

ESTUDO DA ADSORÇÃO DE ANTIBIÓTICOS EM MEIO AQUOSO UTILIZANDO DIFERENTES ADSORVENTES

N. C. Silva^{*1}, N. L. Dias Filho².

1- UFT- Universidade Federal do Tocantins. Rua Badejós, Lote 7, Chácara 69/72, Zona Rural. Cx.postal 66. CEP: 77402-970.

2- UNESP, Universidade Estadual Paulista "Júlio Mesquita Filho", Departamento de Física e Química.

[*nilaquimica@gmail.com](mailto:nilaquimica@gmail.com)

RESUMO

O presente trabalho trata da adsorção via batelada dos antibióticos Ampicilina, Amoxicilina, cefalexina e Ciprofloxacina em bagaço de cana-de-açúcar, argila funcionalizada com N-dodecil-2-pirrolidona e oligômero poliédrico de silsesquioxano organomodificado com tiouréia. Os adsorventes foram caracterizados por FTIR, pH de ponto de carga zero e MEV. O equilíbrio da adsorção foi expresso por meio dos modelos de isotermas de adsorção de Langmuir, Freundlich, Temkin e D-R. A isoterma Freundlich foi a que melhor representou os dados experimentais. A cinética de adsorção foi discutida utilizando os modelos cinéticos de Pseudo- primeira e segunda ordem, Elovich, difusão intrapartícula e difusão em filme. O modelo cinético de Pseudo-segunda ordem pode descrever melhor a adsorção dos antibióticos nos adsorventes avaliados. Algumas variáveis associadas ao processo de adsorção, como a temperatura e pH, também foram avaliadas.

Palavras-chave: Adsorção, Adsorventes, Isotermas, Antibióticos.

1 INTRODUÇÃO

O aumento da utilização de produtos farmacêuticos, e a sua liberação contínua no meio ambiente, associado à falta de tecnologias de tratamento de esgoto eficientes, faz sua mitigação um desafio para os pesquisadores. Além disso, a presença de produtos farmacêuticos também poderia pôr em perigo a reutilização de águas residuais tratadas, uma potencial opção para alcançar uma gestão sustentável da água ^[1].

Dos muitos fármacos residuais que vem sendo detectados em estudos recentes, alguns já tiveram seus possíveis efeitos relatados, atentando-se para suas características, seu potencial efeito no meio ambiente, na saúde humana e dos animais. Alguns grupos de fármacos residuais merecem uma atenção especial, dentre eles destaca-se os antibióticos^[2].

Os antibióticos são considerados contaminantes "pseudo - persistente", devido à sua introdução contínua no ecossistema^[3]. A presença de antibióticos no

ambiente pode acarretar dois problemas ambientais: contaminação dos recursos hídricos e aumento da resistência de alguns microrganismos por esses fármacos [4].

Em virtude dos riscos que estes compostos podem vir a representar à saúde humana e por sua difícil remoção no tratamento convencional de água, muitos estudos estão sendo direcionados para o desenvolvimento e aprimoramento de novas tecnologias de remoção destas substâncias, de modo a resguardar a qualidade dessas águas para o consumo humano [5,6].

Uma opção para a remoção de fármacos da água, que tem sido estudado nos últimos anos é a adsorção. O processo de adsorção tem numerosas vantagens, incluindo: aplicabilidade em concentrações muito baixas, sendo adequada tanto para processos descontínuos e contínuos, facilidade de operação, possibilidade de regeneração e de reutilização do adsorvente e baixo custo de capital [5]. Esta técnica pode representar uma alternativa e/ou complemento para a remoção de micropoluentes orgânicos que apresentam características químicas persistentes e de difícil de remoção, mostrando-se como uma alternativa possível de ser implementada [7,8].

Além do carvão ativado, que é o adsorvente usualmente utilizado no tratamento de águas residuárias e de abastecimento público, outros adsorventes apresentam potencial aplicação na remoção dos compostos farmacológicos, tais como, argilas, sílicas gel organomodificadas, polímeros e resíduos de produção agroindustrial, como por exemplo o bagaço da cana de açúcar [9].

