

04-002

TREATMENT OF DRUGS PRESENT IN WATER USING POWDERED ACTIVATED CARBON AND GRANULES

Aldeguer Esquerdo, Alejandro ⁽¹⁾; *Varo Galvañ, Pedro* ⁽¹⁾; *Sentana Gadea, Irene* ⁽¹⁾;
Prats Rico, Daniel ⁽¹⁾

⁽¹⁾ Universidad de Alicante

The present research studies the reduction of emerging organic pollutants carbamazepine and diclofenac through the use of powdered active carbon (PAC) and granular (GAC). The tests to determine the adsorption capacity of the coal were carried out using the ASTM method D3860-98 (2014), concentrations of the contaminant between 0.7 and 1.9 mg / L were studied and the dose of the active carbon was varied between 4 and 20 mg / L. The temperature (25 ± 1 °C) and stirring (300 ± 10 rpm) during experimentation. An HPLC device with a UV detector was used for the analysis. In all cases and for the same dose of coal, in the treatment with PAC, better elimination yields are obtained than with GAC. The results obtained for the highest concentrations of pollutants show that, for a dose of PAC of 20 mg / L, carbamazepine shows yields of 75% reduction, while diclofenac a reduction of 39%. For that same concentration of contaminant but using GAC, the elimination yields were 19% and 24%, for carbamazepine and diclofenac respectively.

Keywords: carbamazepine; diclofenac; powdered active carbon; granulated active carbon; emerging organic pollutants

TRATAMIENTO DE FÁRMACOS PRESENTES EN AGUAS MEDIANTE CARBÓN ACTIVADO EN POLVO Y GRANULADO

La presente investigación estudia la reducción de contaminantes orgánicos emergentes carbamazepina y diclofenaco mediante el uso de carbón activo en polvo (PAC) y granular (GAC). Los ensayos para determinar la capacidad de adsorción del carbón se realizaron mediante el método ASTM D3860-98 (2014), se estudiaron concentraciones del contaminante entre 0,7 y 1,9 mg/L y se varió la dosis del carbón activo entre 4 y 20 mg/L. Se mantuvo constante la temperatura (25 ± 1 °C) y la agitación (300 ± 10 rpm) durante la experimentación. Para el análisis se utilizó un equipo HPLC con un detector UV. En todos los casos y para la misma dosis de carbón, en el tratamiento con PAC se obtiene mejores rendimientos de eliminación que con GAC. Los resultados obtenidos para las concentraciones más altas de los contaminantes muestran que, para una dosis de PAC de 20 mg/L la carbamazepina, presenta rendimientos de reducción del 75%, mientras que, el diclofenaco una reducción del 39%. Para esa misma concentración de contaminante pero utilizando GAC, los rendimientos de eliminación fueron de 19% y 24%, para carbamazepina y diclofenaco respectivamente.

Palabras clave: carbamazepina; diclofenaco; carbón activo en polvo; carbón activo granulado; contaminantes orgánicos emergentes

Correspondencia: Pedro Varo Galvañ pedro.varo@ua.es



©2020 by the authors. Licensee AEIPRO, Spain. This article is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivatives 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

1. Introducción

Los contaminantes orgánicos emergentes (COEs) hacen referencia a aquellos compuestos cuya presencia en el medio ambiente pueden tener un gran impacto de contaminación. Son generalmente poco conocidos y sin estar regulados, principalmente por sus efectos y propiedades que se les caracterizan (Wille et al, 2011)

Las investigaciones sobre el comportamiento y efectos de los COEs son muy numerosas e interesan a múltiples grupos de investigación en todo el mundo y a los principales organismos dedicados a la protección de la salud pública y medioambiental, como la Organización Mundial de la Salud (OMS), el Programa de Naciones Unidas para el Medio Ambiente (PNUMA), la Agencia de Protección medioambiental de Estados Unidos (USEPA), el Programa Internacional de Seguridad Química (IPCS) o en el caso de la Unión Europea (UE) han sido incluidos en la lista de sustancias prioritarias en el agua regulando su concentración máxima admisible en aguas continentales (Directiva 2013/39/UE). Por otra parte, para otros compuestos como los pesticidas, el descubrimiento de que algunos metabolitos de su degradación pueden ser igual o más tóxicos que los compuestos originales, ha incrementado la preocupación por los mismos (Kolpin, Thurman & Linhart, 2000, 2001) (Kolpin, Schnoebelen & Thurman, 2004). Lo mismo ocurre con los metabolitos y productos de transformación de muchos fármacos (De Jongh et al., 2012, La Farre et al., 2008).

