

# Remoção de amoxicilina da água utilizando carvão ativado de coco babaçu (*orbignya phalerata*)




## Removal of amoxicillin from water using babaçu coconut activated charcoal (*orbignya phalerata*)




- **Data de entrada:** 07/11/2017
- **Data de aprovação:** 20/03/2019

Allison Daniel Fernandes Coelho Souza<sup>1\*</sup> | Gabriela Eustáquio Lacerda<sup>1</sup> | Aurélio Pessoa Picanço<sup>1</sup>  
Emerson Adriano Guarda<sup>1</sup> | Patricia Martins Guarda<sup>1</sup> | Thiago Costa Gonçalves Portelinha<sup>1</sup>

DOI: <https://doi.org/10.36659/dae.2020.062>

### ORCID ID

Souza ADFC  <https://orcid.org/0000-0002-6856-166X>  
Lacerda GE  <https://orcid.org/0000-0001-6393-9304>  
Picanço AP  <https://orcid.org/0000-0001-5277-1403>

Guarda EA  <https://orcid.org/0000-0003-0227-3881>  
Guarda PM  <https://orcid.org/0000-0003-0937-6779>  
Portelinha TCG  <https://orcid.org/0000-0003-2489-9113>

### Resumo

Os fármacos são todas as substâncias com ação farmacológica, empregados com um propósito terapêutico. Sua presença no meio aquático advém do uso crescente pelos seres humanos e animais; após metabolizados, eles são excretados e transportados até as matrizes ambientais. Visando contribuir com soluções de possíveis problemas relativos às contaminações com estas substâncias, o presente estudo teve por objetivo verificar a remoção do antibiótico amoxicilina da água na concentração de 10 mg.L<sup>-1</sup> por meio de processo de adsorção com Carvão Ativado de Coco Babaçu sob a forma granular (CAG), por meio de testes em coluna de leito fixo, e em pó (CAP), pelo método de adição. As leituras de concentração após o tempo de contato com o carvão foram realizadas por cromatografia líquida de alta eficiência (CLAE). Verificaram-se concentrações residuais abaixo do limite de detecção na remoção da amoxicilina com o CAG de menor granulometria. Já o CAP foi menos eficiente sob as dosagens e tempo de contato analisados.

**Palavras-chave:** Antibióticos. Ambiente Aquático. Adsorção. Cromatografia.

### Abstract

*Drugs are all substances with pharmacological action, used for a therapeutic purpose. Its presence in the aquatic environment comes from the increasing use by humans and animals. After being metabolized, they are excreted and transported to the environmental matrices. Aiming to contribute with solutions of possible problems related to contamination with these substances, the objective of this study was to verify the removal of antibiotic amoxicillin from the water in the concentration of 10 mg.L<sup>-1</sup> by means of an adsorption process with Coconut Activated Charcoal Babaçu under the granular form (CAG), by means of tests of fixed bed column and powder (CAP), by the method of addition. The concentration readings after the time of contact with the coal were carried out by high performance liquid chromatography (HPLC). Residual concentrations below the detection limit were found in the removal of amoxicillin with the CAG of lower particle size. CAP was less efficient under the dosages and contact time analyzed.*

**Keywords:** Antibiotics. Aquatic Environment. Adsorption. Chromatography.

<sup>1</sup> Universidade Federal do Tocantins (UFT) – Palmas – Tocantins – Brasil.

\* **Autor correspondente:** fernandes.engamb@gmail.com.

## 1 INTRODUÇÃO

A crescente expansão dos centros urbanos, indústrias, agricultura e pecuária tem contribuído para o aumento da contaminação de corpos hídricos superficiais e subterrâneos por diversos compostos orgânicos sintéticos, como os fármacos, conhecidos como microcontaminantes emergentes (BORGES et al., 2016). Nas últimas décadas, a produção e o consumo de produtos farmacêuticos aumentou consideravelmente devido ao desenvolvimento das ciências médicas (SIM et al., 2011). Decorrentes de seu uso, resíduos de fármacos utilizados na medicina humana e veterinária têm sido detectados em diferentes matrizes ambientais, incluindo águas de consumo humano (ANDREOZZI et al., 2005; HOMEM, 2011). Um exemplo desses compostos encontrados são os antibióticos, como a amoxicilina, provenientes do constante tratamento e da prevenção de doenças causadas por infecções bacterianas (RICO et al., 2012). Após a comprovação de seus efeitos negativos aos ecossistemas e aos seres humanos (MENDES, 2002), tem-se estudado de forma mais intensa a presença desses compostos em matrizes ambientais, representando uma ameaça à qualidade ambiental dos biomas aquáticos.

