

Tratamientos para la remoción de antibacteriales y agentes antimicrobiales presentes en aguas residuales*

Treatments for the removal of antibacterial and antimicrobial agents present in wastewater

Tratamentos para a remoção de antibacteriais e agentes antimicrobianos presentes em águas residuais

Diana Marcela Camacho Feria**
Diego Ivan Caviedes Rubio***
Daniel Ricardo Delgado****

Resumen

El abundante uso de sustancias emergentes microcontaminantes y su inadecuada disposición final, han centrado la atención de las autoridades ambientales en los efectos que sobre el ambiente, se le atribuyen a los antibacteriales y agentes antimicrobiales

vertidos en los cuerpos de agua. Actualmente, diversas investigaciones han centrado sus objetivos en determinar las eficiencias que distintos tratamientos físicos, químicos y biológicos presentan para remover diferentes productos farmacéuticos incluidos los anteriormente mencionados. Esta revisión incluye resultados de diversos tratamientos a nivel de microcosmo, mesocosmo y a escala real, en los que se incluyen las principales condiciones experimentales en que se desarrollan las mediciones.

Fecha de recepción del artículo: 10 de diciembre de 2016

Fecha de aceptación del artículo: 20 de Mayo de 2017

DOI: <http://dx.doi.org/10.22335/rct.v9i1.370>

* Artículo resultado del proyecto de investigación: "Tratamientos para la remoción de antibacteriales y agentes antimicrobiales presentes en aguas residuales"

** Ingeniera Industrial Universidad Cooperativa de Colombia. Grupo de Investigación GRIAUCC. Correo Electrónico: diana.camachoff@campusucc.edu.co Orcid: <http://orcid.org/0000-0002-1378-7311>

*** Estudiante de Doctorado en Agroindustria y Desarrollo Agrícola Sostenible. MSc en Ecología y Gestión de Ecosistemas Estratégicos. Docente Investigador Universidad Cooperativa de Colombia. Correo Electrónico: diego.caviedesr@campusucc.edu.co. Orcid: <http://orcid.org/0000-0002-6101-9114>

**** PhD en Ciencias Farmacéuticas. MSc en Ciencias Químicas. Docente Investigador Universidad Cooperativa de Colombia. Correo Electrónico: daniel.delgado@campusucc.edu.co Orcid: <http://orcid.org/0000-0002-4835-9739>. Scopus Author ID: 36443474300

Palabras clave: Sustancias Emergentes, Aguas Residuales, Condiciones Experimentales.

Abstract

The abundant use of emerging micro-pollutants and their inadequate final disposal have focused the attention of environmental authorities on

the effects on the environment of antibacterial and antimicrobial agents discharged into bodies of water. Currently, several researches have focused their objectives on determining the efficiencies that different physical, chemical and biological treatments present to remove different pharmaceutical products including those mentioned above. This review includes results of various treatments at the microcosm, mesocosm and real scale level, which include the main experimental conditions in which the measurements are developed.

Keywords: Emerging Substances, Wastewater, Experimental Conditions.

Abstracto

O uso abundante de micro-poluentes emergentes e sua disposição final inadequada concentraram a atenção das autoridades ambientais sobre os efeitos no ambiente de agentes antibacterianos e antimicrobianos descarregados em corpos de água. Atualmente, várias pesquisas concentraram seus objetivos na determinação das eficiências que diferentes tratamentos físicos, químicos e biológicos presentes para remover diferentes produtos farmacêuticos, incluindo os mencionados acima. Esta revisão inclui resultados de vários tratamentos no microcosmo, mesocosma e nível de escala real, que incluem as principais condições experimentais nas quais as medidas são desenvolvidas.

Palavras-chave: Substâncias emergentes, águas residuais, condições experimentais.

Introducción

Los antimicrobianos residuales presentes en ambientes acuosos generan un riesgo potencial para el medio ambiente y la supervivencia biológica, debido a su capacidad de afectar la estructura evolutiva de la comunidad bacteriana, fortaleciendo la resistencia bacteriana a estos productos (Gou y Chen, 2015. Gou et al, 2016), lo que les ha convertido en un nuevo problema medioambiental y en el centro de atención de la salud pública en cuanto a los microcontaminantes, debido al alto riesgo sobre

la salud humana (Luo et al, 2014. Huang et al, 2017).

Los antibióticos de consumo humano y los de uso veterinario ingresan a los sistemas hídricos mediante básicamente cinco fuentes, la primera y la que en mayor proporción descarga se refiere a los vertimientos procedentes de las aguas residuales domésticas y las fugas de los alcantarillados (Tran et al, 2014), en segundo lugar se encuentran las descargas de la industria pecuaria incluyendo la acuicultura y los animales domésticos (Lou et al, 2014); una tercera fuente hace referencia a la infiltración de las tierras agrícolas enriquecidas con estiércol y finalmente la escorrentía superficial y los flujos procedentes de rellenos sanitarios (Tran et al, 2016)

Los medicamentos modernos en su mayoría son compuestos orgánicos pequeños con un peso molecular inferior a 500 Da, que son moderadamente solubles en agua, así como lipófilos, con el objetivo de incrementar su biodisponibilidad y hacerlo biológicamente activo (Gabarrón et al, 2016). Evaluaciones recientes indican que hasta la fecha más de 30 productos farmacéuticos y compuestos orgánicos emergentes de preocupación se han detectado en aguas potables de todo el mundo (Al-Odaini et al, 2010; Kleywegt et al, 2011).

La detección de estos compuestos en el agua potable se ha atribuido a su presencia en la fuente de agua y a la incapacidad del proceso de tratamiento en el sistema de agua potable para reducirlos (Kleywegt et al, 2011; Silva et al, 2012; Peng et al, 2016; Vergel, Martínez Lozano, Zafra y Tristáncho, 2016). La lista Norman de sustancias emergentes detectadas en el medio ambiente, pero que actualmente no están incluidas en programas de vigilancia de rutina en la Unión Europea y cuyo destino, comportamiento químico y efectos eco toxicológicos aún no son bien conocidos, pero que son candidatos a incluirse en la normatividad dependiendo de la investigación relacionada con su comportamiento ambiental, para 2016 incluye 1036 sustancias de las cuales 62 son clasificados como antibióticos.

Debido a que la presencia de compuestos emergentes se ha demostrado en las aguas superficiales, es evidente que las eficiencias de remoción alcanzadas en las instalaciones y sistemas para la potabilización del agua deben ser evaluados (Jardim, et al, 2016). Concretamente, mientras que los estudios han demostrado que los procesos de tratamiento de agua convencionales son relativamente ineficaces en la eliminación de compuestos farmacéuticamente activos, disruptores endocrinos y compuestos relacionados, las tecnologías de tratamiento avanzadas tales como carbón activado, ósmosis inversa y oxidación avanzada puede ser viables para la eliminación de muchos productos farmacéuticos traza (Gabarrón et al, 2016).

Esta revisión expone 12 diferentes técnicas de remoción de antibióticos en las que se evalúa la eficiencia para la remoción de 45 antibióticos que corresponden al 55% de los antibióticos presentes en la lista Norman 2016.

Carbón activado

Los carbones activados (CA) son adsorbentes que contienen gran área superficial y una cantidad apreciable de sitios activos disponibles para la adsorción, es decir, que tienen una afinidad suficiente para retener ciertos contaminantes. Debido a estas características que se emplean comúnmente en diversos procesos para la eliminación de productos químicos indeseable. Sin embargo, la eficacia de eliminación depende de sus propiedades físicas, de concentración de adsorbato, pH, temperatura, y la presencia de otras especies en la solución química; (Martins, et al, 2015) así mismo, la textura porosa de los carbonos activados depende en gran medida el proceso de activación (físico o químico), la materia prima, la estructura inicial de los poros, rugosidad de la superficie, y las funcionalidades de la superficie (Jiménez et al, 2017). En la tabla 1 se registran las condiciones observadas en estudios en que se emplea el Carbón activado.