La Agenda 2030 y sus Objetivos de Desarrollo Sostenible (ODS) del Gobierno de España, en el capítulo 6 (Garantizar la disponibilidad y la gestión sostenible del agua y el saneamiento para todos), marca como objetivo la mejora de la eficiencia de uso y calidad de los recursos hídricos desde el punto de vista sanitario y ambiental, con especial atención a los contaminantes emergentes, además de eliminar la contaminación y gestionar correctamente los lodos generados.

Las concentraciones en que se encuentran los COEs son del orden de $\mu\text{g L}^{-1}$ o ng L^{-1} . Estas sustancias provocan cada vez mayor alarma social derivada de su presencia en aguas continentales (Murray, Thomas & Bodour, 2010), incluyendo las subterráneas (Jurado et al, 2012), donde provocan distintos efectos negativos (Bolong et al, 2009). Además del tratamiento de las aguas residuales, debido a que algunos COEs son sólo parcialmente degradados/eliminados en los procesos biológicos anaerobios y aerobios, se deben contemplar tratamientos terciarios adicionales si se desea eliminar los compuestos más refractarios, como por ejemplo en la investigación de Margot et al (2013), donde la concentración de carbamazepina y diclofenaco en el efluente de la EDAR era de 1197 y 482 ng L^{-1} , respectivamente y mediante el tratamiento convencional alcanzaba reducciones inferiores al 9% en ambos fármacos. Por lo tanto, existe una creciente necesidad de tecnologías avanzadas de tratamiento del agua que puedan reducir del agua los productos químicos de interés emergente.

El carbón activado (AC) es empleado comúnmente para controlar el sabor y el olor del agua potable también es un excelente adsorbente que ofrece una gran capacidad dependiendo de su superficie para adsorber y retener diversos tipos de COEs tanto productos farmacéuticos como plaguicidas en el agua (Zahoor, 2013; Bonvin et al, 2016). Esta técnica tiene también un gran potencial para el tratamiento de efluentes secundarios y ha demostrado ser más eficaz para eliminar los antibióticos en comparación con el proceso de coagulación-floculación (Choi, Kim & Kim, 2008).

El objeto de esta investigación aborda uno de los retos técnicos más trascendentes para el buen estado ecológico de las aguas continentales, el estudio de la reducción de dos COEs refractarios presentes en las aguas, (carbamazepina y diclofenaco). Serán tratados con AC, en concreto, con carbón activado en polvo (PAC) y carbón activado granulado (GAC). En la

presente investigación se ha ensayado el tratamiento propuesto únicamente en agua pura, si bien, en base a los resultados obtenidos, podría aplicarse a aguas residuales reales. Varios autores (Mailler et al, 2016; Altmann et al, 2014; Löwenberg et al, 2014; Margot et al, 2013) han estudiado tratamientos similares en aguas residuales reales para diclofenaco, carbamazepina, sulfamethoxazole, benzotriazole.

1.1 Fármacos

Los compuestos farmacéuticos son moléculas complejas con diferentes propiedades físico-químicas y biológicas. La mayoría de ellos son compuestos orgánicos de masa molecular por encima de 500 daltons (Lipinski et al, 1997), aunque muchas de ellas son moléculas pequeñas que en general se caracterizan por su elevada polaridad (Kümmerer, 2009).

El 5H-dibenzo-[b,f]-azepina-5-carboxamida, carbamazepina, se emplea como fármaco anticonvulsivo es un compuesto aromático heterocíclico nitrogenado en cuya estructura presenta una subunidad de urea. Está estructuralmente relacionada con los antidepresivos tricíclicos, conteniendo un anillo del tipo dibenzoazepina. El ácido 2-(2-[(2,6-diclorofenil)amino]fenil)acético, diclofenaco, pertenece al grupo de los antiinflamatorios no esteroideos (AINE's) que se utiliza como analgésico y antiinflamatorio en multitud de patologías, como el tratamiento de la artritis reumatoide. Ambos fármacos son de uso generalizado.

Diversos autores han estudiado la eficiencia, tanto del PAC como el GAC, en la eliminación de COEs, dependiendo ésta de diversos factores de operación (dosis de carbón activado, tiempo de contacto y propiedades de los contaminantes) (Li, Wang & Shen, 2014; Gardi, Nir & Mishael, 2015; Stoquart et al 2016). Por ejemplo, el efluente de una Estación depuradora de aguas residuales (EDAR), estudió un amplio rango de COEs presentes en ella, alcanzado valores de reducción de PAC como en GAC superiores al 70%, entre ellos la carbamazepina alcanzando un 80-94% y el diclofenaco un 71-97% (Mailler et al, 2016).