Os fármacos podem atingir os corpos hídricos através do lançamento de efluentes contaminados. Essa contaminação se dá pelo uso de medicamentos que são, em sua maioria, parcial ou totalmente excretados pelo organismo humano na sua forma ativa, e direcionados às redes coletoras de esgoto e às estações de tratamento de esgotos (ETEs; CABEZA et al., 2012). Essas substâncias não têm sido completamente removidas nas ETEs, que em geral empregam apenas processos biológicos para a remoção de matéria orgânica e, em poucos casos, utilizam técnicas terciárias de tratamento visando à remoção de outros contaminantes, como os fármacos (AQUINO et al., 2013). No Brasil, con-

centrações de fármacos, inclusive amoxicilina e diclofenaco, foram identificadas por Locatelli (2011) e Montagner e Jardim (2011) na bacia do rio Atibaia (SP), na ordem de  $15 \text{ ng.L}^{-1}$  e  $115 \text{ ng.L}^{-1}$ , respectivamente. Ghiselli (2006) identificou anti-inflamatórios, analgésicos, hormônios e outros fármacos em rios e ribeirões da região de Campinas (SP) em concentrações acima de  $5 \text{ } \mu\text{g.L}^{-1}$ .

Nas águas superficiais, dependendo da capacidade de autodepuração do corpo receptor, os fármacos podem chegar às águas de abastecimento localizadas a jusante dos lançamentos de efluentes sanitários, sendo aduzidas até as estações de tratamento de água (ETAs; BORGES et al., 2016). Nas ETAs os fármacos não são removidos por meio dos sistemas convencionais (JONES et al., 2005), sendo direcionados às redes de abastecimento público e configurando, assim, uma possível exposição à saúde humana (WEBB et al., 2003). Dessa forma, são necessários estudos sobre técnicas de remoção desses contaminantes da água, contribuindo com a proteção dos recursos hídricos e das águas de abastecimento.

Quando presentes nas águas naturais, os fármacos apresentam características lipofílicas e resistentes (BORGES et al., 2016). Essas substâncias, quando em contato com espécies de peixes e anfíbios, podem desencadear impactos negativos, devido a sua interferência no sistema endócrino animal, prejudicando a síntese de esteroides, maturação de células e órgãos reprodutivos e causando a feminização de espécies (JOBLING et al., 2002; GYLLENHAMMAR, 2008; LYSSIMACHOU, 2008). Além disso, o consumo de águas de abastecimento contaminadas podem desencadear a proliferação de células cancerígenas e interferências na maturação sexual em seres humanos (GUIMARÃES, 2005).

As técnicas atuais de remoção de substâncias orgânicas sintéticas – incluindo os fármacos –

em estações de tratamento não têm sido eficientes por diversos fatores técnicos limitantes. Exemplo disso são os Processos Oxidativos Avançados (POAs) que, por diversas vezes, não são aplicáveis devido à necessidade de radicais específicos para a mineralização de contaminantes (KÜMMERER, 2009). Outras técnicas, como a de filtração por membranas, têm como deficiência os altos custos de concepção, manutenção e operação (OLIVEIRA, 2010). Por outro lado, o processo de remoção por adsorção com carvão ativado de origem mineral e/ou vegetal não tem sido eficiente nos quesitos de manutenção de sistemas e custos de implantação, apesar de registrar altos percentuais de remoção de fármacos (PERES, 2011; AQUINO et al., 2013). Diante desse cenário, para a melhoria da eficiência do processo de adsorção na remoção de contaminantes com o carvão ativado, principalmente no quesito custos de concepção e operação, fazem-se necessários estudos que avaliem insumos de baixo valor agregado e com alta eficácia na remoção de fármacos.

A amoxicilina ( $C_{16}H_{19}N_3O_5S$ ) é um antibiótico de características pertencentes à classe dos B-lactâmicos (penicilinas), sendo um dos medicamentos mais prescritos pela medicina em escala mundial devido ao seu amplo espectro de ação antibacteriana, atuando por meio da inibição da síntese da parede celular dos microorganismos (HOMEM, 2011). É um sólido cristalino branco, com peso molecular de  $365.404 \text{ g.mol}^{-1}$ , solúvel em água ( $3,43 \times 10^3 \text{ mg.L}^{-1}$  a  $25^\circ\text{C}$ ) e com acidez considerável ( $pK_a=3,3$ ). A sua seleção como antibiótico de estudo é decorrente de sua ampla utilização, e o consequente lançamento de forma contínua no meio ambiente (CHRISTIAN et al., 2003; KASPRZYK-HORDERN et al., 2008; ZUCCATO et al., 2010; LOCATELLI et al., 2011; XU et al., 2011).

Nesse contexto, o presente estudo avaliou a remoção de amoxicilina da água por meio do processo de adsorção utilizando o carvão ativado

granular (CAG) e o carvão ativado em pó (CAP) produzido com o epicarpo do coco babaçu (*Orbignya phalerata*). A eficiência da remoção do fármaco foi verificada por meio de amostras realizadas em laboratório em colunas de leito fixo para o CAG e por meio de equipamento Jar-test para o CAP. Com o presente trabalho, espera-se gerar informações úteis às companhias de saneamento básico no Brasil, aperfeiçoando tecnologias de remoção de fármacos e contribuindo para a conservação e melhorias da qualidade dos recursos hídricos, podendo, assim, prevenir o surgimento de patologias e desequilíbrios ecológicos relacionados com a sua presença no meio ambiente.