Tabla 1. Condiciones del Carbón Activado (CA) como técnica para la eliminación de antibióticos.

| Especie | pH | Ι mg/L | t _r (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|---|------------------|---------------------|--------------------|--------|---|----|--------------|------------------------|
| Tetraciclina | 8,7 | 500 600 | 24 | Amb | CA-NaOH producido a partir de cáscaras de nueces de macadamia | μ | 19,79 | Martins et al, 2015 |
| Sulfa-metoxazol | 5 | 10 | 19-57 | Amb | CA a base de madera de azufre dopado | μ | 90 | Vidal et al, 2015 |
| Amoxicilina | 6 | 10 a 100 | 0,05 a 1,6 | >50 | Preparación, Caracterización y potencial de adsorción del NH ₄ ⁺ CA inducido | μ | 99 | Moussavi et al, 2013 |
| Cefalexina | 2 | 20 | 8 | 45 | Nanopartículas de CA preparados a partir de la madera de la vid | μ | 74 - 88 | Pouretedal et al, 2014 |
| Tianfenicol, Florfenicol, Cloranfenicol | 7,1 +- 0,1 | 5 *10 ⁻⁶ | 2 | 25 | CA de fábrica "Shanxi Xinhua", tamaño de poro promedio de 3,03 nm, área superficial específica de 852,94 m ² /g y el tamaño de partícula de malla 200 (75μm) | μ | 98,4 - 99,4 | Zhang et al, 2016 |

t_r: Tiempo de tratamiento μ: microcosmos

Ι : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

m: mesocosmos G: Grande o Real.

Electrodiálisis

La electrodiálisis es un proceso de separación electroquímica con membranas de intercambio de cationes y aniones que emplea un potencial eléctrico como motor, que ha sido considerada como un método eficaz para la purificación de aguas residuales que contienen especies iónicas (Liu et al, 2016). El proceso de electrodiálisis es selectiva para la eliminación de especies iónicas a partir de especies no iónicas en un medio acuoso y ha demostrado ser un método robusto, eficaz y versátil para tales aplicaciones. Las ventajas de electrodiálisis sobre otros procesos

de separación incluyen bajo coste energético, versatilidad en términos de gran variedad de corrientes de alimentación que puede ser utilizado con el requisito mínimo de pre-tratamiento, coste más fácil y bajo de mantenimiento y mayor vida de la membrana (Khan et al, 2017). A diferencia de otras técnicas de separación, electrodiálisis no sufre de inconvenientes importantes, como la generación de grandes cantidades de residuos, el uso de disolventes peligrosos y tiempos de vida cortos de adsorbentes (Wang et al, 2016). En la tabla 2 se exponen las condiciones de dos estudios mediante este método.

Tabla 2. Electrodiálisis en diferentes estudios para remover antibióticos

| Especie | pH | [] mg/L | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|----------------------------|-----|-------------------------|--------|--|----|--------------|----------------------|
| Sulfametoxazol, ofloxacina | 7 | 0,00001 - 0,00003 | 25 | Electrodiálisis reversible | μ | > 85.7-100 | Gabarrón et al, 2016 |
| Penicilina | 6,7 | 696 | Amb | Electrodiálisis con membrana de ultrafiltración proceso (EDUF) | μ | 20,3 | Lu et al, 2016 |

t_r: Tiempo de tratamiento

μ: microcosmos

m: mesocosmos

G: Grande o Real.

[] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

Nanofiltración (NF)

En comparación con los procesos tradicionales de concentración, la técnica de nanofiltración tiene una alta eficiencia del tratamiento y de bajo consumo de energía. (Weng. Et al 2016). La nanofiltración es más bien un desarrollo reciente en los procesos de membrana que plantea sus propiedades entre la ósmosis inversa (RO) y ultrafiltración. A diferencia de las membranas de ósmosis inversa, donde se puede lograr la desmineralización completa, NF opera en la

región segura a presiones muy bajas y rechaza por debajo del 60% de los iones monovalentes de apertura la oportunidad de mantener el contenido mineral más favorable como se requiere en el tratamiento de aguas. Por lo tanto, no sufren de las desventajas de los sistemas de ósmosis inversa, tales como alta presión de funcionamiento y, a su vez alto consumo de energía y la pérdida significativa de agua (bajo flujo de permeado) (Jadhav et al, 2016). En la tabla 3 se observan cinco casos experimentales de la técnica Nanofiltración.

Tabla 3. Técnica de nanofiltración en diferentes estudios

| Especie | pH | [] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|--|------------|------------|---------|----------|--|----|--------------|--------------------|
| Tobramicina (TOB), clindamicina fosfato (CP) y cefalexina (CA) | 8,5 | 50 | 6 | 25 | Membrana de nanofiltración mediante auto-polimerización de la dopamina mejillón de inspiración | μ | 99, 94 y 93 | Cheng et al, 2016 |
| Cefalexina, oxitetraciclina | 7 | 29702 | 168 | 25 | Membranas de poliamida de nanofiltración de ion híbrido superhidrófilo y antibacterianos | μ | 98 y 99,2 | Weng et al, 2016 |
| norfloxacina (NOR), ofloxacina (OFL), roxitromicina (ROX) y la azitromicina (AZI) | 7 | 200 | 0,5 | 20 ± 0,5 | Nanofiltración (NF) en combinación con procesos de oxidación avanzada (POA) basada en ozono | μ | > 98 | Liu et al, 2014 |
| Sulfametoxazol | 7,6 ± 4,20 | > 4 | - | 25 | Nanofiltración alimentado por energía renovable y una planta de tratamiento convencional | m | 74 | Garcia et al, 2014 |
| Tetraciclina clorhidrato | 7 | 400 - 1200 | - | 25± 2 | Nanofiltración reforzada por oxidación electro-catalítica | μ | 98 | Xu et al, 2014 |

t_{Tr}: Tiempo de tratamiento μ: microcosmos

[] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

m: mesocosmos G: Grande o Real.

Intercambio iónico

Resina de intercambio iónico magnética (MIEX) es una resina de intercambio aniónico de base fuerte con óxido de hierro integrado en una matriz macroporosa, poliacrílico, y se utiliza típicamente con cloruro como ion intercambiable. En contraste con las resinas de intercambio de aniones tradicionales, la resina MIEX tiene un área superficial más grande

debido al tamaño muy pequeño perla de resina. El tamaño medio de diámetro de la resina es MIEX 150-180 micras (2-5 veces más pequeña que las resinas tradicionales), que pueden conducir a la absorción rápida de los contaminantes sobre la superficie de resina MIEX ([Hsu et al, 2010](#)). En la tabla 4 se presenta un panorama de la técnica empleada para restaurar efluentes contaminados.