O uso de colunas contendo tais adsorventes pode representar uma medida alternativa e/ou complementar eficiente em ETA's para remoção destes compostos indesejáveis, desde que avaliados todos os parâmetros de adequação deste sistema em condições controladas de laboratório.

Desta forma, buscou-se para este trabalho testar diferentes materiais, de diferentes origens, de alta e baixa tecnologia e de reaproveitamento de resíduos sólidos agrícolas como adsorvente dos antibióticos amoxicilina (AMX), ampicilina (AMP), cefalexina (CFL) e ciprofloxacina (CPL).

2 MATERIAIS E MÉTODOS

2.1 Preparação dos materiais adsorventes

Argila Montmorilonita Dodecil Pirrolidona (Mo-DDP)

A Argila Montmorilonita Dodecil Pirrolidona (Mo-DDP) foi obtida a partir da argila Montmorilonia K-10 (Mo-K10), uma argila comercial. A argila passou por um processo de homoionização, para tal 10 g de Mo-k10 foram adicionados a 500 mL de solução de NaCl 5,0 M. A suspensão ficou sob agitação por 48 h. Após este período, foi realizada a lavagem da suspensão com água ultrapura, por diversas vezes, até que a adição de algumas gotas de AgNO_3 1,0 mol L⁻¹ no sobrenadante não apresentasse aspecto leitoso. A argila obtida, Mo-K10-Na, foi seca em estufa à 110°C.

Para a conversão da M0-K10-Na em uma argila organicamente modificada com N-DDP, 50 mL de água destilada foi aquecida à 80°C em um Becker de 100 mL, a seguir foi adicionada 10 g de Mo-K10-Na. A suspensão foi mantida sob agitação por 10 minutos para total homogeneização. Um volume de 2.560 µL de N-DDP, foi adicionado lentamente na suspensão e mantido sob agitação magnética por 48h à temperatura ambiente.

A mistura foi centrifugada e o sobrenadante foi removido, em seguida a Mo-DDP foi lavada com água destilada e seca em estufa à 80°C durante 24h. Após a secagem foi triturada em Almofariz com o auxílio de um Pistilo e peneirada em malha de 325-270 mesh.

Oligômeros poliédricos de silsesquioxanos funcionalizado com tiouréia (POSS-TU)

A uma suspensão de hidreto de sódio (6,85 g), disperso em óleo mineral a 60% em DMF anidro (100 mL) arrefecida a 0°C, por meio de um banho de gelo, e sob uma corrente de nitrogênio foi adicionado, uma solução de Tiouréia (29,12 g) em 200 mL de DMF anidro. Deixou-se reagir por 2 horas, ao fim das quais foi adicionado 50g de octa(3-cloropropil) silsesquioxano em 200 mL de DMF anidro por um período de 30 minutos. Após esta adição, retirou-se o banho de gelo e deixou-se reagir por mais 22 horas a 80°C. O produto resultante denominado POSS-TU, foi precipitado em etanol, depois do processo de precipitação, o material foi filtrado, lavado com etanol, seco e armazenado em um dessecador.

Bagaço de cana de cana de açúcar (BCA)

O BCA utilizado neste estudo foi cedido pela Vale do Paraná S/A - Álcool e Açúcar, localizada no município de Suzanópolis/SP. O material foi moído e

peneirado através de uma peneira de malha 100 mesh. O BCA foi fervido com água destilada durante 30 minutos e seco a 120°C.

O BCA seco foi então submetido ao um tratamento com NaOH e ácido cítrico (C₆H₈O₇). Para realizar este procedimento, 20 mL de solução de NaOH 0,1 mol L⁻¹, foi adicionada por grama de material, a mistura foi agitada durante 2 h, e sobrenadante separado por filtração simples. Em seguida, o material foi lavado repetidamente com água destilada e seco a 55°C durante 24 h. Subsequentemente, 8,3 mL de solução de ácido cítrico 1 mol L⁻¹ foi adicionado por grama de BCA e a mistura agitada durante 30 min. Em seguida, o sobrenadante foi separado, e o material foi seco a 55°C durante 24 h. A temperatura foi então aumentada para 120°C, e a amostra mantida durante 90 min. Finalmente, o BCA foi repetidamente lavado com água destilada e seco a 55 °C durante 24 h.

