb shaped activated carbon for ibuprofen adsorption. *Chem. Eng. J.*, 165(2), 537–544. DOI. 10.1016/j.cej.2010.09.068.
- Farhadian, A., Assar Kashani, S., Rahimi, A., Oguzie, E. E., Javidparvar, A. A., Nwanonyi, S. C., Yousefzadeh, S. and Nabid, M. R. (2021). Modified hydroxyethyl cellulose as a highly efficient eco-friendly inhibitor for suppression of mild steel corrosion in a 15% HCl solution at elevated temperatures. *J. Mol. Liq.*, 38, 116607. DOI. 10.1016/j.molliq.2021.116607.
- Fröhlich, A. C., Foletto, E. L. and Dotto, G. L. (2019). Preparation and characterization of NiFe₂O₄/activated carbon composite as potential magnetic adsorbent for removal of ibuprofen and ketoprofen pharmaceuticals from aqueous solutions. *J. Clean. Prod.*, 229,



- 828–837. DOI. 10.1016/j.jclepro.2019.05.037.
- Galhetas, M., Mestre, A. S., Pinto, M. L., Gulyurtlu, I., Lopes, H. and Carvalho, A. P. (2014). Carbon-based materials prepared from pine gasification residues for acetaminophen ad-sorption. *Chem. Eng. J.*, 240, 344–351. DOI. 10.1016/j.cej.2013.11.067.
- Ghemit, R., Boutahala, M. and Kahoul, A. (2017). Removal of diclofenac from water with calcined ZnAlFe-CO₃ layered double hydroxides: effect of contact time, concentration, pH and temperature. *Desalin. Water Treat.*, 83, 75–85. DOI. 10.5004/dwt.2017.21031.
- Ghemit, R., Makhloufi, A., Djebri, N., Flilissa, A., Zerroual, L. and Boutahala, M. (2019). Adsorptive removal of diclofenac and ibuprofen from aqueous solution by organobentonites: Study in single and binary systems. *Groundwater Sustain. Dev.*, 8, 520–529. DOI. 10.1016/j.gsd.2019.02.004.
- Ghoochian, M., Ahmad Panahi, H., Sobhanardakani, S., Taghavi, L. and Hassani, A. H. (2019). Synthesis and application of Fe₃O₄/SiO₂/thermosensitive/PAMAM-CS nanoparticles as a novel adsorbent for removal of tamoxifen from water samples. *Microchem. J.*, 145, 1231–1240. DOI. 10.1016/j.microc.2018.12.004.
- Guedidi, H., Lakehal, I., Reinert, L., Leveque, J-M., Bellakha, N. and Duclaux, N. (2017). Removal of ionic liquids and ibuprofen by adsorption on a microporous activated carbon: kinetics, isotherms, and poresites. *Arab. J. Chem.*, 13(1), 258270. DOI. 10.1016/j.arabjc.2017.04.006.
- Gulnaz, O., Sahnurova, A. and Kama, S. (2011). Removal of reactive red 198 from aqueous solution by *Potamogeton crispus*. *Chem. Eng. J.*, 174(2-3), 579–585. DOI. 10.1016/j.cej.2011.09.061.
- Hernando, M. D., Mezcuca, M., Fernández-Alba, A. R. and Barceló, D. (2006). Environmental risk assessment of pharmaceutical residues in wastewater effluents, surface waters and sediments. *Talanta*, 69(2), 334–342. DOI. 10.1016/j.talanta.2005.09.037.
- Ho, Y. S. and McKay, G. (1999). Pseudo – second order model for sorption processes. *Proc. Biochem.*, 34(1999), 451–465. DOI. 10.1016/S0032-9592(98)00112-5.
- Hu, X., Xue, Y., Liu, L., Zeng, Y. and Long, L. (2018). Preparation and characterization of Na₂S-modified biochar for nickel removal. *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 25, 9887–9895. DOI. 10.1007/s11356-018-1298-6.
- Iovino, P., Canzano, S., Capasso, S., Erto, A. and Musmarra, D. (2015). A modeling analysis for the assessment of ibuprofen adsorption mechanism onto activated carbons. *Chem. Eng. J.*, 227, 360–367. DOI. 10.1016/j.cej.2015.04.097.