Tabla 4. Condiciones experimentales de intercambio iónico a través de resinas

| Especie | pH | [] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|---|-----|--------------|---------|----------|--|----|----------------------------|-----------------------|
| sulfametoxazol (SMX), tetraciclina (TCN) y amoxicilina (AMX) | | | | | | | | |
| | 7 y | 20, 100, 500 | 0,5 | 25 ± 0,5 | Resina de intercambio iónico magnético | μ | 16, 60 y 43 | Wang et al, 2016 |
| sulfametoxazol (SMX) | 7 | 1 | 0,2 a 1 | 25 | Coagulación mejorada junto con intercambio de iones magnética | μ | 85 | Xu et al, 2016 |
| sulfametoxazol (SMX) | | | | | | | | |
| | 7,6 | 709 a 760 | 2 | 25 | Efecto de la resina cargada grupo (fuerte-base vs. ácido fuerte frente a no iónico) funcional, la porosidad (macroporoso vs. gel), y de la matriz química (poliestirénica vs. poliacrílico) mediante resinas de intercambio iónico | μ | 92 resinas macroporosa> 95 | Wang et al, 2016 |
| minociclina HCl (MNC), clortetraciclina-HCl (CTC) | | | | | | | | |
| | 7 | 10 | 360 | 25 | Intercambio de iones | m | > 90 | Choi et al, 2007 |
| sulfamethazine | | | | | | | | |
| | 7 | 200 - 400 | 1,66 | Amb | Intercambio iónico con resina aniónica fuerte Una línea de lecho fijo | μ | 100 | Fernández et al, 2014 |

t_{tr}: Tiempo de tratamiento

[] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

μ: microcosmos

m: mesocosmos

G: Grande o Real.

Fotocatálisis

La utilización de la energía solar para la degradación de contaminantes orgánicos y la disociación del agua para la producción de hidrógeno ha atraído una atención considerable; entre los diversos fotocatalizadores, TiO₂ es uno de los materiales más prometedores debido a su superior actividad fotocatalítica y estabilidad a largo plazo (Li et al, 2017). La mayoría de los

estudios de la degradación fotocatalítica usando TiO₂ se han llevado a cabo usando suspensiones de polvo fino TiO₂ en la solución contaminada. Existen varias limitaciones para el uso de polvo de TiO₂ en reactores fotocatalíticos, uno de ellos es el hecho de que el pequeño tamaño de partículas de Titania complica la filtración de suspensiones, haciendo reactores de suspensión fotocatalíticas poco práctico. Entonces, TiO₂ muestra algunos inconvenientes, entre ellos, su

forma de polvo lo que hace difícil la etapa de separación (Borges et al., 2016). En la tabla 5 se

registran las condiciones observadas en estudios en que se emplea el método Fotocatálisis.

Tabla 5. Fotocatálisis como método para la eliminación de antibióticos

| Especie | pH | [] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|--|-----|----------------|---------|--------|--|----|---|---------------------|
| tetraciclina (TC) | 5,9 | 46 | 1 | 25 | Fotocatálisis visible impulsada por la luz | μ | 63,3 | Wang et al, 2015 |
| tetraciclina (TC) y tilosina (TYL) | 7 | 100 | 2 | 25 | Fotocatálisis acoplado a un tratamiento biológico | μ | 39,8 y 11 | Yahiat et al, 2011 |
| oxacilina (OXA) | 5,6 | 20 | 0,5 | 25 | (foto-Fenton y TiO ₂ - photocatalysis) y cloruro de oxidación electroquímica mediada (con Ti / IrO ₂ ánodos) | μ | 80 | Serna et al, 2016 |
| Amoxicilina (AMX), ampicilina (AMP) y cloxacilina (CLX) | 5 y | 104, 105 y 103 | 5 | Amb | UV/2g/L TiO ₂ UV/100mg/L H ₂ O ₂ /1g/LTiO ₂ photocatalysis | μ | 58,7 (AMX), 52,4(AMP) y 60,2(CLX) 100 (AMX, AMP, CLX) | Elmolla et al, 2009 |
| doxycycline (DOX) | 7,4 | 50 | 4 | Amb | Degradación fotocatalítica | μ | 90 | Adamek et al, 2016 |

t_r: Tiempo de tratamiento μ: microcosmos

[] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

m: mesocosmos G: Grande o Real.

Nanotubos de carbono

Los nanotubos de carbono son reportados en la literatura como uno de los adsorbentes más prometedores aplicados en agua y tratamiento de aguas residuales. Sin embargo, dos limitaciones importantes limitan su aplicación a gran escala de tratamiento de agua: su hidrofobicidad y el costo de producción. (Ncibi,

et al, 2015.). En la actualidad, los nanotubos de carbono se utilizan ampliamente en los campos de nano-ingeniería como varios sensores físicos, químicos y mecánicos, por lo que se han presentado muchas investigaciones sobre los comportamientos dinámicos de nanotubos de carbono. (Chen, et al, 2017). En la tabla 6 se exponen las condiciones de cinco estudios mediante este método.

Tabla 6. Condiciones experimentales de nanotubo de carbón con otros complementos

| Especie | pH | I mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método complemento | y | TE | % Eficiencia | Ref. |
|---|------------------|-----------|------------|----------------|---|---|------|-----------------|-------------------------------|
| oxitetraciclina (OXI) y ciprofloxacina (CIP) | 3 -7 | 5-100 | 1 | 15-45 | Nanotubos de carbono individuales (SWCNT), nanotubos de doble pared (DWCNT) y de pared múltiple (MWCNT) | μ | | 44,6 | Ncibi et al, 2015 |
| tetraciclina | 6,3 ± 0,25 | 10 | 72 | 25 | Granular carbono comercial activado, nanotubos de carbono de pared múltiple, y dos átomos de carbono activado | μ | 96,1 | | Álvarez-Torrellas et al, 2015 |
| amoxicilina | 4,6 | 80 | 2 | 30, 40 y 50 | Nanotubos de Carbono de Pared múltiple | μ | 86,5 | | Mohammadi et al, 2015 |
| lincomicina, sulfametoxazol | 6 | 12 | 100 | 20 | Nanotubos de Carbono de Pared Simple (SWCNT) y de Paredes Múltiples (MWCNT) | μ | > 90 | | Kim et al, 2014 |
| Sulfapiridina (SPY) | 3-9 | 200 | 2 | Amb | Nanotubos de Carbono (CNT) en Columnas de lecho fijo | μ | 91 | | Tian et al, 2013 |

t_r: Tiempo de tratamiento

μ: microcosmos

m: mesocosmos

G: Grande o Real.

[] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

Bentonita

Debido al bajo costo, abundante disponibilidad y la naturaleza favorable al medio ambiente, la arcilla de bentonita cuyo componente principal es la montmorillonita ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 4\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$) (Devreese et al, 2012), es un soporte atractivo para todo tipo de fotocatalizadores. La bentonita tiene una carga negativa permanente debido a

la sustitución isomórfica de Al^{3+} para el Si^{4+} en el sitio tetraédrico y Mg^{2+} para Al^{3+} en el sitio octaédrico. La bentonita posee excelente superficie de intercambio de adsorción de iones para iones metálicos y contaminantes orgánicos dentro de su espacio de capa intermedia. (Gautam et al, 2017). En la tabla 7 se observan cinco casos experimentales del método Bentonita.

Tabla 7. Técnica con Bentonita para la eliminación de antibióticos

| Espece | pH | >[] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|-----------------------|-------|----------|---------|--------------|--|----|--------------|----------------------------------|
| amoxicilina | 2 a 7 | 300 | 8 | 30 | Rendimiento de Carbón Activado y bentonita | μ | 88 | Putra et al, 2009 |
| ampicilina | 5,6 | 126,4 | 0,58 | 30 , 40 y 50 | Modificado bentonita Ponorogo | μ | 59,3 - 100 | Rahardjo et al, 2011 |
| trimetoprim | 8,1 | 10 a 100 | 24 | Amb | Adsorción de fármacos sobre Bentonita doblado espectrofotométricamente en soluciones acuosas | μ | 74,46 | Caliskan et al, 2014 |
| ciprofloxacina | 4,5 | 50 a 500 | 0,5 | | Bentonita | μ | 99 | Genç et al, 2013 |
| ciprofloxacina | <5,5, | 20-40 | - | 22 | Bentonita, carbón Activado, zeolita, piedra pómez | μ | 87 - 91 | Genç et al, 2015 |

t_{Tr}: Tiempo de tratamiento μ: microcosmos

[] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

m: mesocosmos G: Grande o Real.