## 2 MATERIAIS E MÉTODOS

Os experimentos de verificação da remoção da amoxicilina por adsorção conduzidos em Jar-teste foram realizados no período de 30 de setembro a 05 de outubro de 2016 no laboratório de Saneamento Ambiental da Faculdade Católica do Tocantins (FACTO). As determinações analíticas do fármaco foram realizadas no laboratório de Instrumentação Científica da Universidade Federal do Tocantins (UFT - Campus Palmas).

### 2.1 Materiais e reagentes utilizados

O fármaco utilizado no trabalho foi a amoxicilina tri hidratada, com teor de  $920,79 \text{ } \mu\text{g.mg}^{-1}$  e umidade de 14%. Utilizou-se, ao longo do trabalho: papel filtro para retenção de partículas de 45 mm, eppendorfs de 2 mL para coleta de amostras de água, seringas de 3 ml e unidades filtrantes hidrofílicas de PVDF para cromatografia, de 13 mm com poro  $0,2 \text{ } \mu\text{m}$ .

Como sólido adsorvente foi utilizado nos experimentos o carvão ativado granular (CAG) e em pó (CAP) produzidos a partir do epicarpo do coco

babaçu fornecidos pela Tobasa Bioindustrial de Babaçu Ltda. Para os testes de adsorção foram utilizados dois tipos de carvão, nas granulometrias de 1,18 a 2,36 mm (CAG1) e 0,25 a 0,60 mm (CAG2) e o CAP na granulometria entre 0,01 e 0,10mm. O carvão ativado de coco babaçu utilizado neste estudo foi caracterizado por PIZA (2008), e possui: número de lodo de 1028,80  $I_2$  mg.g<sup>-1</sup> (CAG) e 939,10  $I_2$  mg.g<sup>-1</sup> (CAP); densidade de 2,9001 g.cm<sup>-3</sup> (CAG) e 2,4229 g.cm<sup>-3</sup> (CAP); umidade de 6,38 %p/p (CAG) e 3,55 %p/p (CAP); pH de 9,57 (CAG) e 9,55 (CAP); teor de cinza em massa de 13,19% (CAG) e 8,9% (CAP). O CAG possui área específica de 118,639 m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup> (ROSA, 2008) e o CAP possui área específica de 134,2 m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup> (PASCHOALATO et al., 2009).

Os reagentes utilizados para a preparação da fase móvel em CLAE foram o metanol em grau cromatográfico e ácido o-fosfórico 15%, diluídos em água ultrapura padrão Mili-Q.

## 2.2 Procedimento experimental

Para os ensaios realizados no trabalho, foram utilizadas soluções de amoxicilina em concentração de 10mg.L<sup>-1</sup> em água ultrapura, de pH = 6. Essa concentração foi definida baseada nos estudos recentes na remoção do antibiótico da água (SILVA, 2009; HOMEM, 2011; MENDES, 2013).

Para a determinação da concentração da amoxicilina da água após contato com o Carvão Ativado Granular (CAG) e com o Carvão Ativado em Pó (CAP) do coco babaçu foram realizados testes em coluna de leito fixo acopladas (para o CAG) e em contato direto (para o CAP) no equipamento Jarteste, conforme metodologias de Di Bernardo e Dantas (2005) e Peres (2011).

### 2.2.1 Ensaios com Carvão Ativado Granular (CAG)

Os testes em coluna de leito fixo utilizando o carvão ativado granular tipo CAG1 e tipo CAG2 fo-

ram realizados em triplicata, segundo a metodologia de adsorção em escala laboratorial validada por Di Bernardo e Dantas (2005). Nessa etapa do trabalho, a eficiência do processo de adsorção foi avaliada por meio de testes em coluna de leito fixo, subsidiando futuras possíveis aplicações em escala real. A coluna de adsorção com fluxo descendente era composta de material acrílico de 2 cm de diâmetro, com leito de CAG de 15 cm de altura, acopladas ao Jarteste, com a alimentação efetuada a partir de gotejamento através dos jarros. O volume de carvão em cada coluna foi de 47,1 cm<sup>3</sup> e a massa foi de 136,6 g de CAG.

A vazão de amoxicilina na coluna de leito fixo foi de 20 mL.min<sup>-1</sup>, correspondendo a uma taxa de filtração de, aproximadamente, 100m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>.d. Nessa taxa de filtração, o tempo total de contato do conteúdo é suficiente para que se tenham resultados favoráveis sobre a adsorção de contaminantes (DI BERNARDO E DANTAS, 2005). Foram coletadas amostras de 1mL após 20 min de contato nas colunas, segundo recomendações de Choi et al. (2006) e Rosa (2008). Posteriormente, estas foram encaminhadas às análises em CLAE para a determinação das concentrações de amoxicilina.