A caracterização físico-química dos materiais foi realizada pelas técnicas de FTIR, MEV e o pH_{PCZ} seguindo a metodologia proposta por Silva ^[10]

2.2 Determinação do tempo de equilíbrio

Os experimentos de determinação do tempo de equilíbrio foram realizados utilizando solução aquosa de antibióticos em pH 6,0, o volume de solução adotado foi de 100 mL com concentração 50 mg L⁻¹ e 100 mg de adsorvente. As massas dos adsorventes foram colocadas em contato com a solução de antibióticos em erlenmeyers de 125 mL e mantidas sob agitação, em uma velocidade de rotação de aproximadamente 170 rpm, em uma mesa de agitação orbital à temperatura de 25 °C.

Depois de decorrido o tempo de contato, a amostra era imediatamente filtrada através de membrana de 0,45 µm, a fração filtrada era então submetida à análise, utilizando HPLC, desta forma, verificando-se a percentagem de remoção do antibiótico (Equação A) no determinado tempo até que a concentração atingisse o equilíbrio.

$$\%removido = \frac{C_0 - C_e}{C_0} 100 \text{ (A)}$$

Sendo C₀ a concentração inicial da solução em mg L⁻¹ e C_e a concentração residual de antibióticos após o tempo de contato com o adsorvente em mg L⁻¹.

2.3 Obtenção das isotermas de adsorção

Em temperatura ambiente (25°C), os estudos de concentrações foram obtidos utilizando-se 100 mg do adsorvente, que foram transferidas para erlenmeyer de 125 mL, contendo 100 mL de solução de 15,0 a 50,0 mg L⁻¹ de cada um dos fármacos estudados.

As amostras foram agitadas para manter o adsorvente em suspensão durante todo o tempo de contato. O tempo de contato foi adotado com base nos resultados experimentais obtidos nos ensaios de determinação de tempo de equilíbrio. Passado o tempo de contato, as mostras foram filtradas e posteriormente analisadas em HPLC.

As isotermas de adsorção utilizando-se modelo de linearização proposto por Langmuir, Freundlich, Temkin e Dubinin-Radushkevich (D-R), foram usadas para avaliar os dados.

2.4 Influência do pH inicial da solução na adsorção

Foram realizados ensaios para avaliar a influência do pH na adsorção dos antibióticos de estudo em cada adsorvente, através do processo de batelada, um volume de 100 mL de solução de antibiótico a uma concentração de 50 mg L⁻¹ foi mantido em contato com 100 mg de adsorvente até que atingisse o tempo requerido para o equilíbrio, a uma velocidade de agitação de aproximadamente 170 rpm, em uma mesa de agitação orbital.

O pH do meio foi medido e ajustado para situar-se na faixa desejada. Este ajuste foi feito empregando-se soluções de NaOH e/ou HCl 0,1 mg L⁻¹. Foram realizados ensaios variando o pH entre em 3, 4, 6, 7, 8, e 10. A alíquota foi separada por filtração e analisadas em HPLC.

2.5 Experimentos termodinâmicos

Para investigar a influência da temperatura sobre a adsorção, foram feitas isotermas em quatro temperaturas diferentes: 25, 35, 45 e 55°C, utilizando 100 mL de solução com concentração 50 mg L⁻¹ de antibiótico em 100 mg de adsorvente. A

variação de temperatura do meio racional foi controlada por meio do equipamento TE-184 Banho Termostatizado. Foi empregado o mesmo procedimento de separação e quantificação descrito para os experimentos supracitados.

Os resultados das isotermas nas quatro temperaturas diferentes foram utilizados para calcular os parâmetros termodinâmicos (Variação de entalpia - ΔH , variação da entropia- ΔS e variação da energia livre de Gibbs - ΔG).

3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

3.1 Determinação do tempo de equilíbrio

Foi possível observar que é necessário um tempo de contato de aproximadamente 150 min, para que a adsorção em Mo-DDP alcançasse o equilíbrio e neste período a quantidade de antibiótico removido do efluente sintético para CPL, AMP, CFL e AMX foram de 96,5; 65,0; 50,0 e 20,0 % respectivamente.