Ultrafiltración

La filtración por membrana es una forma efectiva para pequeñas moléculas y compuestos a nivel de trazas. De acuerdo con membrana de tamaño de poro y la fuerza de separación, filtración por membrana puede ser clasificado como microfiltración (MF), ultrafiltración (UF), nanofiltración (NF) y ósmosis inversa (RO) (Wu et

al, 2016). La tecnología de membrana ha ganado popularidad en el tratamiento de las aguas residuales a los antibióticos en los últimos años. Las membranas de ultrafiltración (UF) y ósmosis inversa proporcionan barreras eficaces para la retención de antimicrobiales y eliminación de grandes biopolímeros (Lu et al, 2016). En la tabla 8 se presenta la técnica empleada para restaurar efluentes contaminados

Tabla 8. Ultrafiltración en diferentes estudios para remover antibióticos.

| Espece | pH | >[] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|--|-----------|----------|---------|--------|---|----|--------------|---------------------|
| sulfaguanidina, sulfatiazol y sulfamerazina | 6-7 | 0,5 | - | 21-23 | Ultrafiltración celular (UF), ultrafiltración micelar mejorada (MEUF) | μ | 20-74 | Exall et al, 2013 |
| norfloxacina | 5-9 | 1-25 | - | 25 | Triple membrana de ultrafiltración celular (UF) | μ | 21-23 | Wu et al, 2016 |
| bencilpenicilina | 2 | 23,21 | - | 10 | Ultrafiltración (UF) | μ | 94-97 | Li et al, 2004 |
| oxitetraciclina | 2-5,4 | 1000 | - | 21-23 | Sistema de membrana incluida la ósmosis inversa (RO) y ultrafiltración (UF) | μ | 82.9 | Li et al, 2004 |
| ofloxacina | 6,5 a 8,5 | 0,000094 | - | 25 | Ultrafiltración (UF) que emerge, la ósmosis (RO), y m electrooxidación | m | 38.4 | Urtiaga et al, 2013 |

t_{Tr}: Tiempo de tratamiento μ: microcosmos m: mesocosmos G: Grande o Real.

[] : Concentracion de la especie TE: Tamaño de la estructura experimental

Electrocoagulación

Electro-coagulación es una tecnología electroquímica de tratamiento del agua contaminada a expensas de los ánodos de sacrificio a un potencial optimizado. En consecuencia, se forman precursores de coagulantes activos (Yazdanbakhsh et al, 2015). Es un proceso en el que los mecanismos de múltiples operan de manera sinérgica para eliminar los contaminantes en las aguas

residuales. Ofrece la posibilidad de oxidación anódica y en situ generación de adsorbentes activos (tales como hidróxidos de aluminio y de hierro). Al mismo tiempo, las reacciones catódicas también se producen, lo que lleva a la evolución de gas hidrógeno causando la flotación de los absorbentes, en lo que se denomina electro-flotación (Zaidi et al, 2015). En la Tabla 9 se exponen las condiciones de cinco estudios mediante este método.

Tabla 9. Condiciones experimentales para remover antibióticos mediante electrocoagulación.

| Espezie | pH | [] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|------------------------------------|-----------|---------|---------|--------|--|----|--------------|--------------------------|
| Tetraciclina | 3 a 5 | 50 | 0,25 | 20 ± 1 | Electrocoagulación | μ | 99 | Ouaissa et al, 2014 |
| | | 10 | | | | | | |
| Doxiciclina | 6 a 8 | 200 | 1,33 | 25 ± 3 | Electro-flotación junto electrocoagulación (EC-EF) | μ | 99 | S. Zaidi et al, 2016 |
| Hclato de doxiciclina (DCH) | 6,3 a 8,2 | 100 | 1,33 | 26 ± 3 | Electro-coagulación junto proceso de electro-flotación | μ | 98,5 a 99,4 | S. Zaidi et al, 2015 |
| clorhidrato de berberina | 4 a 10 | 1500 | 3,5 | 25 | Electro-coagulación con electrodo de Fe | μ | 72,8 a 90,1 | Ren et al, 2011 |
| | | 1,95 | 1 | 20 | Peróxido de hidrogeno -Electrocoagulación | μ | 95,6 | Yazdanbakhsh et al, 2015 |
| | | 10 | | | | | | |
| Azitromicina | | | | | | | | |

t_{tr}: Tiempo de tratamiento

μ: microcosmos

m: mesocosmos

G: Grande o Real.

[] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

Coagulación - floculación

La floculación es una técnica eficaz para la purificación de agua para uso doméstico/ industrial / potable. Los floculantes pueden ser tanto aditivos inorgánicos o compuestos macromoleculares. Los compuestos macromoleculares se prefieren sobre los aditivos inorgánicos por su masa molar, estructura química, densidad de carga y la naturaleza de sus grupos funcionales se puede modificar químicamente de acuerdo con los contaminantes específicos (Jia et al, 2016). Hay

una multitud de floculantes orgánicos, la mayoría de ellos son sintéticos, incluyendo poliacrilamidas, ácidos polí-acrílico, ácidos sínfónicos de poliestireno, y sus derivados. Estos floculantes tienen algunos problemas como la no biodegradabilidad y la liberación de monómeros residuales en agua, que tienen efectos adversos sobre la salud, lo que ha impulsado el uso de los floculantes ecológicos como materiales alternativos para floculantes convencionales en el tratamiento de agua y aguas residuales (Nourani, et al, 2016). En la tabla 10 se registran las condiciones observadas en estudios en que se emplea el método Coagulación-floculación.

Tabla 10. Remoción de antibióticos empleando técnicas de coagulación-floculación

| Especie | pH | [] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|---|-------|---------|---------|---------|--|----|--------------|--------------------|
| tetraciclina | 6-8 | 100 | 0,16 | 25 | Por coagulación y filtración de carbón activado granular | μ | 43 a 94 | Choi et al, 2008 |
| tetraciclina | 5-8,5 | 0,1 | 0,25 | 25 | Coagulación-sedimentación tensioactivo asistida | μ | 99 | Saitoh et al, 2014 |
| norfloxacín (NOR), sulfadiazina (SDZ) o tilosina (TYL) | 6-7 | 4-7,5 | 1 | 25 | Floculantes amino-modificado con ácido-quitosano | μ | 50 a 60 | Jia et al, 2016 |
| tetraciclina | 6-8 | 5000 | 0,5 | 25 | Anillos funcionalizado floculante a base de quitosano aromáticos | μ | 98,8 | Jia et al, 2016 |
| tetraciclina | 6-8 | 100 | 0,5 | 25 a 45 | Novedoso floculantes pH y de temperatura CND | μ | 50 | Yang et al, 2015 |

t_{Tr}: Tiempo de tratamiento μ: microcosmos m: mesocosmos G: Grande o Real.

[] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

Adsorción

La adsorción se considera como un método eficaz para eliminar los antibióticos a partir de agua. El carbón activado es el adsorbente más utilizado en el tratamiento del agua para la eliminación de microcontaminantes orgánicos. Sin embargo, también es conocido como un adsorbente de amplio espectro que presenta

menor selectividad para los antibióticos, y se necesita alto costo para regenerar el carbón activado. Por lo tanto, los adsorbentes más altamente selectivos y fácilmente renovables necesitan ser explorados para eliminar eficazmente los antibióticos de agua. (Wang et al, 2016). En la tabla 11 podemos ver algunos antibióticos que se han removidos por el método de adsorción.