### 2.2.2 Ensaios em Carvão Ativado em Pó (CAP)

Para os experimentos de adsorção utilizando o carvão ativado em pó foram selecionadas as dosagens de 5mg.L<sup>-1</sup>, 15mg.L<sup>-1</sup> e 30mg.L<sup>-1</sup>, com o intuito de verificar a remoção da amoxicilina da água por meio do contato com o CAP, em diferentes dosagens, com base em valores usualmente utilizados em estações de tratamento de água (PERES, 2011). O preparo da solução estoque de 1% (10mg.L<sup>-1</sup>) foi feito a partir da pesagem de 5g do carvão adicionado a 500 mL de água destilada, sob agitação manual.

Após a preparação da solução estoque, foram realizados os testes em triplicata, também em Jarteste, das dosagens selecionadas, alterando

as concentrações a partir do volume da solução em contato com a água contaminada com amoxicilina. Para a obtenção das concentrações foram adicionados 1mL ( $5\text{mg.L}^{-1}$ ), 3mL ( $15\text{mg.L}^{-1}$ ) e 6mL ( $30\text{mg.L}^{-1}$ ) de solução de CAP em cada jarro, contendo 2 litros de água com concentração de amoxicilina de  $10\text{mg.L}^{-1}$ . A mistura ficou sob agitação mecânica a uma rotação de 85 rpm, conferindo um gradiente de velocidade de  $G=100\text{s}^{-1}$ , e o tempo de contato do CAP com a água de estudo foi de 30 minutos (DI BERNARDO E DANTAS, 2005; PERES, 2011). Em seguida, as amostras foram filtradas por membranas de 0,45mm e coletadas para as determinações de concentração residual de amoxicilina.

### 2.3 Análise por cromatografia líquida de alta eficiência (CLAE)

A cromatografia líquida de alta eficiência (CLAE) foi realizada em Cromatógrafo Shimadzu® Lc-10 Series Avp, equipado com uma bomba (LC-10AD), degaseificador (DGU-14A), forno de coluna (CTO-10A), Detector UV-VIS (SPD-10A), injetor manual Rheodyne (loop de 20  $\mu\text{L}$ ) e integrador CLASS (LC-10A). A separação foi desenvolvida por método de eluição isocrática, utilizando-se uma coluna de fase reversa Phenomenex Luna C18 (4 x 30 mm) com coluna de guarda, preenchida com material semelhante ao da coluna principal. O método cromatográfico foi desenvolvido segundo metodologia validada por Silva (2009), para análise de remoção de fármacos, inclusive amoxicilina, em amostras de água. A quantificação das concentrações residuais e do percentual de remoção do antibiótico foi feita por meio de curva de calibração para o experimento, com seis pontos, entre concentrações de 0,3125 e  $10\text{mg.L}^{-1}$ , com um valor de  $R^2=0,9999$ .

A fase móvel foi preparada utilizando água Milli-Q acidificada em ácido *orto*-fosfórico com  $\text{pH}=2,6$  e metanol. As especificações da fase móvel e do método cromatográfico são: composição da fase móvel (85%  $\text{H}_2\text{O}$  / 15% Metanol); vazão ( $0,8\text{ mL.min}^{-1}$ ); comprimento de onda (230 nm); temperatura da coluna ( $28\text{ }^\circ\text{C}$ ); tempo de corrida (10 min).

### 2.4 Avaliação de remoção da amoxicilina

As determinações de concentração de amoxicilina residual nas amostras de água, após adsorção em coluna de leito fixo, em CAG1 e CAG2, e contato com o CAP, foram realizadas no CLAE. Os valores obtidos por meio da leitura foram convertidos segundo a metodologia de Homem et al. (2010) e Teixeira et al. (2008). O limite de detecção (LD) e o limite de quantificação (LQ) do método cromatográfico foram de  $9\text{ }\mu\text{g.L}^{-1}$  e  $29\text{ }\mu\text{g.L}^{-1}$ , respectivamente (SILVA, 2009). Como branco, foram utilizadas amostras de água ultrapura acidificada (fase móvel) livres de amoxicilina. Em seguida, a água utilizada nos experimentos foi submetida à leitura em CLAE, para confirmação da concentração da amoxicilina a  $10\text{mg.L}^{-1}$ .

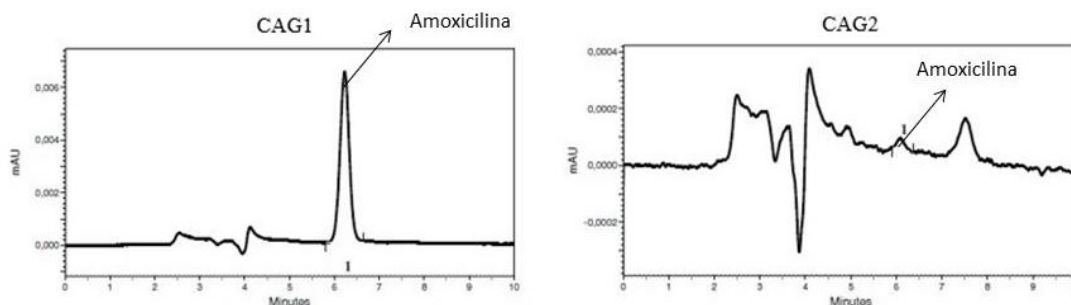
Os dados foram testados quanto à normalidade e homocedasticidade. Como foi constatado que os dados não cumpriam as suposições para um teste paramétrico, foi realizado um teste não paramétrico (Kruskal-Wallis) para comparar a remoção de amoxicilina entre os grupos avaliados (CAG e CAP) e dentro dos tratamentos (diferentes granulometrias e diferentes dosagens). Foi realizado um teste a posteriori de Tukey de comparação entre os pares. Para as análises estatísticas foi utilizado o programa InfoStat (DI RIENZO et al., 2008). Os dados foram apresentados como média  $\pm$  desvio padrão na Tabela 1.