- Javidparvar, A. A., Naderi, R., Ramezanzadeh, B. and Bahlakeh, G. (2019a). Graphene oxide as a pH-sensitive carrier for targeted delivery of eco-friendly corrosion inhibitors in chloride solution: Experimental and theoretical investigations. *J. Ind. Eng. Chem.*, 72, 196–213. DOI. 10.1016/j.jiec.2018.12.019.
- Javidparvar, A. A., Naderi, R. and Ramezanzadeh, B. (2019b). Designing a potent anti-corrosion system based on graphene oxide nanosheets non-covalently modified with cerium/benzimidazole for selective delivery of corrosion inhibitors on steel in NaCl media. *J. Mol. Liq.*, 284, 415–430. DOI. 10.1016/j.molliq.2019.04.028.
- Javidparvar, A. A., Naderi, R. and Ramezanzadeh, B. (2020). L-cysteine reduced/functionalized graphene oxide application as a smart/control release nanocarrier of sustainable cerium ions for epoxy coating anti-corrosion properties improvement. *J. Hazard. Mater.*, 389, 122135. DOI. 10.1016/j.jhazmat.2020.122135.
- Jung, M. R., Horgen, F. D., Orski, S. V., Rodriguez, C. V., Beers, K. L., Balazs, G. H., Jones, T. T., Work, T. M., Brignac, K. C., Royer, S. J., Hyrenbach, K. D., Jensen, B. A. and Lynch, J. M. (2018). Validation of ATR FT-IR to identify polymers of plastic marine debris, including those ingested by marine organisms. *Mar. Pollut. Bull.*, 127, 704–716. DOI. 10.1016/j.marpolbul.2017.12.061.
- Linga Raju, C., Narasimhulu, K., Gopal, N., Rao, J. and Reddy, B. C. (2002). Electron paramagnetic resonance, optical and infrared spectral studies on the marine mussel *Arca burnesi* shells. *J. Mol. Struct.*, 608, 201–211. DOI. 10.1016/S0022-2860(01)00952-8.



- Lu, H., Zhu, Z., Zhang, H., Zhu, J., Qiu, Y., Zhu, L. and Küppers, S. (2016). Fenton-like catalysis and oxidation/adsorption performances of acetaminophen and arsenic pollutants in water on a multi metal Cu–Zn–Fe-LDH. *ACS Appl. Mater. Interf.*, 8, 25343–25352. DOI. 10.1021/acsami.6b08933.
- Mashayekh-Salehi, A. and Moussavi, G. (2016). Removal of acetaminophen from the contaminated water using adsorption onto carbon activated with NH_4Cl . *Desalin. Water Treat.*, 57(27), 12861–12873. DOI. 10.1080/19443994.2015.1051588.
- Méndez-Arriaga F., Torres-Palma R. A., Pétrier, C., Esplugas, S., Gimenez, J. and Pulgarin, C. (2008). Ultrasonic treatment of water contaminated with ibuprofen. *Water Res.*, 42, 4243–4248. DOI. 10.1016/j.watres.2008.05.033.
- Mondal, S., Bobde, K., Aikat, K. and Halder, G. (2016). Biosorptive uptake of ibuprofen by steam activated biochar derived from mung bean husk: equilibrium, kinetics, thermodynamics, modeling and ecotoxicological studies. *J. Environ. Manage.*, 182, 581–594. DOI. 10.1016/j.jenvman.2016.08.018.
- Mouni, L., Belkhir, L. and Bollinger, J. C. Bouzaza, Assadi A., Tirri A., Dahmoune F., Madani K. and Remini H. (2018). Removal of methylene blue from aqueous solutions by adsorption on Kaolin: kinetic and equilibrium studies. *Appl. Clay Sci.*, 153, 38–45. DOI. 10.1016/j.clay.2017.11.034.
- Nandiyanto, A. B. D., Oktiani, R. and Ragadhita, R. (2019). How to read and interpret ftir spectroscopy of organic material. *Indones. J. Sci. Technol.*, 4, 97–118. DOI. 10.17509/ijost.v4i1.15806.