Tabla 11. Remoción de antibióticos usando técnicas de Adsorción.

| Especie | pH | [] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|---|----------|---------------|---------|-----------------|---|----|--------------|--------------------------|
| sulfonamida, tetraciclina y antibióticos de quinolona | 6 | 100 | 3 | 25 | Oxidación lacasa mediada junto con la adsorción del suelo | μ | 70 al 100 | Ding et al, 2016 |
| tetraciclina, Sulfamethazine, norfloxacina, eritromicina y cloranfenicol | 6,45 | 10 a 100 | 24 | 25 ± 1 | Adsorción en suelo agrícola | μ | 79 | Pan et al, 2016 |
| sulfachloropyridazine (SCP) | 3,5 a 11 | 40 | 2 | 25 a 45 | Metales marco orgánico a base de cobre en la eliminación de adsorción de los antibióticos | μ | 90 | Azha et al, 2016 |
| sulfametoxazol (SMX), tetraciclina (TCN) y amoxicilina (AMX) | 3 a 11 | 20, 100 y 500 | 0,5 | 25 | Adsorción- resina intercambio iónico | μ | 20 al 90 | Tianyue Wang et al, 2016 |
| Tetraciclina | 4 a 11 | 8,33 a 333,3 | 1,5 | 4, 25, 35, y 45 | Adsorción-oxido de grafeno | μ | 71,4 | Gao et al, 2012 |

t_{Tr}: Tiempo de tratamiento

μ: microcosmos

m: mesocosmos

G: Grande o Real. [] : Concentración de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

Tabla 12. Humedales construidos como técnica para remover antibióticos

| Especie | pH | [] mg/L | tTr (h) | T (°C) | Método y complemento | TE | % Eficiencia | Ref. |
|---|--------------|-----------------------|---------|--------|---|----|---|---------------------|
| doxiciclina, sulfametoxazol | 7 a 7,5 | 0,0000180 | 240 | Amb | Optimización de los humedales construidos | G | 49 al 79, 59 al 80 | Valsero et al, 2011 |
| Ofloxacina, | 7,93 a 8,16. | 200 | 72 | Amb | Humedales construidos Optimización de los sustratos de humedales y la carga hidráulica | G | 17,9 a 98,5 | Chen et al, 2016 |
| claritromicina, leucomicina | 7,66 a 7,84 | 0,0000805 y 0,0000703 | 24 | Amb | Humedales construidos: Efecto de la configuración de flujo y de las especies de plantas | G | 75,8 a 98,6 | Chen et al, 2016 |
| Sulfamethazine (SMA) | 7,03 a 7,05 | 0,000100 | 7 | Amb | Humedales construidos | G | 85 | Choi et al, 2016 |
| monensin, salinomycin y la narasin | 6,8 a 8 | 100, 500 y 1000 | 42 | Amb | Humedales de agua libre | G | 26,77 y el 31,76; 28,86 y el 34,21; 29,73 y 36,01 | Hussain et al, 2012 |

t_{tr}: Tiempo de tratamiento μ: microcosmos m: mesocosmos G: Grande o Real.

[] : Concentracion de la especie

TE: Tamaño de la estructura experimental

Humedales construidos (HC)

La eliminación de los antibióticos de HC se puede lograr a través de la descomposición fisicoquímicas, fotodegradación, la adsorción por el suelo, las plantas de humedales, y la biodegradación (actividad microbiana). Algunos Productos farmacéuticos y productos de cuidado personal pueden ser removidos por la fotodegradación reportaron que la adsorción es una vía importante para la eliminación de antibióticos fluoroquinolonas en los suelos de los humedales. (Choi et al, 2016). Los humedales construidos son humedales artificiales que están diseñados y construidos para manipular los procesos naturales para el tratamiento de aguas residuales, y se pueden clasificar en flujo superficial y humedales de flujo subsuperficial (verticales u horizontales) de acuerdo a su paso la hidrología y el flujo (Chen et al, 2016). En la tabla 12 se observan cinco casos de estudio en humedales construidos

Discusión

En los últimos años, los productos farmacéuticos se han identificado como contaminantes emergentes que amenazan el ecosistema acuático y la salud humana. Los antibióticos han sido ampliamente utilizados en la medicina veterinaria y humana, pero estos compuestos los ponen en riesgo, así como afectan la biología del suelo y el equilibrio dinámico de la biota en las fuentes hídricas, incluyendo la presunta generación evolutiva de las "Superbacterias", denominadas así por su alta resistencia y persistencia en medios con altas concentraciones de antibacteriales.

Debido al efecto que tiene los antibióticos en el medio ambiente la comunidad científica se ha preocupado por desarrollar nuevas técnicas de bajo costo, pero de alta eficiencia para su remoción. Los antibióticos de mayor uso en seres humano y animales son el sulfametoxazol y la tetraciclina que se usa como aditivo

alimentario para aumentar la tasa de crecimiento en animales por lo tanto se liberan al medio sin ningún tratamiento previo. Los métodos que mayores eficacias en la remoción de antibióticos son el carbón activado con un rango del 19,79% al 99,4%; la nanofiltración con un rango del 74% al 99,2%; nanotubos de carbono que ha evidenciado valores de remoción entre el 44,6% al 96,1% y la electrocoagulación con eliminaciones entre el 72,8% al 99%. Sin embargo, es importante resaltar que los humedales construidos como técnica de remoción para otros grupos de contaminantes en las plantas de tratamiento municipales e industriales presentan una alta eficiencia de eliminación de antimicrobiales y antibacteriales, lo que permite reducir su flujo y acumulación en los ecosistemas acuáticos.

Referencias bibliográficas

- Adamek, E., Baran, W., & Sobczak, A. (2016). Photocatalytic degradation of veterinary antibiotics: Biodegradability and antimicrobial activity of intermediates. *Process Safety and Environmental Protection*, 103, Part A, 1-9. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.psep.2016.06.015>
- Al-Odaini, N., Zakaria, M., Yaziz, M., Surif, S. 2010. Multi-residue analytical method for human pharmaceuticals and synthetic hormones in river water and sewage effluents by solid-phase extraction and liquid chromatography-tandem mass spectrometry. *Journal of Chromatography A*, 1217. 6791-6806.
- Álvarez-Torrellas, S., Rodríguez, A., Ovejero, G., & García, J. (2016). Comparative adsorption performance of ibuprofen and tetracycline from aqueous solution by carbonaceous materials. *Chemical Engineering Journal*, 283, 936-947. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2015.08.023>
- Azhar, M. R., Abid, H. R., Sun, H., Periasamy, V., Tadé, M. O., & Wang, S. (2016). Excellent performance of copper based metal organic framework in adsorptive removal of toxic sulfonamide antibiotics from wastewater. *Journal of Colloid and Interface Science*, 478, 344-352. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcis.2016.06.032>
- Borges, M. E., Sierra, M., Cuevas, E., García, R. D., & Esparza, P. (2016). Photocatalysis
- Çalışkan Salih, E., & Mahramanlıoğlu, M. (2014). Equilibrium and kinetic adsorption of drugs on bentonite: Presence of surface active agents effect. *Applied Clay Science*, 101, 381-389. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.clay.2014.06.015>
- Çalışkan Salih, E., & Mahramanlıoğlu, M. (2014). Equilibrium and kinetic adsorption of drugs on bentonite: Presence of surface active agents effect. *Applied Clay Science*, 101, 381-389. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.clay.2014.06.015>
- Chen, J., Wei, X.-D., Liu, Y.-S., Ying, G.-G., Liu, S.-S., He, L.-Y., . . . Yang, Y.-Q. (2016). Removal of antibiotics and antibiotic resistance genes from domestic sewage by constructed wetlands: Optimization of wetland substrates and hydraulic loading. *Science of The Total Environment*, 565, 240-248. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.04.176>
- Chen, J., Ying, G.-G., Wei, X.-D., Liu, Y.-S., Liu, S.-S., Hu, L.-X., . . . Yang, Y.-Q. (2016). Removal of antibiotics and antibiotic resistance genes from domestic sewage by constructed wetlands: Effect of flow configuration and plant species. *Science of The Total Environment*, 571, 974-982. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.07.085>
- Chen, X., Fang, C. Q., & Wang, X. (2017). The influence of surface effect on vibration behaviors of carbon nanotubes under initial stress. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 85, 47-55. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.physe.2016.08.011>
- Cheng, X. Q., Zhang, C., Wang, Z. X., & Shao, L. (2016). Tailoring nanofiltration membrane performance for highly-efficient antibiotics removal by mussel-inspired modification. *Journal of Membrane Science*, 499, 326-334. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2015.10.060>
- Choi, K.-J., Kim, S.-G., & Kim, S.-H. (2008). Removal of antibiotics by coagulation and granular activated carbon filtration. *Journal of Hazardous Materials*, 157(1), 38-43. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2007.05.059>
- Choi, Y.-J., Kim, L.-H., & Zoh, K.-D. (2016). Removal characteristics and mechanism of antibiotics using constructed wetlands. *Ecological Engineering*, 91, 85-92. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ecoleng.2016.01.058>
- Devreese, M., Osselaere, A., Goossens, J., Vandebroucke, V., De Baere, S., De Backer, P., & Croubels, S. (2012). Interaction between tylosin and bentonite clay from a pharmacokinetic perspective. *The Veterinary Journal*, 194(3), 437-439. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.tvjl.2012.05.016>