Para o BCA e o POSS-TU o tempo necessário para atingir o equilíbrio da adsorção foi de aproximadamente 120 min, neste período as porcentagens máximas de adsorção de CPL, AMP, CFL e AMX foram iguais a 65,0; 20,0; 50,0 e 60,0%, respectivamente, para BCA e 75,0; 50,0; 60,0 e 65,0% respectivamente, usando POSS-TU.

3.2 Cinética da adsorção

Para os ajustes aos modelos cinéticos foram utilizados os dados dos experimentos de determinação do tempo de equilíbrio, os dados foram ajustados aos modelos: pseudo-primeira-ordem, pseudo-segunda-ordem, Elovich, difusão intrapartícula e difusão em filme.

O modelo cinético pseudo-segunda ordem, pode representar melhor os dados para todos os sistemas adsorvente-adsorvato avaliado neste estudo.

Por meio de regressão linear dos gráficos de (t/Q_t) versus t (tempo) foram calculados, o coeficiente angular que representa a massa máxima adsorvida por grama do adsorvente (Q_e) e o coeficiente linear, a partir do qual pode se calcular a constante de Pseudo-segunda ordem (k_2).

Como pode ser visto na Tabela 1, o coeficiente de determinação (R^2) para o modelo cinético de Pseudo-segunda ordem são bem próximos de um (são os maiores quando comparado com o valor de R^2 obtido pelos demais modelos cinéticos). O melhor ajuste ao mecanismo de pseudo-segunda-ordem foi também confirmado pela proximidade obtida entre os valores de Q_e determinados experimentalmente com os valores de Q_e calculados pelo modelo. Isto sugere que a adsorção de CPL, AMP, CFL e AMX em POSS-TU, BCA e Mo-DDP, segue uma cinética de segunda ordem.

Tabela 1: Valores dos parâmetros do modelo cinético pseudo- segunda ordem propostos para sistema de adsorção dos antibióticos de estudo.

MODELO	Adsorventes	Parâmetros	Ciprofloxacina	Ampicilina	Cefalexina	Amoxicilina
Pseudo segunda-ordem	POSS-TU	Q_e^{exp} / Q_e (mg/g)	37,50/45,31	25,00/25,02	30,00/30,25	32,50/35,33
		K_2 (1. min ⁻¹)	$5,24 \times 10^{-4}$	$1,54 \times 10^{-3}$	$1,54 \times 10^{-3}$	$2,51 \times 10^{-2}$
		R^2	0,9876	0,9927	0,9917	0,9822
	BCA	Q_e^{exp} / Q_e (mg/g)	32,50/34,87	10,00/11,87	25,00/29,12	30,00/35,29
		K_2 (1. min ⁻¹)	$2,68 \times 10^{-3}$	$3,17 \times 10^{-3}$	$1,33 \times 10^{-3}$	$9,83 \times 10^{-4}$
		R^2	0,9992	0,9889	0,9975	0,9893
	Mo-DDP	Q_e^{exp} / Q_e (mg/g)	48,25/55,61	32,50/44,32	25,00/32,67	10,00/12,78
		K_2 (1. min ⁻¹)	$7,52 \times 10^{-4}$	$3,52 \times 10^{-4}$	$5,96 \times 10^{-4}$	$1,64 \times 10^{-3}$
		R^2	0,9959	0,9875	0,9924	0,9845

3.3 Influência do pH inicial da solução na adsorção

A fim de avaliar o efeito do pH inicial da solução no processo de adsorção, experimentos variando o pH de 3 a 10 foram realizados

O percentual de remoção da amoxicilina utilizando BCA aumentou de 50% para 67% do pH 3 para pH 6 e voltou a diminuir com a aumento de pH. Para o POSS-TU, o pH que apresentou maior remoção foi igual à 3 (71%), a pH superior a 3 o percentual de remoção diminui progressivamente. Para o adsorvente Mo-DDP adsorção foi favorecida a pH 4 (remoção de 25%), aumentando o pH houve uma diminuição da remoção, no entanto, menos pronunciadas do que para o BCA e POSS-TU.