1.2 Carbones activados

Los AC son materiales orgánicos porosos y han abarcado numerosas áreas de investigación debido a las aplicaciones que se pueden lograr con ellos como biodegradar y oxidar las materias orgánicas, para eliminar o absorber algunos microcontaminantes así como para mejorar el sabor, el olor y el color del agua durante el proceso de filtración como para el tratamiento del agua (Stavropoulos et al, 2008; Yi et al, 2009; Seo et al, 2009).

Existen diferentes tipos de AC debido a su composición, todos ellos presentan espacio accesible en el interior de su estructura, es decir, la capacidad de agregación de dichas partículas pequeñas en las partículas del sólido, definiéndose como intra-partículas o porosidad textural. El diámetro de los poros texturales se encuentra directamente relacionados con el tamaño de los granos formando estos poros.

Según la Unión Internacional de Química Pura y Aplicada (IUPAC), los clasifica por el tamaño del poro (Sing et al, 1985). Cuando tienen un diámetro de poro, aproximadamente de 2 nm son microporos; cuando el rango se encuentra entre 2 a 50 nm son mesoporos; por último, cuando el diámetro del poro está en un rango mayor a 50 nm son macroporos. En los microporos de AC se produce la adsorción del compuesto.

Para este estudio se ha utilizado como PAC el Pulsorb PWX HA y como GAC el Calgon Filtrasorb 400, ambos están hechos de carbón bituminoso y son de tipo industrial para la eliminación de compuestos orgánicos disueltos en el agua y en las aguas residuales, así como

en las corrientes industriales y de procesamiento de alimentos. Siguiendo la metodología sugerida con las normas establecidas por la Sociedad Americana de Pruebas y Materiales (ASTM), D5158-98 (ASTM, 2013) y la Asociación Americana de Obras Hidráulicas (AWWA), B604-12 (AWWA, 2012).

2. Materiales y métodos

2.1 Químicos

Los patrones de los COEs para este estudio, fueron suministrados por el fabricante Sigma-Aldrich y los disolventes de grado HPLC (acetonitrilo y metanol) suministrados por la compañía Sigma Chemical con una pureza del 98-99% ambos. Las propiedades físico-químicas de los COEs estudiados se indican en la Tabla 1. Según las propiedades toxicológicas de los COEs estudiados mediante el Centro Nacional para la Información Biotecnológica (NCBI) (NCBI, 2020), nos indica, que todos tienen en común que son perjudiciales y peligrosos para el medio ambiente acuático y nocivos si se ingieren.

Tabla 1. Propiedades físico-químicas de la carbamazepina y diclofenaco (NCBI, 2020)

Nombre químico	N.º CAS	Masa molar (g mol ⁻¹)	Solubilidad en agua (mg L ⁻¹)	Log Kow	pKa
Carbamazepina	298-46-4	236.27	18.00 (25 °C)	2.3	13.9
Diclofenaco	15307-86-5	296.10	2.37 (25 °C)	4.51	4.15

2.2 Análisis en cromatografía líquida de alta resolución

Los fármacos carbamazepina y diclofenaco fueron analizados por un equipo de cromatografía líquida de alta resolución (HPLC) de la marca comercial Agilent technologies, Serie Agilent 1100, equipado como fase estacionaria una columna Ascentis RP–Amida de 5 µm (150 mm x 4.6 mm) de la marca Sigma-Aldrich y un detector ultravioleta estableciendo la longitud de onda en 220 y 286 nm para la carbamazepina y diclofenaco respectivamente. La fase móvil consistió en una mezcla de acetonitrilo y agua pura del tipo I obtenida del equipo Milli-Q Academic (Millipore) (ASTM, 2018), más 1 mL de ácido orto fosfórico (ACN:H₂O) a 60:40, v/v, a un flujo de 1.0 mL min⁻¹ con un tiempo de detección de 210 y 400 s respectivamente. La concentración inicial de la carbamazepina y diclofenaco (mg L⁻¹) fueron superiores a los valores notificados para las aguas de EDAR (ng L⁻¹) porque la metodología analítica utilizada aquí (HPLC-UV) requiere concentraciones más altas para ser precisa y obtener una concentración residual lo suficientemente alta para la respuesta del porcentaje de reducción. Diversos autores trabajan con órdenes de magnitud de 2 y 5 mg L⁻¹ para concentraciones iniciales de carbamazepina y diclofenaco, en sus investigaciones basadas en la reducción de carbamazepina y diclofenaco mediante tratamientos de adsorción con AC (Baghdadi et al., 2016; Alighardashi et al., 2018; Jun et al., 2019; Ivančev-Tumbas et al., 2018; Nadour 2019; Cherek et al., 2015).