- Ding, H., Wu, Y., Zou, B., Lou, Q., Zhang, W., Zhong, J., . . . Dai, G. (2016). Simultaneous removal and degradation characteristics of sulfonamide, tetracycline, and quinolone antibiotics by laccase-mediated oxidation coupled with soil adsorption. *Journal of Hazardous Materials*, 307, 350-358. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2015.12.062>
- Elmolla, E. S., & Chaudhuri, M. (2010). Photocatalytic degradation of amoxicillin, ampicillin and cloxacillin antibiotics in aqueous solution using UV/TiO₂ and UV/H₂O₂/TiO₂ photocatalysis. *Desalination*, 252(1-3), 46-52. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2009.11.003>
- Exall, K., Balakrishnan, V. K., Toito, J., & McFadyen, R. (2013). Impact of selected wastewater constituents on the removal of sulfonamide antibiotics via ultrafiltration and micellar enhanced ultrafiltration. *Science of The Total Environment*, 461-462, 371-376. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.04.057>
- Fernández, A. M. L., Rendueles, M., & Díaz, M. (2014). Sulfamethazine retention from water solutions by ion exchange with a strong anionic resin in fixed bed. *Separation Science and Technology* (Philadelphia), 49(9), 1366-1378. doi:10.1080/01496395.2013.879666
- Gabarrón, S., Gernjak, W., Valero, F., Barceló, A., Petrovic, M., & Rodríguez-Roda, I. (2016). Evaluation of emerging contaminants in a drinking water treatment plant using electrodialysis reversal technology. *Journal of Hazardous Materials*, 309, 192-201. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2016.02.015>
- Gao, Y., Li, Y., Zhang, L., Huang, H., Hu, J., Shah, S. M., & Su, X. (2012). Adsorption and removal of tetracycline antibiotics from aqueous solution by graphene oxide. *Journal of Colloid and Interface Science*, 368(1), 540-546. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcis.2011.11.015>
- García-Vaquero, N., Lee, E., Jiménez Castañeda, R., Cho, J., & López-Ramírez, J. A. (2014). Comparison of drinking water pollutant removal using a nanofiltration pilot plant powered by renewable energy and a conventional treatment facility. *Desalination*, 347, 94-102. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2014.05.036>
- Gautam, S., Shandilya, P., Priya, B., Singh, V. P., Raizada, P., Rai, R., . . . Singh, P. (2017). Superparamagnetic MnFe₂O₄ dispersed over graphitic carbon sand composite and bentonite as magnetically recoverable photocatalyst for antibiotic mineralization. *Separation and Purification Technology*, 172, 498-511. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.seppur.2016.09.006>
- Genç, N., & Dogan, E. C. (2015). Adsorption kinetics of the antibiotic ciprofloxacin on bentonite, activated carbon, zeolite, and pumice. *Desalination and Water Treatment*, 53(3), 785-793. doi:10.1080/19443994.2013.842504
- Genç, N., Dogan, E. C., & Yurtsever, M. (2013). Bentonite for ciprofloxacin removal from aqueous solution. *Water Science and Technology*, 68(4), 848-855. doi:10.2166/wst.2013.313
- Guo, R. Chen, J. 2015. Application of alga-activated sludge combined system (AASCS) as a novel treatment to remove cephalosporins, *Chemical Engineering Journal*, 260, 15, 550-556, ISSN 1385-8947, <http://dx.doi.org/10.1016/cej.2014.09.053>.
- Guo, W. Zheng, H. Li, S. Du, J. Feng, X. Yin, R. Wu, Q. Ren, N. Chang, J. 2016. Removal of cephalosporin antibiotics 7-ACA from wastewater during the cultivation of lipid-accumulating microalgae, *Bioresource Technology*, 221, 284-290, ISSN 0960-8524, <http://dx.doi.org/10.1016/j.biortech.2016.09.036>.
- Hijosa-Valsero, M., Fink, G., Schlüsener, M. P., Sidrach-Cardona, R., Martín-Villacorta, J., Ternes, T., & Bécaries, E. (2011). Removal of antibiotics from urban wastewater by constructed wetland optimization. *Chemosphere*, 83(5), 713-719. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.chemosphere.2011.02.004>
- Hsu, S., & Singer, P. C. (2010). Removal of bromide and natural organic matter by anion exchange. *Water Research*, 44(7), 2133-2140. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2009.12.027>
- Huang, X. Zheng, J. Liu, C. Liu, L. Liu, Y. Fan, H. 2017. Removal of antibiotics and resistance genes from swine wastewater using vertical flow constructed wetlands: Effect of hydraulic flow direction and substrate type, *Chemical Engineering Journal*, 308, 15, 692-699, ISSN 1385-8947, <http://dx.doi.org/10.1016/cej.2016.09.110>.
- Hussain, S. A., Prasher, S. O., & Patel, R. M. (2012). Removal of ionophoric antibiotics in free water surface constructed wetlands. *Ecological Engineering*, 41, 13-21. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ecoleng.2011.12.006>
- Jadhav, S. V., Marathe, K. V., & Rathod, V. K. (2016). A pilot scale concurrent removal of fluoride, arsenic, sulfate and nitrate by using nanofiltration: Competing ion interaction and modelling approach. *Journal of Water Process Engineering*, 13, 153-167. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jwpe.2016.04.008>