Ao analisar os dados obtidos nos experimentos de influência do pH na adsorção da ampicilina, foi possível constatar que em pH mais ácidos a adsorção foi favorecida quando se utilizou Mo-DDP (remoção máxima de 72% a pH 4), POSS-TU (remoção máxima de 60% a pH 6) e BCA (remoção máxima de 25% a pH 4).

A adsorção de cefalexina ocorre em maior porcentagem a pH próximo de 4 utilizando BCA e POSS-TU (63% e 72%), a pH > 4 reduz 21% a pH 10 para o BCA e 12% para POSS-TU. Para Mo-DDP remoção não varia significativamente na faixa de 3 a 8, no entanto decresce 5% a pH 10.

A remoção de ciprofloxacina em Mo-DDP, BCA e SG-TU teve sua porcentagem máxima a pH próximo de 8 (94,4%, 79% e 27%, respectivamente) e decresceu com o aumento do pH para 10 (90%, 60% e 20% respectivamente).

Como os antibióticos utilizados neste estudo são compostos anfotérico, que apresenta mais de uma constante de dissociação A relação entre o efeito do pH da solução sobre adsorção de amoxicilina utilizando os adsorvente selecionados, pode ser explicado considerando a carga de superfície do adsorvente e a constante de dissociação (pKa), ou seja, os resultados obtidos pela variação do pH da solução pode ser explicado pelas interações eletrostáticas atrativas ou repulsivas entre as cargas superficiais do adsorvente e do antibiótico.

3.4 Isotermas de adsorção

Os dados dos equilíbrios foram analisados usando os modelos de Langmuir, Freundlich, Temkin e Dubinin-Raduchkevich (D-R). Avaliando os dados obtidos pela aplicação dos modelos linearizado, permitiu dizer que os dados se ajustam melhor ao modelo de Freundlich.

A forma linearizada do modelo de Freundlich, fornece a partir da plotagem de $\ln$ de Q_e em função de $\ln$ de C_e , o valor de n e K_F . Os parâmetros n e K_F obtidos do modelo de Freundlich estão dispostos na Tabela 2.

Tabela 2: Valores dos parâmetros do modelo de isoterma de Freundlich propostos para sistema de adsorção dos antibióticos de estudo em diferentes adsorventes.

MODELO	Adsorventes	Parâmetros	Ciprofloxacina	Ampicilina	Cefalexina	Amoxicilina
Freundlich	POSS-TU	n (g/L)	0,778	0,731	0,623	0,673
		K_F (mg/g)	1,011	3,026	2,109	2,511
		R^2	0,9973	0,9939	0,9923	0,9939
	BCA	n (g/L)	1,158	0,965	0,669	0,563
		K_F (mg/g)	2,590	4,421	4,550	6,573
		R^2	0,9919	0,9903	0,9908	0,9958
	Mo-DDP	n (g/L)	1,250	1,122	0,565	0,674
		K_F (mg/g)	18,636	1,666	10,292	9,002
		R^2	0,9922	0,9916	0,9945	0,9953

O parâmetro n indica como estão distribuídos os sítios de adsorção quanto a sua energia. Se n é maior que 1, como é o caso para a adsorção dos antibióticos CPL e AMP em Mo-DDP e também para a CPL em BCA, significa que a adsorção é favorável, indicando que estes sítios são energeticamente heterogêneos, sendo que provavelmente os sítios altamente energéticos sejam ocupados previamente aos outros menos energéticos^[11]. Nos demais casos os valores de n foram menores que 1 indicando que a adsorção pode ter ocorrido principalmente em regiões de sítios mais homogêneos destes adsorventes.

Já o parâmetro K_F indica a capacidade de adsorção, cujo incremento significa um aumento na afinidade do adsorvente pelo adsorvato, e é característico de cada sistema^[12].