2.3 Ensayo de adsorción en discontinuo

Los ensayos de adsorción en discontinuo con cada AC se llevaron a cabo siguiendo la metodología sugerida por la ASTM, D 3860-98 (ASTM, 2014). Extrayendo 1 mL de las muestras de manera periódica en intervalos de 5, 15, 30, 60 y 1440 min siendo filtradas con un filtro Hydrophilic PVDF, tamaño del poro de 0.22 μm y diámetro 25 mm de la marca comercial Filter-Lab. En cada ensayo se mantenía la misma concentración inicial a 0.7 mg L^{-1} del contaminante en cada uno de los 5 experimentos y se variaba la concentración de AC en cada experimento entre 4 y 20 mg L^{-1} de PAC y GAC. El volumen de solución de muestra fue de 0.5 L de agua pura a temperatura constante de $25^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ y agitación entre 250-300 rpm ± 10 rpm.

3. Resultados

3.1 Adsorción con PAC

De las Figuras 1 y 2 se observa que, para todas las concentraciones iniciales de contaminante y cualquier dosis de PAC, se produce una rápida reducción de carbamazepina al principio de la experimentación hasta los 45-60 minutos. A partir de los 60 minutos continúa aumentando la reducción, pero con una pendiente menos acusada. Superadas las 10 horas de contacto aproximadamente, la reducción de contaminante si bien aumenta, su incremento no es mayor del 20% hasta finalizar el experimento. Para un tiempo de contacto de 60 minutos y dosis de carbono de 4, 8, 12, 16 y 20 mg L^{-1} , se obtiene una reducción de carbamazepina de 15, 26, 47, 53 y 63% cuando la concentración inicial de contaminante fue de 0.7 mg L^{-1} y del 14, 19, 28, 41 y 44% cuando la concentración inicial de contaminante fue de 1.9 mg L^{-1} .

Figura 1: Ensayo de adsorción con PAC. Reducción de carbamazepina (%) con el tiempo. Condiciones iniciales: $[C_0] = 0.7 \text{ mg L}^{-1}$; $[\text{PAC}] = 4, 8, 12, 16 \text{ y } 20 \text{ mg L}^{-1}$.

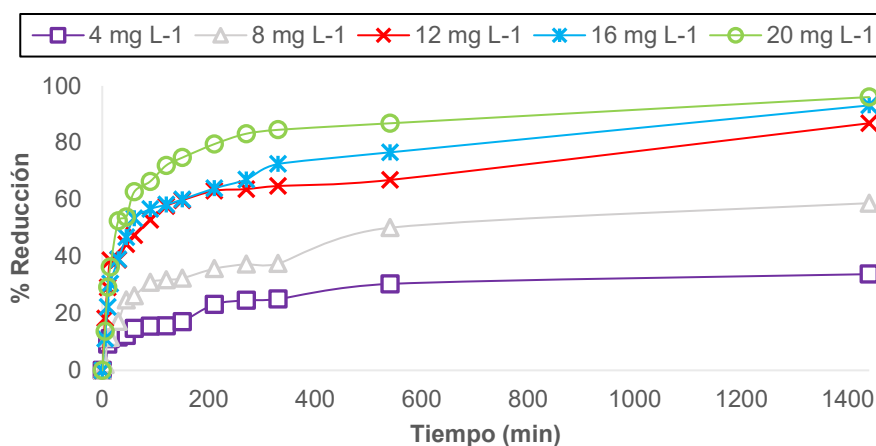
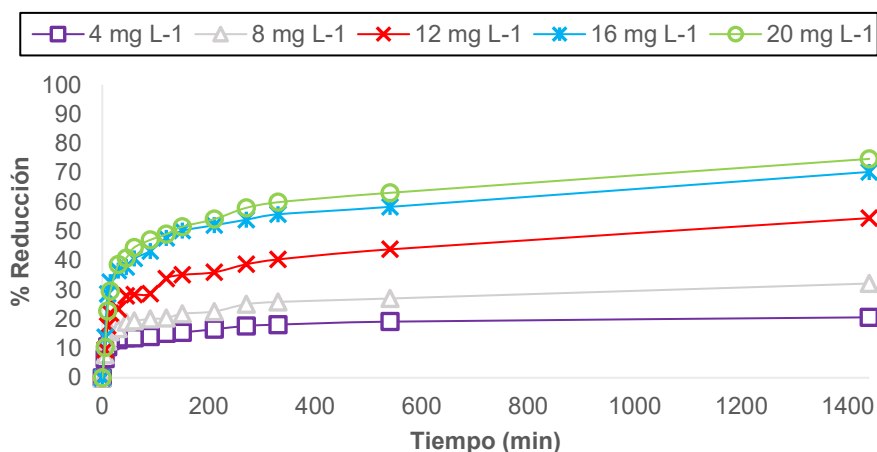