### 3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

#### 3.1 Adsorção em Carvão Ativado Granular - CAG

Na Fig. 1 observam-se os cromatogramas referentes às amostras. Na Tabela 1 estão indicadas as concentrações residuais de amoxicilina quan-

tificadas nas amostras de água após o ensaio de adsorção em coluna de leito fixo, a partir da curva de calibração elaborada para as análises, bem como o percentual de remoção do fármaco nas amostras estudadas.



**Figura 1:** Cromatogramas das amostras após contato com o CAG1 e CAG2

**Tabela 1:** Residual de amoxicilina após ensaio em coluna de leito fixo em CAG

	Amostras	Residual (mg.L <sup>-1</sup> )	Percentual de Remoção* (%)
CAG1	CAG11	2,28	77,2
	CAG12	1,53	84,7
	CAG13	2,41	75,9
	MED ± DESVPAD	2,07 ± 0,48	79,26 ± 4,75
CAG2	CAG2a	<9 µg.L <sup>-1</sup>	100
	CAG2b	<9 µg.L <sup>-1</sup>	100
	CAG2c	<9 µg.L <sup>-1</sup>	100
	MED ± DESVPAD	?	?

\*Percentuais calculados conforme valor de LD.

A partir da Fig. 1, pode-se observar que o pico de amoxicilina foi detectado no intervalo entre o 6<sup>o</sup> e o 7<sup>o</sup> minuto de corrida no CLAE. Nos testes de adsorção foram registrados altos percentuais de remoção do fármaco nas três amostras de CAG1, variando entre 75,9 e 84,7%. Nos testes com o CAG2, a concentração residual apresentou-se abaixo do limite de detecção do método cromatográfico (9 µg.L<sup>-1</sup>), indicando um percentual de 100% de remoção (tomando como referência a concentração do limite de detecção da amostra). Essa diferença entre as granulometrias analisadas e o percentual de remoção da amoxicilina

se dá pelas diferentes áreas de contato entre o fármaco e a superfície do grão do carvão. Os testes com o CAG2 indicam maior contato entre a amoxicilina e a superfície do carvão, em relação ao CAG1. Quanto à relação entre a adsorção e a superfície de contato do adsorvente, Rosa (2008) e Paschoalato et al. (2009) apontaram que o carvão de coco babaçu apresenta alta área superficial. Essa é uma característica relevante para sólidos utilizados como adsorventes nos processos de adsorção, como nos processos verificados neste trabalho.



O aumento da capacidade de adsorção de amoxicilina do CAG2 (remoção de 100%) sobre o CAG1 (remoção de 85%) é coerente com a bibliografia analisada, uma vez que partículas com menor granulometria possuem uma maior área superficial e quantidade de sítios ativos, consequentemente aumentando sua capacidade de adsorção (ESTEVINHO et al., 2006; HOMEM, 2011). Nesse contexto, o presente estudo remete a uma capacidade de adsorção da amoxicilina após teste em coluna de leito fixo de fluxo descendente com o carvão ativado granular produzido por meio do epicarpo do coco babaçu. Os mesmos valores de granulometria de carvão ativado utilizados nesse estudo também foram testados por Homem (2011), para a remoção da amoxicilina utilizando como material adsorvente a casca de amêndoa; e o material de menor granulometria mostrou-se eficiente, registrando percentuais de remoção do fármaco entre 46 e 100%. Menores granulometrias (0,192 a 0,263 mm) foram testadas em carvão ativado de origem mineral com taxas de remoção de amoxicilina de até 94% (PUTRA et al., 2009). Goel et al. (2005), e também verificou-se em escala laboratorial a alta capacidade de adsorção por meio de colunas utilizando como adsorvente carvão ativado de origem vegetal para a remoção de metais.

### 3.2 Adsorção em Carvão Ativado em Pó - CAP

A partir dos resultados obtidos utilizando o carvão ativado em pó, foi possível verificar, de maneira geral, uma baixa redução na concentração de amoxicilina, com uma remoção máxima de 6,6% do fármaco para a dosagem de 30 mg.L<sup>-1</sup>, que apresentou um residual de 9,34 mg.L<sup>-1</sup>. Além disso, não se observou diferença quanto à taxa de remoção quando comparadas as três concentrações testadas (5, 15 e 30 mg.L<sup>-1</sup>) para o carvão ativado em pó (H = 1,87; P = 0,4393). Foi observada uma remoção de 5,6% de amoxicilina na dosagem de 15 mg.L<sup>-1</sup> (residual de 9,44 mg.L<sup>-1</sup>), e

de 5,8% para a dosagem de 5 mg.L<sup>-1</sup> (residual de 9,42mg.L<sup>-1</sup>). Essa leve redução da capacidade de adsorção pode ter ocorrido devido à saturação dos poros das duas dosagens ocorrerem em pontos semelhantes (PERES, 2011). Nesse caso, recomendam-se estudos que determinem o ponto de saturação do CAP de coco babaçu.