O fator de determinação R^2 se aproximou muito da unidade, indicando que os dados de adsorção se ajustaram muito bem ao modelo de Freundlich. A isoterma de Freundlich é amplamente aplicada em sistemas heterogêneos, especialmente para compostos orgânicos ou espécies altamente interativas com materiais carbonosos. Além disso, este modelo empírico pode ser associado à adsorção em múltiplas camadas, com uma distribuição não uniforme de calor de adsorção e afinidades sobre a superfície heterogênea, isto é, descreve uma adsorção não-ideal e reversível, é não restrita à formação da monocamada^[11].

3.5 Influência da temperatura no processo de adsorção

Os parâmetros termodinâmicos ΔH , ΔG e ΔS foram avaliados (Tabela 3) e mostraram que a adsorção dos antibióticos nos adsorventes estudados é um processo espontâneo e endotérmico, devido aos valores positivos de entalpia e negativo de energia livre de Gibbs. Os valores de ΔH obtidos indicam que adsorção ocorreu por um processo físico. Os resultados obtidos por meio do modelo de isoterma de D-R também indicam que a adsorção dos antibióticos sobre as superfícies dos adsorventes é influenciada por forças físicas.

Tabela 3: Parâmetros Termodinâmicos de adsorção de CPL, AMP, CFL e AMX em MO-DDP, BCA e POSS-TU.

Antibiótico	T (°C)	ΔG (KJ mol ⁻¹)			ΔS (J/mol K ⁻¹)			ΔH (KJ mol ⁻¹)		
		1	2	3	1	2	3	1	2	3
CPL	25	-1,06	-3,81	-						
	35	1,06								
	45	-1,09	-3,94	-	3,56	12,8	5,38	1,12	3,10	1,08
	55	1,65								
		-1,13	-4,07	-						
		1,71								
		-1,17	-4,19	-						
AMP		1,76								
	25	-2,94	-8,14	-						
	35	3,06								
	45	-3,04	-8,41	-3,16	9,89	27,3	10,3	2,24		4,81
	55	-3,14	-8,69	-				1,55		
		3,27								
		-3,24	-8,97	-3,37						
CFL	25	-3,84	-4,96	-2,80						
	35	-3,97	-5,13	-2,89						
	45	-4,10	-5,29	-2,99	12,9		16,3	2,48		3,57
	55	-4,23	-5,46	-	9,41			1,94		
		3,09								
	25	-16,8	-3,18	-						
	35	2,00								
AMX	45	-17,4	-3,29	-2,07	56,45		10,7	14,9		2,21
	55	-17,9	-3,29	-2,14	6,73			1,13		
		-18,5	-3,61	-2,20						

1 – Adsorvente Mo-DDP

2 – Adsorvente BCA

3 – Adsorvente POSS-TU

4 CONCLUSÃO

Os adsorventes evidenciaram eficiência de remoção variada para cada antibiótico. A ciprofloxacina e ampicilina foram melhores adsorvidas pela Mo-DDP, enquanto a amoxicilina e cefalexina foram melhores adsorvidas pelo POSS-TU.

Na avaliação do efeito do pH na adsorção, foi possível notar que para os antibióticos utilizados neste estudo o pH interfere de maneira significativa na eficiência da sua remoção dependendo do adsorvente utilizado.

Dados de equilíbrio de adsorção dos adsorventes bem representados por modelo de isoterma de Freundlich, o que nos permitiu compreender que os adsorventes são estruturas com sítios heterogêneos, e que a adsorção ocorre por multicamadas. Os dados cinéticos de adsorção foram bem descritas pela modelo

pseudo-segunda ordem, sugerindo que a adsorção química é a etapa controladora do processo.

Na avaliação do efeito da temperatura nos dados de equilíbrio, dentro das condições experimentais investigadas, verificou-se que a adsorção dos quatro tipos de antibióticos aumentou com o aumento da temperatura. Os parâmetros termodinâmicos ΔH , ΔG e ΔS foram avaliados e mostraram que a adsorção dos antibióticos em POSS-TU, Mo-DDP e BCA é um processo endotérmico e espontâneo devido aos valores positivo de entalpia e negativos energia livre de Gibbs, respectivamente. Os valores positivos de entropia confirmam o aumento da desordem na interface sólido/fluido.