- Jardim, W., Montagner, C., Pescara, I., Umbuzeiro, G., Bergamasco, A., Eldridge, M., Sodré, F. 2012. An integrated approach to evaluate emerging contaminants in drinking water, *Separation and Purification Technology*, 84, 9 3-8, ISSN 1383-5866, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.seppur.2011.06.020>.
- Jia, S., Yang, Z., Ren, K., Tian, Z., Dong, C., Ma, R., . . . Yang, W. (2016). Removal of antibiotics from water in the coexistence of suspended particles and natural organic matters using amino-acid-modified-chitosan flocculants: A combined experimental and theoretical study. *Journal of Hazardous Materials*, 317, 593-601. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2016.06.024>
- Jia, S., Yang, Z., Yang, W., Zhang, T., Zhang, S., Yang, X., . . . Wang, Y. (2016). Removal of Cu(II) and tetracycline using an aromatic rings-functionalized chitosan-based flocculant: Enhanced interaction between the flocculant and the antibiotic. *Chemical Engineering Journal*, 283, 495-503. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2015.08.003>
- Jiménez, V., Sánchez, P., & Romero, A. (2017). 2 - Materials for activated carbon fiber synthesis A2 - Chen, Jonathan Y Activated Carbon Fiber and Textiles (pp. 21-38). Oxford: Woodhead Publishing.
- Khan, M. I., Zheng, C., Mondal, A. N., Hossain, M. M., Wu, B., Emmanuel, K., . . . Xu, T. (2017). Preparation of anion exchange membranes from BPPO and dimethylethanolamine for electrodialysis. *Desalination*, 402, 10-18. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2016.09.019>
- Kim, H., Hwang, Y. S., & Sharma, V. K. (2014). Adsorption of antibiotics and iopromide onto single-walled and multi-walled carbon nanotubes. *Chemical Engineering Journal*, 255, 23-27. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2014.06.035>
- Kleywegt, S., Pileggi, V., Yang, P., Hao, C., Zhao, X., Thach, S., Cheung, P., & Whitehead, B. 2011. Pharmaceuticals, hormones and bisphenol A in untreated source and finished drinking water in Ontario, Canada — Occurrence and treatment efficiency. *Science of the Total Environment* 409, 1481–1488
- Li, J., Xu, X., Liu, X., Qin, W., Wang, M., & Pan, L. (2017). Metal-organic frameworks derived cake-like anatase/rutile mixed phase TiO₂ for highly efficient photocatalysis. *Journal of Alloys and Compounds*, 690, 640-646. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jallcom.2016.08.176>
- Li, S. Z., Li, X. Y., Cui, Z. F., & Wang, D. Z. (2004). Application of ultrafiltration to improve the extraction of antibiotics. *Separation and Purification Technology*, 34(1-3), 115-123. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1383-5866\(03\)00185-0](http://dx.doi.org/10.1016/S1383-5866(03)00185-0)
- Li, S.-z., Li, X.-y., & Wang, D.-z. (2004). Membrane (RO-Uf) filtration for antibiotic wastewater treatment and recovery of antibiotics. *Separation and Purification Technology*, 34(1-3), 109-114. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1383-5866\(03\)00184-9](http://dx.doi.org/10.1016/S1383-5866(03)00184-9)
- Liu, J., Wu, S., Lu, Y., Liu, Q., Jiao, Q., Wang, X., & Zhang, H. (2016). An integrated electrodialysis-biocatalysis-spray-drying process for efficient recycling of keratin acid hydrolysis industrial wastewater. *Chemical Engineering Journal*, 302, 146-154. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2016.05.046>
- Liu, P., Zhang, H., Feng, Y., Yang, F., & Zhang, J. (2014). Removal of trace antibiotics from wastewater: A systematic study of nanofiltration combined with ozone-based advanced oxidation processes. *Chemical Engineering Journal*, 240, 211-220. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2013.11.057>
- Lu, H., Zou, W., Chai, P., Wang, J., & Bazinet, L. (2016). Feasibility of antibiotic and sulfate ions separation from wastewater using electrodialysis with ultrafiltration membrane. *Journal of Cleaner Production*, 112, Part 4, 3097-3105. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jclepro.2015.09.091>
- Luo, Y., Guo, W., Ngo, H. H., Nghiem, L. D., Hai, F. I., Zhang, J., . . . Wang, X. C. (2014). A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. *Science of the Total Environment*, 473-474, 619-641. doi: 10.1016/j.scitotenv.2013.12.065
- Martins, A. C., Pezoti, O., Cazetta, A. L., Bedin, K. C., Yamazaki, D. A. S., Bandoch, G. F. G., . . . Almeida, V. C. (2015). Removal of tetracycline by NaOH-activated carbon produced from macadamia nut shells: Kinetic and equilibrium studies. *Chemical Engineering Journal*, 260, 291-299. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2014.09.017>
- Mohammadi, A., Kazemipour, M., Ranjbar, H., Walker, R. B., & Ansari, M. (2015). Amoxicillin Removal from Aqueous Media Using Multi-Walled Carbon Nanotubes. *Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures*, 23(2), 165-169. doi: 10.1080/1536383X.2013.866944
- Moussavi, G., Alahabadi, A., Yaghmaeian, K., & Eskandari, M. (2013). Preparation, characterization and adsorption potential of the NH₄Cl-induced activated

- carbon for the removal of amoxicillin antibiotic from water. *Chemical Engineering Journal*, 217, 119-128. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2012.11.069>
- Ncibi, M. C., & Sillanpää, M. (2015). Optimized removal of antibiotic drugs from aqueous solutions using single, double and multi-walled carbon nanotubes. *Journal of Hazardous Materials*, 298, 102-110. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2015.05.025>
- Nourani, M., Baghdadi, M., Javan, M., & Bidhendi, G. N. (2016). Production of a biodegradable flocculant from cotton and evaluation of its performance in coagulation-flocculation of kaolin clay suspension: Optimization through response surface methodology (RSM). *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 4(2), 1996-2003. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jece.2016.03.028>
- Ouaissa, Y. A., Chabani, M., Amrane, A., & Bensmaili, A. (2014). Removal of tetracycline by electrocoagulation: Kinetic and isotherm modeling through adsorption. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2(1), 177-184. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jece.2013.12.009>
- Pan, M., & Chu, L. M. (2016). Adsorption and degradation of five selected antibiotics in agricultural soil. *Science of The Total Environment*, 545-546, 48-56. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.12.040>
- Peng, Y. Hall, S. Gautam, L. 2016. Drugs of abuse in drinking water - a review of current detection methods, occurrence, elimination and health risks, TrAC Trends in Analytical Chemistry, Available online 28 September 2016, ISSN 0165-9936, <http://dx.doi.org/10.1016/j.trac.2016.09.011>.
- Pouretedal, H. R., & Sadegh, N. (2014). Effective removal of Amoxicillin, Cephalexin, Tetracycline and Penicillin G from aqueous solutions using activated carbon nanoparticles prepared from vine wood. *Journal of Water Process Engineering*, 1, 64-73. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jwpe.2014.03.006>
- Putra, E. K., Pranowo, R., Sunarso, J., Indraswati, N., & Ismadji, S. (2009). Performance of activated carbon and bentonite for adsorption of amoxicillin from wastewater: Mechanisms, isotherms and kinetics. *Water Research*, 43(9), 2419-2430. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2009.02.039>
- Rahardjo, A. K., Susanto, M. J. J., Kurniawan, A., Indraswati, N., & Ismadji, S. (2011). Modified Ponorogo bentonite for the removal of ampicillin from wastewater. *Journal of Hazardous Materials*, 190(1-3), 1001-1008. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2011.04.052>
- Ren, M., Song, Y., Xiao, S., Zeng, P., & Peng, J. (2011). Treatment of berberine hydrochloride wastewater by using pulse electro-coagulation process with Fe electrode. *Chemical Engineering Journal*, 169(1-3), 84-90. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2011.02.056>
- S. Gabarrón, W. Gernjak, F. Valero, A. Barceló, M. Petrovic, I. Rodríguez. 2016. Evaluation of emerging contaminants in a drinking water treatment plant using electrodialysis reversal technology, *Journal of Hazardous Materials*, Volume 309, (15) 192-201, ISSN 0304-3894, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2016.02.015>.
- Saitoh, T., Shibata, K., & Hiraide, M. (2014). Rapid removal and photodegradation of tetracycline in water by surfactant-assisted coagulation-sedimentation method. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2(3), 1852-1858. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jece.2014.08.005>
- Serna-Galvis, E. A., Silva-Agredo, J., Giraldo, A. L., Flórez-Acosta, O. A., & Torres-Palma, R. A. (2016). Comparative study of the effect of pharmaceutical additives on the elimination of antibiotic activity during the treatment of oxacillin in water by the photo-Fenton, TiO₂-photocatalysis and electrochemical processes. *Science of The Total Environment*, 541, 1431-1438. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.10.029>
- Silva, H. Gonzaga, G. y Camargo, A. Monteiro, F. 2006. Efficiency of aquatic macrophytes to treat Nile tilapia pond effluents. *Scientia Agricola*, 63(5), 433-438
- tetracycline classes of antibiotic. *Science of The Total Environment*, 387(1-3), 247-256. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.07.024>
- Tian, Y., Gao, B., Morales, V. L., Chen, H., Wang, Y., & Li, H. (2013). Removal of sulfamethoxazole and sulfapyridine by carbon nanotubes in fixed-bed columns. *Chemosphere*, 90(10), 2597-2605. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.chemosphere.2012.11.010>
- Tran, N. H., Li, J., Hu, J., & Ong, S. L. (2014). Occurrence and suitability of pharmaceuticals and personal care products as molecular markers for raw wastewater contamination in surface water and groundwater. *Environmental Science and Pollution Research*, 21(6), 4727-4740. doi: 10.1007/s11356-013-2428-9
- Tran, Ngoc Han, Chen, Hongjie, Reinhard, Martin, Mao, Feijian, & Gin, Karina Yew-Hoong. (2016). Occurrence