- Njoku, V., Islam, M. A., Asif, M. and Hameed, B. (2014). Utilization of sky fruit husk agricultural waste to produce high quality activated carbon for the herbicide bentazon adsorption. *Chem. Eng. J.*, 251, 183–191. DOI. 10.1016/j.cej.2014.04.015.
- Nourmoradi, H., Avazpour, M., Ghasemian, N., Heidari, M., Moradnejadi, F., Khodarahmi, K. and Mohammadi Moghadam, F. (2016). Surfactant modified montmorillonite as a low cost adsorbent for 4-chlorophenol: equilibrium, kinetic and thermodynamic study. *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.*, 59, 244–251. DOI. 10.1016/j.jtice.2015.07.030.
- Nourmoradi, H., Farokhi, K., Jafari, A. and Kamarehie, B. (2018). Removal of acetaminophen and ibuprofen from aqueous by activated carbon derived *Quercus brantii* (Oak) acorn as a low – cost biosorbent. *J. Environ. Chem. Eng.*, 6, 6807–6815. DOI. 10.1016/j.jece.2018.10.047.
- Omidi, A. H., Cheraghi, M., Lorestani, B., Sobhanardakani, S. and Jafari A. (2019). Biochar obtained from cinnamon and cannabis as effective adsorbents for removal of lead ions from water. *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 26(27), 27905–27914. DOI. 10.1007/s11356-019-05997-z.
- Quesada-Peñate, I., Julcour-Lebigue, C., Jáuregui-Haza, U. J., Wilhelm, A. M. and Delmas, H. (2009). Comparative adsorption of levodopa from aqueous solution on different activated carbons. *Chem. Eng. J.*, 152, 183–188. DOI. 10.1016/j.cej.2009.04.039.
- Santaefemia, S., Torres, E. and Abalde, J. (2018). Biosorption of ibuprofen from aqueous solution using living and dead biomass of the microalga *Phaeodactylum tricornutum*. *J. Appl. Psychol.*, 30, 471–482. DOI. 10.1007/s10811-017-1273-5.
- Sedaghat, S., Samieifar, P. and Attar, M. (2020). Comparing the ability of modified Nano clays with multiwall carbon nanotubes in adsorption of ibuprofen from aqueous solutions in the presence of UV light. *J. Appl. Res. Chem.*, 13(4), 53–61.
- Shafiu Kamba, A., Ismail, M., Tengku Ibrahim, T. A. and Zakaria, Z. A. B. (2013). Synthesis and characterisation of calcium carbonate aragonite nanocrystals from cockle shell powder (*Anadara granosa*). *J. Nanomater.*, 2013, 398357. DOI. 10.1155/2013/398357.
- Shahmoradi, A. R., Ranjbarghanei, M., Javidparvar, A. A., Guo, L., Berdimurodov, E. and Ramezanzadeh, B. (2021). Theoretical and surface/electrochemical investigations of walnut fruit green husk extract as effective inhibitor for mild-steel corrosion in 1M HCl electrolyte. *J. Mol. Liq.*, 338, 116550. DOI. 10.1016/j.molliq.2021.116550.
- Pajoum Shariati, F., Mehrnia, M. R., Salmasi, B. M., Heran, M., Wisniewski, C. and



- Sarrafzadeh, M. H. (2010). Membrane bioreactor for treatment of pharmaceutical waste-water containing acetaminophen. *Desal.*, 250, 798–800. DOI. 10.1016/j.desal.2008.11.044.
- Sharma, S. and Bhattacharya, A. (2017). Drinking water contamination and treatment techniques. *Appl. Water Sci.* 7. 1043-1067. DOI. 10.1007/s13201-016-0455-7.
- Singh, K. K., Talat, M. and Hasan, S. H. (2006). Removal of lead from aqueous solutions by agricultural waste maize bran. *Biores. Technol.*, 97(16), 2124–2130. DOI. 10.1016/j.biortech.2005.09.016.