Figura 2: Ensayo de adsorción con PAC. Reducción de carbamazepina (%) con el tiempo. Condiciones iniciales: $[C_0] = 1.9 \text{ mg L}^{-1}$; $[\text{PAC}] = 4, 8, 12, 16 \text{ y } 20 \text{ mg L}^{-1}$.



De las Figuras 3 y 4 se observa que, para todas las concentraciones iniciales de contaminante y cualquier dosis de PAC, se produce una rápida reducción de diclofenaco al principio de la experimentación hasta los 30-45 minutos. A partir de los 60 minutos continúa aumentando la reducción, pero con una pendiente menos acusada. Superadas las 10 horas de contacto aproximadamente, la reducción de contaminante si bien aumenta, no supone un incremento mayor del 9% hasta finalizar el experimento. Para un tiempo de contacto de 60 minutos y dosis de carbono de 4, 8, 12, 16 y 20 mg L⁻¹, se obtiene una reducción de diclofenaco de 45, 81, 84, 92 y 98% cuando la concentración inicial de contaminante fue de 0.7 mg L⁻¹ y del 33, 50, 65, 74 y 87% cuando la concentración inicial de contaminante fue de 1.9 mg L⁻¹.

Figura 3: Ensayo de adsorción con PAC. Reducción de diclofenaco (%) con el tiempo. Condiciones iniciales: [C₀] = 0.7 mg L⁻¹; [PAC] = 4, 8, 12, 16 y 20 mg L⁻¹.

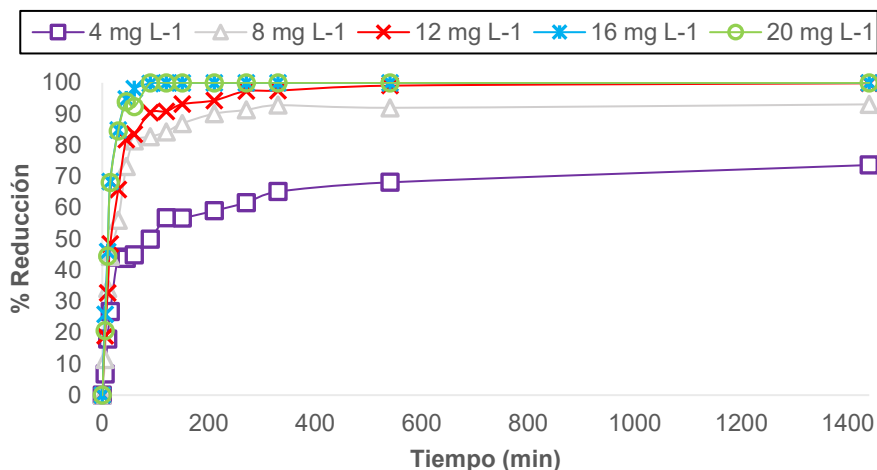
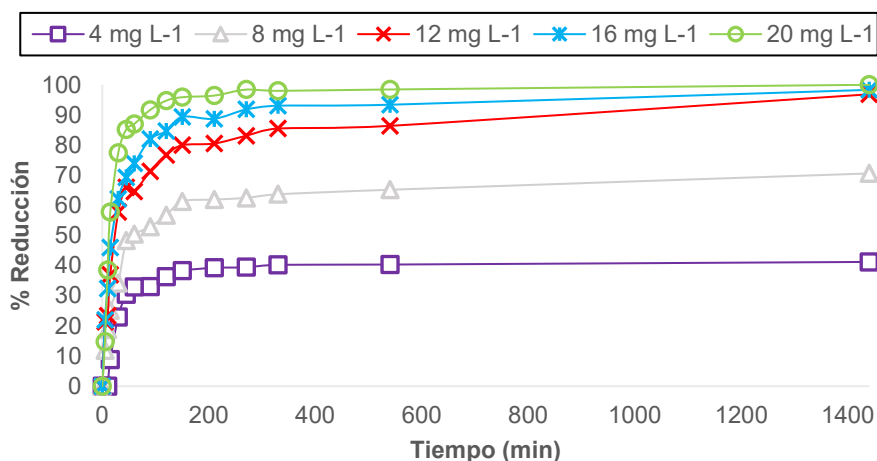