Jaguaribe et al. (2005) e Piza (2008) avaliaram parâmetros para a determinação da capacidade de adsorção de carvões ativados de diferentes origens, incluindo o de babaçu. Os índices avaliados para o carvão ativado do coco babaçu apresentaram altos quantitativos de potencial de adsorção, quando comparado a outros tipos de carvão, e melhor afinidade entre o adsorvato e adsorvente. Dessa forma, como observado no presente estudo, pode-se compreender a razão de o CAG ter apresentado alto desempenho na remoção do fármaco estudado. Além disso, Piza (2008) também observou altos valores de remoção para o CAP de coco babaçu. Portanto, diante dos resultados obtidos no presente estudo, aliado às informações mencionadas por Piza (2008), é possível afirmar que o carvão ativado de coco babaçu pode atuar como um bom adsorvente para o fármaco amoxicilina.

A dosagem de carvão em pó que apresentou a maior taxa de remoção (30 mg.L<sup>-1</sup>) foi selecionada para ser comparada com o carvão granular (fino e grosso), com o intuito de testar a eficiência dos dois tipos de carvão ativado (granular e pó) na remoção da amoxicilina. Foi observado que o CAG de menor granulometria é o mais eficiente para a remoção (H = 7,20; P = 0,0036).

As altas concentrações residuais do fármaco em relação aos experimentos com o CAG possivelmente se dão pelas baixas dosagens adotadas para o CAP, indicando uma possível saturação dos poros do sólido adsorvente nas três dosagens. Outra possibilidade para os altos valores residuais também poderia ser o tempo insufi-

ciente de contato entre as moléculas da amoxicilina com o carvão. Veras (2006) estudou a remoção de hormônios por meio do CAP de diferentes materiais nas mesmas concentrações, atingindo percentuais de 90% de capacidade de adsorção após um tempo de contato de duas horas. Dosagens acima das utilizadas no presente estudo foram testadas por Fernandes (2007), também na remoção de hormônios, com concentrações de CAP a partir de 50 mg.L<sup>-1</sup> em um tempo de contato de cinco horas, com remoções de 97,9%. Com base nos dados reportados na literatura, os resultados obtidos nesse estudo sugerem que o tempo de contato entre a amoxicilina e o CAP utilizado foi insuficiente, impossibilitando a obtenção do equilíbrio da reação de adsorção.

O aumento na concentração do adsorvente teria como resultado uma maior eficiência na remoção do fármaco, devido ao aumento do número de poros ativos disponíveis (HOMEM, 2011). No entanto, os resultados obtidos com as dosagens de CAP utilizadas neste trabalho, sob o tempo de contato utilizado, indicam um baixo potencial de remoção, independentemente da dosagem. Portanto, estudos futuros deveriam avaliar o percentual de remoção da amoxicilina com CAP em dosagens superiores a 30 mg.L<sup>-1</sup> e em diferentes tempos de contato.

#### 4 CONCLUSÕES

- O processo de adsorção da amoxicilina (por CAG) revelou ter relação com a granulometria do adsorvente.
- O CAG demonstrou ser o mais eficiente para a remoção da amoxicilina, apresentando uma remoção maior do fármaco para o CAG2, de menor granulometria.
- Recomendam-se, para trabalhos futuros, estudos sobre a capacidade do CAG e do CAP de babaçu na remoção de amoxicilina, avaliando a

vazão e volume de ruptura e elaborando as isothermas de adsorção.

#### 5 AGRADECIMENTOS

Somos gratos à Universidade Federal do Tocantins (UFT), aos professores T.C. Alvim e A. Zuniga por possibilitarem as análises cromatográficas. À Faculdade Católica do Tocantins (FACTO) por possibilitar os ensaios de jarreste. Ao Banco Santander por meio do prêmio Santander Universidades Empreendedorismo Sustentável – Programa Amazônia 2020. Ao laboratório LAPEQ, em especial ao técnico Fabrício. À Tobasa Bioindustrial de Babaçu Ltda. por ceder amostras do carvão ativado granular e em pó.

#### 6 CONTRIBUIÇÃO DOS AUTORES

Todos os autores contribuíram de forma igualitária.