- Sobhanardakani, S., Cheraghi, M., Jafari, A. and Zandipak, R. (2020). PECVD synthesis of ZnO/Si thin film as a novel adsorbent for removal of azithromycin from water samples. *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, DOI. 10.1080/03067319.2020.1793973.
- Sobhanardakani, S., Jafari, A., Zandipak, R. and Meidanchi, A. (2018). Removal of heavy metal (Hg(II) and Cr(VI)) ions from aqueous solutions using $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ thin films as a novel adsorbent. *Proc. Saf. Environ. Prot.*, 120, 348–357. DOI. 10.1016/j.psep.2018.10.002.
- Sobhanardakani, S., Parvizmosaed, H. and Olyaie, E. (2013). Heavy metals removal from waste waters using organic solid waste-rice husk. *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 20(8): 5265–5271. DOI. 10.1007/s11356-013-1516-1.
- Streit, A. F. M., Collazzo, G. C., Druzian, S. P. Verdi, R.S., Foletto, E. L., Oliveira, L. F. S. and Dotto, G. L. (2021). Adsorption of ibuprofen, ketoprofen, and paracetamol onto activated carbon prepared from effluent treatment plant sludge of the beverage industry. *Chemosphere*, 262, 128322. DOI. 10.1016/j.chemosphere.2020.128322.
- Talebzadeh, F., Sobhanardakani, S. and Zandipak, R. (2017). Effective adsorption of As(V) and V(V) ions from water samples using 2,4-dinitrophenylhydrazine functionalized sodium dodecyl sulfate-coated magnetite nanoparticles. *Sep. Sci. Technol.*, 52(4), 622–633. DOI. 10.1080/01496395.2016.1262873.
- Talebzadeh, F., Zandipak, R. and Sobhanardakani, S. (2016). CeO_2 nanoparticles supported on CuFe_2O_4 nanofibers as novel adsorbent for removal of Pb(II), Ni(II) and V(V) ions from petrochemical wastewater. *Desalin. Water Treat.*, 57(58), 28363–28377. DOI. 10.1080/19443994.2016.1188733.
- Üner, O., Geçgel, Ü., Kolancılar, H. and Bayrak, Y. (2017). Adsorptive removal of Rhodamine with activated carbon obtained from Okra wastes. *Chem. Eng. Commun.*, 204, 772–783. DOI. 10.1080/00986445.2017.1319361.
- Wong, S., Lim, Y., Ngadi, N., Mat, R., Hassan, O., Inuwa, I. M., Mohamed, N. B. and Hor Low, J. (2018). Removal of acetaminophen by activated carbon synthesized from spent tea leaves: equilibrium, kinetics and thermodynamics studies. *Powder Technol.*, 338, 878–886. DOI. 10.1016/j.powtec.2018.07.075.
- Xin, M., Liu, D., Yu, N., Qi, X. and Li, H. (2012). Luminescence properties of ZnS:Cu, Tm semiconductor nanocrystals synthesized by a hydrothermal process. *Adv. Mater. Res.*, 415–417, 499–503. DOI. 10.4028/www.scientific.net/AMR.415-417.499.
- Zabihi, M., Ahmadpour, A. and Haghighi Asl, A. (2009). Removal of mercury from water by carbonaceous sorbents derived from walnut shell. *J. Hazard. Mater.*, 167(1–3), 230–236. DOI. 10.1016/j.jhazmat.2008.12.108.
- Zandipak, R., Sobhanardakani, S. and Shirzadi, A. (2020). Synthesis and application of nanocomposite $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2/\text{CTAB-SiO}_2$ as a novel adsorbent for removal of cyclophosphamide from water samples. *Sep. Sci. Technol.*, 55(3), 456–470. DOI. 10.1080/01496395.2019.1566262.

How to cite this paper:

Sohrabian, B., Sobhanardakani, S., Lorestani, B., Cheraghi, M. and Nourmoradi, H. (2022). Equilibrium and kinetic study of removal of ibuprofen from aqueous solutions using modified carbon sesame straw. *Environ. Water Eng.*, 8(4), 778–795. DOI: 10.22034/JEWE.2022.305466.1631