Figura 4: Ensayo de adsorción con PAC. Reducción de diclofenaco (%) con el tiempo. Condiciones iniciales: [C₀] = 1.9 mg L⁻¹; [PAC] = 4, 8, 12, 16 y 20 mg L⁻¹.



3.2 Adsorción con GAC

En las Figuras 5 y 6 se observa que, para todas las concentraciones iniciales de contaminante y cualquier dosis de GAC, no se producen reducciones de carbamazepina por encima del 10% prácticamente a ninguna concentración de GAC por debajo de los 270 minutos.

A las 24 horas de experimentación, para la concentración inicial más baja de contaminante 0.7 mg L^{-1} y la mayor dosis de GAC estudiada 20 mg L^{-1} , la reducción de carbamazepina es del 39%. Para esta misma dosis de GAC y el mismo tiempo de contacto, para la concentración inicial de contaminante de 1.9 mg L^{-1} la reducción fue del 19%.

Cuando se trabaja con la concentración inicial de contaminante de 0.7 mg L^{-1} y las dosis más bajas de GAC de 4 y 8 mg L^{-1} , en ningún caso se supera el 10% de reducción para tiempos de contacto de 24 horas. En el caso de la dosis más alta de contaminante 1.9 mg L^{-1} , no se llega a una reducción de superior del 6% para la dosis de 4 mg L^{-1} a las 24 horas de contacto.

Figura 5: Ensayo de adsorción con GAC. Reducción de carbamazepina (%) con el tiempo. Condiciones iniciales: $[C_0] = 0.7 \text{ mg L}^{-1}$; $[GAC] = 4, 8, 12, 16$ y 20 mg L^{-1} .

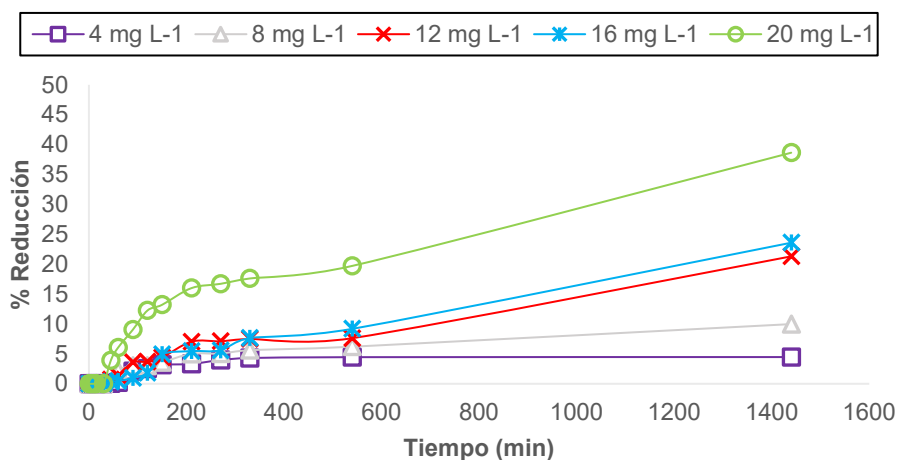
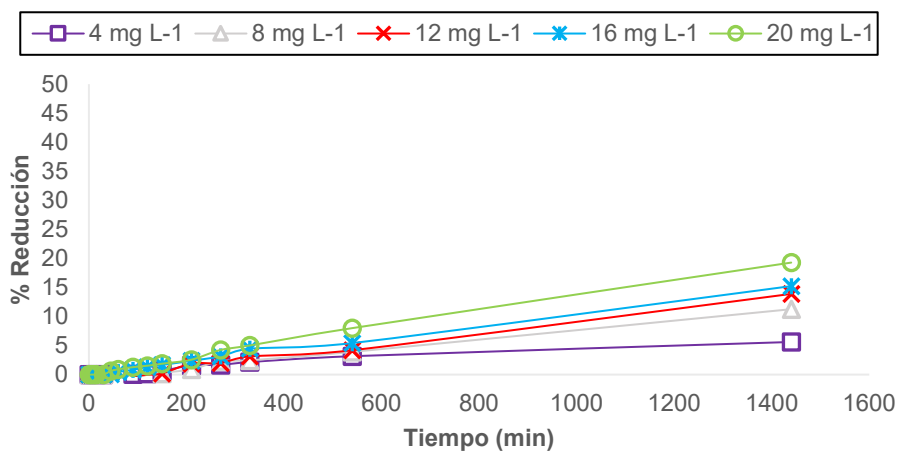