REFERÊNCIAS

- [1] BEHERA, S. K.; KIM, H. W.; OH, J.; PARK, H. Occurrence and removal of antibiotics, hormones and several other pharmaceuticals in wastewater treatment plants of the largest industrial city of Korea. *Science of the Total Environment*, v. 409, p. 4351–4360, 2011.
- [2] KUMMERER, K. Significance of antibiotics in the environment. *Journal of Antimicrobial Chemotherapy*, v. 52, p. 5-7, 2003.
- [3] DOMÍNGUEZ, J. R. et al., Removal of common pharmaceuticals present in surface waters by Amberlite XAD acrylic-ester-resin: Influence of pH and presence of other drugs. *Desalination*, v. 269, p. 231–238, 2011.
- [4] KÜMMERER, K. Drugs in the environment: emission of drugs, diagnostic aids and disinfectants into wastewater by hospitals in relation to other sources – a review. *Chemosphere*, Oxford, v. 45, p. 957-939, 2001.
- [5] NASUHOGLU, D.; RODAYAN, A.; BERK, D.; YARGEAU, V. Removal of the antibiotic levofloxacin (LEVO) in water by ozonation and TiO₂ photocatalysis. *Chemical Engineering Journal*, v. 189, p. 41– 48, 2012.
- [6] MOUSSAVI, G.; AHAMD, A.; YAGHMAEIAN, K.; ESKANDARI, M. Preparation, characterization and adsorption potential of the NH₄OH-induced activated carbon for the removal of amoxicillin antibiotic from water. *Chemical Engineering Journal*, v. 217, p. 119- 128, 2013.
- [7] WUNDER, D. B. et al., Sorption of antibiotics to biofilm. *Water Research*, v. 45, p. 2270 – 2280, 2011.

- [8] LIN, A. Y.; TSAI, Y. Occurrence of pharmaceuticals in Taiwan's surface waters: Impact of waste streams from hospitals and pharmaceutical production facilities. *Science of the Total Environment*, Taiwan, v.407, p. 3793–3802, 2009.
- [9] MESTRE, A. S. *et al.* Waste-derived activated carbons for removal of ibuprofen from solution: Role of surface chemistry and pore structure. *Bioresource Technology*, v. 10, p. 1720–1726, 2009
- [10] SILVA, N.C Estudo da adsorção de antibióticos em meio aquoso utilizando diferentes adsorventes, 2015,175p. Tese (Doutorado em Ciências dos Materiais) - Universidade Estadual Paulista “Júlio De Mesquita Filho”-UNESP, Ilha Solteira-SP.
- [11] FOO, K.Y. ; HAMEED, B.H. Insights into the modeling of adsorption isotherm systems –a Review. *Chemical Engineering Journal*, v. 156, p. 2–10, 2010.
- [12] VALENCIA, C. A. V. Aplicação da adsorção em carvão ativado e outros materiais carbonosos no tratamento de águas contaminadas por pesticidas de uso agrícola. 2007. 115p. Dissertação (Mestrado em Engenharia Metalúrgica) - Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro.

ADSORPTION STUDY OF ANTIBIOTICS IN A AQUOSO FLUID USING DIFFERENT ADSORBENTS

ABSTRACT

This paper deals with the adsorption via batch of antibiotics, Ampicillin, Amoxicillin, Cephalexin and Ciprofloxacin in sugarcane bagasse, clay functionalized with N-dodecyl-2-pyrrolidone and polyhedral oligomer of silsesquioxanoorgano modified with thiourea. The adsorbents were characterized by FTIR, zero point of charge pH and MEV. The equilibrium of adsorption was expressed by the Langmuir isotherm adsorption, Freundlich, Temkin and D-R. The Freundlich isotherm was the best represented the experimental data. The adsorption kinetics was discussed using kinetic models Pseudo-first and second order, Elovich, intraparticle diffusion and film diffusion. The kinetic model of Pseudo-second order can better describe the adsorption of antibiotics in the evaluated adsorbents. Some variables associated with the adsorption process, such as temperature and pH were also measured.

Keywords: adsorption, adsorbents, isotherms, antibiotics.