#### 7 REFERÊNCIAS

- ANDREOZZI, R. et al. Antibiotic removal from wastewaters: The ozonation of amoxicillin. *Journal of Hazardous Materials*, v. 122, n. 3, p. 243–250, 2005.
- AQUINO, S. F.; BRANDT, E. M. F., CHERNICHARO, C. A. L. Remoção de fármacos e desreguladores endócrinos em estações de tratamento de esgoto: revisão da literatura. *Eng Sanitária e Ambiental*, v.18 n.3, p. 187–204, 2013.
- BORGES, R. M. et al. Uso de filtros de carvão ativado granular associado a microrganismos para remoção de fármacos no tratamento de água de abastecimento. *Engenharia Sanitaria e Ambiental*. v 21, p.1-13, 2016.
- CABEZA, Y. et al. Monitoring the occurrence of emerging contaminants in treated wastewater and groundwater between 2008 and 2010. The Baix Llobregat (Barcelona, Spain). *Journal of Hazardous Materials*, v. 239–240, p. 32–39, 2012.
- CHOI, K. J.; KIM, S. G.; KIM, C. W.; PARK, J. K. Removal efficiencies of endocrine disrupting chemicals by coagulation/flocculation, ozonation, powdered/granular activated carbon adsorption, and chlorination. *Korean J. Chem. Eng.*, v.23, n.3, p. 399–408, 2006.
- CHRISTIAN, T. et al. Determination of antibiotic residues in manure, soil, and surface waters. *Acta Hydrochimica et Hydrobiologica*, v. 31, n. 1, p. 36–44, 2003.



- DI BERNARDO, L., DANTAS, A. D. **Métodos e técnicas de Tratamento de Água**. Associação Brasileira de Engenharia Sanitária e Ambiental, Rio de Janeiro, 2005.
- DI RIENZO J.A., CASANOVES F., BALZARINI M.G., Gonzalez L., Tablada M., Robledo C.W. 2008. **InfoStat, Version 2008**. Disponível em: <http://infostat.com.ar>. Acesso em 09/11/2016.
- ESTEVINHO, B. N. et al. Pentachlorophenol removal from aqueous matrices by sorption with almond shell residues. **Journal of Hazardous Materials**, v. 137, n. 2, p. 1175–1181, 2006.
- FERNANDES, R. **Estudos De Remoção De 17A-Etinilestradiol De Águas Para Abastecimento, Utilizando Dióxido De Cloro, Hipoclorito De Sódio, Carvão Ativado Em Pó (Cap) E Tratamento Físico-Químico**. [s.l.] Dissertação (Mestrado em Engenharia Civil), Universidade Estadual de Campinas, 2007.
- GHISELLI, G. **Avaliação da Qualidade das Águas Destinadas a Abastecimento Público na Região de Campinas: Ocorrência e Determinação dos Interferentes Endócrinos (IE) e Produtos Farmacêuticos e de Higiene Pessoal (PFHP)**. Tese (Doutorado em Ciências) Universidade Estadual de Campinas, 2006.
- GOEL, J; KADIRVELU, K; RAJAGOPAL, C; KUMAR GARG V; Removal of lead(II) by adsorption using treated granular activated carbon: batch and column studies. **J Hazard Mater**. v.17;125(1-3):211-20. Oct-2005.
- GUIMARÃES, J. Disruptores endócrinos no meio ambiente: um problema de saúde pública e ocupacional. **ACPO - Associação de Consciência à Prevenção Ocupacional**, v.1, p. 1–13, 2005.
- GYLLENHAMMAR, I. **Endocrine Disruption in Amphibians. Developmental Effects of Ethynylestradiol and Clotrimazole on the Reproductive System**. Acta Universitatis Upsaliensis. Digital Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Technology. 454-57 pp. Uppsala, 2008.
- HOMEM, V. **Tecnologias Alternativas de Remoção de Antibióticos de Águas Contaminadas**. [s.l.] Tese (Doutorado em Engenharia do Ambiente) Universidade de Porto, 2011.
- HOMEM, V.; ALVES, A.; SANTOS, L. Amoxicillin degradation at ppb levels by Fenton's oxidation using design of experiments. **Science of the Total Environment**, v. 408, n. 24, p. 6272–6280, 2010.
- JAGUARIBE, E. F.; et al. The Performance of activated carbons from sugarcane bagasse, babassu, and coconut shells in removing residual chlorine. **Brazilian Journal of Chemical Engineering**. V. 22, No 1, São Paulo Jan./Mar. 2005.
- JOBLING, S. et al. Altered sexual maturation and gamete production in wild roach (*Rutilus rutilus*) living in rivers that receive treated sewage effluents. **Biology of reproduction**, v. 66, n. 2, p. 272–281, 2002.
- JONES, O. A.; LESTER, J. N.; VOULVOULIS, N. Pharmaceuticals: A threat to drinking water? **Trends in Biotechnology**, v. 23, n. 4, p. 163–167, 2005.
- KASPRZYK-HORDERN, B.; DINSDALE, R. M.; GUWY, A. J. The occurrence of pharmaceuticals, personal care products, endocrine disruptors and illicit drugs in surface water in South Wales, UK. **Water Research**, v. 42, n. 13, p. 3498–3518, 2008.
- KÜMMERER, K. Antibiotics in the aquatic environment - A review - Part I. **Chemosphere**, v. 75, n. 4, p. 417–434, 2009.
- LOCATELLI, M. A. F.; SODRÉ, F. F.; JARDIM, W. F. Determination of antibiotics in Brazilian surface waters using liquid chromatography-electrospray tandem mass spectrometry. **Archives of environmental contamination and toxicology**, v. 60, n. 3, p. 385–393, 2011.
- LYSSIMACHOU, A. **An Investigation on Different Mechanisms of Endocrine Disruption in Fish and Molluscs**. Tese (Doutorado) -Universidad Autónoma de Barcelona, [s.l.: s.n.], 2008.
- MENDES, I. **Avaliação Do Processo Oxidativo Avançado Com H2o2/Uv Para A Degradação Do Antibiótico Amoxicilina**. [s.l.] Dissertação (Mestrado em Tecnologia Ambiental) Universidade de Ribeirão Preto, 2013.
- MENDES, J. J. A. The endocrine disruptors: A major medical challenge. **Food and Chemical Toxicology**, v. 40, n. 6, p. 781–788, 2002.
- MONTAGNER, C.C.; JARDIM, W.F. Spatial and Seasonal Variations of Pharmaceuticals and Endocrine Disruptors in the Atibaia River, São Paulo State (Brazil)". **J. Braz Chem. Soc.**, v.22, n.8 p 1452-1462, 2011.
- OLIVEIRA, T. F. DE. **Tratamento De Água Para Abastecimento Público Por Sistema De Separação Por Membrana De Ultrafiltração: Estudo De Caso Na Eta Alto Da Boa Vista (São Paulo, Sp)**. Dissertação (Mestrado em Engenharia Hidráulica e Sanitária) Escola Politécnica da Universidade de São Paulo, São Paulo/SP, 2010.
- PASCHOALATO, C. F. P. R.; DANTAS, A. D. B.; ROSA, I. D. A. R.; FALEIROS, R. J. R.; DI BERNARDO, L. Uso de carvão ativado para remoção dos herbicidas Diuron e Hexazinona de água. **Revista DAE**, v. 179, p. 34–41, 2009.
- PERES, M. R. **Remoção dos interferentes endócrinos 17 $\alpha$ -etinilestradiol, 17 $\alpha$ -estradiol e 4-nonilfenol por adsorção em carvão ativado em pó em água de abastecimento público**. [s.l.] Dissertação (Mestrado em Engenharia Civil) Universidade Estadual de Campinas, 2011.
- PIZA, A. V. T.; **Avaliação da Capacidade Adsorativa de Carvões Ativados para a Remoção de Diuron e Hexazinona**. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Ambiental) Universidade de Ribeirão Preto, 2008.
- PUTRA, E. K. et al. Performance of activated carbon and bentonite for adsorption of amoxicillin from wastewater: Mechanisms, isotherms and kinetics. **Water Research**, v. 43, n. 9, p. 2419–2430, 2009.