Figura 6: Ensayo de adsorción con GAC. Reducción de carbamazepina (%) con el tiempo. Condiciones iniciales: $[C_0] = 1.9 \text{ mg L}^{-1}$; $[GAC] = 4, 8, 12, 16 \text{ y } 20 \text{ mg L}^{-1}$.



En las Figuras 7 y 8 se observa que, para todas las concentraciones iniciales de contaminante y cualquier dosis de GAC, no se producen reducciones de diclofenaco por encima del 10% prácticamente a ninguna concentración de GAC por debajo de los 150 minutos.

A las 24 horas de experimentación, para la concentración inicial más baja de contaminante 0.7 mg L^{-1} y la mayor dosis de GAC estudiada 20 mg L^{-1} , la reducción de diclofenaco es del 37%. Para esta misma dosis de GAC y el mismo tiempo de contacto, para la concentración inicial de contaminante de 1.9 mg L^{-1} la reducción fue del 26%.

Cuando se trabaja con la concentración inicial de contaminante de 0.7 mg L^{-1} y las dosis más bajas de GAC de $4 \text{ y } 8 \text{ mg L}^{-1}$, en ningún caso se supera el 16% de reducción para tiempos de contacto de 24 horas. En el caso de la dosis más alta de contaminante 1.9 mg L^{-1} , no se llega a una reducción de superior del 5% para la dosis de 4 mg L^{-1} a las 24 horas de contacto.

Figura 7: Ensayo de adsorción con GAC. Reducción de diclofenaco (%) con el tiempo. Condiciones iniciales: $[C_0] = 0.7 \text{ mg L}^{-1}$; $[GAC] = 4, 8, 12, 16 \text{ y } 20 \text{ mg L}^{-1}$.

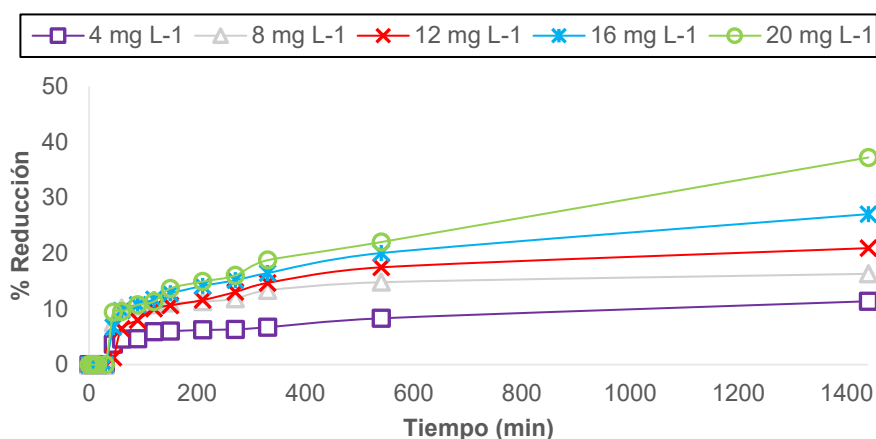
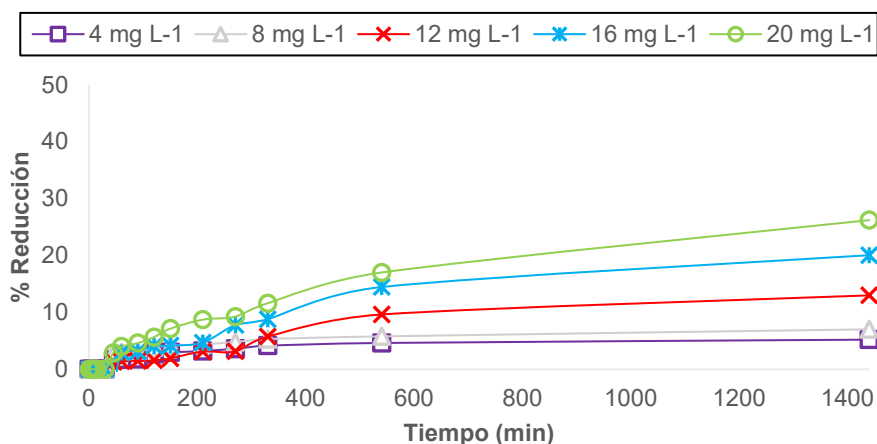


Figura 8: Ensayo de adsorción con GAC. Reducción de diclofenaco (%) con el tiempo. Condiciones iniciales: $[C_0] = 1.9 \text{ mg L}^{-1}$; $[GAC] = 4, 8, 12, 16 \text{ y } 20 \text{ mg L}^{-1}$.