and removal of multiple classes of antibiotics and antimicrobial agents in biological wastewater treatment processes. *Water Research*, 104, 461-472. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2016.08.040>

Urtiaga, A. M., Pérez, G., Ibáñez, R., & Ortiz, I. (2013). Removal of pharmaceuticals from a WWTP secondary effluent by ultrafiltration/reverse osmosis followed by electrochemical oxidation of the RO concentrate. *Desalination*, 331, 26-34. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2013.10.010>

Vergel Ortega, M., Martínez Lozano, J., & Zafra Tristáncho, S. (2017). Cultivo de cebolla y su comportamiento en la provincia de Ocaña. *Revista Colombiana de Ciencias Hortícolas*, 10(2), 333-344. doi:<https://doi.org/10.17584/rcch.2016v10i2.5070>

Vidal, C. B., Seredych, M., Rodríguez-Castellón, E., Nascimento, R. F., & Bandosz, T. J. (2015). Effect of nanoporous carbon surface chemistry on the removal of endocrine disruptors from water phase. *Journal of Colloid and Interface Science*, 449, 180-191. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcis.2014.11.034>

Wang, H., Yuan, X., Wu, Y., Zeng, G., Dong, H., Chen, X., . . . Peng, L. (2016). In situ synthesis of In₂S₃@MIL-125(Ti) core-shell microparticle for the removal of tetracycline from wastewater by integrated adsorption and visible-light-driven photocatalysis. *Applied Catalysis B: Environmental*, 186, 19-29. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apcatb.2015.12.041>

Wang, T., Pan, X., Ben, W., Wang, J., Hou, P., & Qiang, Z. Adsorptive removal of antibiotics from water using magnetic ion exchange resin. *Journal of Environmental Sciences*. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jes.2016.03.017>

Wang, W., Li, X., Yuan, S., Sun, J., & Zheng, S. (2016). Effect of resin charged functional group, porosity, and chemical matrix on the long-term pharmaceutical removal mechanism by conventional ion exchange resins. *Chemosphere*, 160, 71-79. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.chemosphere.2016.06.073>

Wang, Y., Zhang, Z., Jiang, C., & Xu, T. (2016). Recovery of gamma-aminobutyric acid (GABA) from reaction mixtures containing salt by electrodialysis. *Separation and Purification Technology*, 170, 353-359. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.seppur.2016.07.002>

Weng, X.-D., Ji, Y.-L., Ma, R., Zhao, F.-Y., An, Q.-F., & Gao, C.-J. (2016). Superhydrophilic and antibacterial zwitterionic polyamide nanofiltration membranes for antibiotics separation. *Journal of Membrane Science*,

510, 122-130. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.memsci.2016.02.070>

with solar energy: Sunlight-responsive photocatalyst based on TiO₂ loaded on a natural

Wu, H., Niu, X., Yang, J., Wang, C., & Lu, M. (2016). Retentions of bisphenol A and norfloxacin by three different ultrafiltration membranes in regard to drinking water treatment. *Chemical Engineering Journal*, 294, 410-416. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cej.2016.02.117>

Xu, J., Xu, W., Wang, D., Sang, G., & Yang, X. (2016). Evaluation of enhanced coagulation coupled with magnetic ion exchange (MIEX) in natural organic matter and sulfamethoxazole removals: The role of Al-based coagulant characteristic. *Separation and Purification Technology*, 167, 70-78. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.seppur.2016.05.007>

Xu, L., Sun, Y., Du, L., & Zhang, J. (2014). Removal of tetracycline hydrochloride from wastewater by nanofiltration enhanced by electro-catalytic oxidation. *Desalination*, 352, 58-65. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.desal.2014.08.013>

Yahiat, S., Fourcade, F., Brosillon, S., & Amrane, A. (2011). Removal of antibiotics by an integrated process coupling photocatalysis and biological treatment – Case of tetracycline and tylosin. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 65(7), 997-1003. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ibiod.2011.07.009>

Yang, Z., Jia, S., Zhuo, N., Yang, W., & Wang, Y. (2015). Flocculation of copper(II) and tetracycline from water using a novel pH- and temperature-responsive flocculants. *Chemosphere*, 141, 112-119. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.chemosphere.2015.06.050>

Yazdanbakhsh, A. R., Massoudinegad, M. R., Elias, S., & Mohammadi, A. S. (2015). The influence of operational parameters on reduce of azithromycin COD from wastewater using the peroxy -electrocoagulation process. *Journal of Water Process Engineering*, 6, 51-57. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jwpe.2015.03.005>

Zaidi, S., Chaabane, T., Sivasankar, V., Darchen, A., Maachi, R., & Msagati, T. A. M. Electro-coagulation coupled electro-flotation process: Feasible choice in doxycycline removal from pharmaceutical effluents. *Arabian Journal of Chemistry*. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.arabjc.2015.06.009>

Zaidi, S., Chaabane, T., Sivasankar, V., Darchen, A., Maachi, R., Msagati, T. A. M., & Prabhakaran, M. (2016). Performance efficiency of electro-coagulation coupled

electro-flotation process (EC-EF) versus adsorption process in doxycycline removal from aqueous solutions. *Process Safety and Environmental Protection*, 102, 450-461. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.psep.2016.04.013>

Zaidi, S., Chaabane, T., Sivasankar, V., Darchen, A., Maachi, R., & Msagati, T. A. M. Electro-coagulation coupled electro-flotation process: Feasible choice in doxycycline removal from pharmaceutical effluents. *Arabian Journal of Chemistry*. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.arabjc.2015.06.009>

Zhang, X., Guo, W., Ngo, H. H., Wen, H., Li, N., & Wu, W. (2016). Performance evaluation of powdered activated carbon for removing 28 types of antibiotics from water. *Journal of Environmental Management*, 172, 193-200. doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvman.2016.02.038>