RICO, A. et al. Use of chemicals and biological products in Asian aquaculture and their potential environmental risks: A critical review. **Reviews in Aquaculture**, v. 4, n. 2, p. 75–93, 2012.

RIZZO, L. et al. Heterogenous photocatalytic degradation kinetics and detoxification of an urban wastewater treatment plant effluent contaminated with pharmaceuticals. **Water Research**, v. 43, n. 16, p. 4070–4078, 2009.

ROSA, I. D. A. **Remoção dos herbicidas Diuron e Hexazinona de água superficial no tratamento em ciclo completo com adsorção em carvão ativado granular.** [s.l.] Dissertação (Mestrado em Tecnologia Ambiental) Universidade da Associação de Ensino de Ribeirão Preto, 2008.

SILVA, J. A. A. **Remoção de amoxicilina de matrizes aquosas por adsorção em leito fixo com casca de amêndoa carbonizada.** [s.l.] Dissertação (Mestrado em Engenharia Química) Faculdade de Engenharia da Universidade do Porto, 2009.

SIM, W. J. et al. Occurrence and distribution of pharmaceuticals in wastewater from households, livestock farms, hospitals and phar-

maceutical manufactures. **Chemosphere**, v. 82, n. 2, p. 179–186, 2011.

TEIXEIRA, S. et al. Fast screening procedure for antibiotics in wastewaters by direct HPLC-DAD analysis. **Journal of Separation Science**, v. 31, n. 16–17, p. 2924–2931, 2008.

VERAS, D. F. **Remoção dos perturbadores endócrinos 17 $\beta$ -estradiol e p-nonilfenol por diferentes tipos de carvão ativado em pó (CAP) produzidos no Brasil - Avaliação em escala de bancada.** [s.l.] Dissertação (Mestrado em Engenharia Civil e Ambiental) Universidade de Brasília, 2006.

WEBB, S. et al. Indirect human exposure to pharmaceuticals via drinking water. **Toxicology Letters**, v. 142, n. 3, p. 157–167, 2003.

XU, H. et al. Photosensitized degradation of amoxicillin in natural organic matter isolate solutions. **Water Research**, v. 45, n. 2, p. 632–638, 2011.

ZUCCATO, E. et al. Source, occurrence and fate of antibiotics in the Italian aquatic environment. **Journal of Hazardous Materials**, v. 179, n. 1–3, p. 1042–1048, 2010.