4. Conclusiones

En los ensayos de adsorción con PAC, la carbamazepina presenta una rápida evolución de la reducción en los primeros 45-60 minutos, mientras que el diclofenaco es a los 30-45 minutos de tiempo de contacto. La carbamazepina con la mayor dosis de PAC para las concentraciones iniciales 0.7 y 1.9 mg L⁻¹, alcanza una reducción del 63 y 44%, mientras que el diclofenaco con la misma dosis de PAC alcanza una reducción del 92 y 87% a los 60 minutos de contacto. De igual manera, pero para un tiempo de contacto de 24 horas, se consigue una reducción del 96 y 75% la carbamazepina y un 100% para el diclofenaco.

En el caso de los ensayos de adsorción con GAC, la carbamazepina no presenta reducciones significativas por encima del 10% hasta pasado los 270 minutos y en el caso del diclofenaco a los 150 minutos de tiempo de contacto. La carbamazepina con la mayor dosis de GAC para las concentraciones iniciales 0.7 y 1.9 mg L⁻¹, alcanza una reducción del 39 y 19%, mientras que el diclofenaco con la misma dosis de PAC alcanza una reducción del 37 y 24% para un tiempo de contacto de 24 horas.

En conclusión, los tratamientos de adsorción para los COEs estudiados, logran mejores rendimientos de reducción frente al tiempo de contacto cuando son tratados con PULSORB PWX HA que con Calgon Filtrasorb 400. Por último, el diclofenaco fue ligeramente mejor sus rendimientos de reducción que la carbamazepina a las 24 horas de contacto. A su vez, ambos tratamientos de adsorción con AC, no alcanzarían una reducción completa en las dosis de PAC o GAC estudiadas para dichos fármacos, es decir, no lograrían una descontaminación total del agua de dichos contaminantes. Sin embargo, la eficiencia de reducción de la carbamazepina y diclofenaco mediante el tratamiento de adsorción, sobre todo el PAC a una hora de tiempo de contacto, alcanzaría valores significativos de reducción para ambos contaminantes en comparación con los valores medios de eficacia de reducción que se obtiene con los tratamientos convencionales de EDARs. También habría que tener en cuenta que dicho estudio se ha realizado en matriz de agua destilada y quedaría pendiente realizar el mismo estudio, pero con aguas reales para comprobar las diferencias de reducción en diferentes matrices acuosas y la competitividad de otros compuestos con los fármacos estudiados.

Agradecimientos

Esta investigación forma parte del proyecto del Ministerio de Economía y Competitividad “Eliminación de contaminantes emergentes mediante procesos anaerobios y aerobios en serie y tratamientos complementarios sistema combinado UASB SMEBR O 3/AC CTM 2016 76910 R”, la investigación se lleva a cabo por el Instituto del Agua y las Ciencias Ambientales de la Universidad de Alicante. Grupo investigador Recursos Hídricos y Desarrollo Sostenible.

5. Referencias

- Alighardashi, A., Agha, R. S., & Ebrahimzadeh, H. (2018). Improvement of Carbamazepine Degradation by a Three-Dimensional Electrochemical (3-EC) Process. *International Journal of Environmental Research*, 12(4), 451-458.
- Altmann, J., Ruhl, A. S., Zietzschmann, F., & Jekel, M. (2014). Direct comparison of ozonation and adsorption onto powdered activated carbon for micropollutant removal in advanced wastewater treatment. *Water Research*, 55, 185-193.
- American Society of Testing Materials. (2013). *Standard Test Method for Determination of Particle Size of Powdered Activated Carbon by Air Jet Sieving*, D5158-98.
- American Society of Testing Materials. (2014). *Standard practice for determination of adsorptive capacity of activated carbon by aqueous phase isotherm technique*, D3860-98.
- American Society of Testing Materials. (2018). *Standard Specification for Reagent Water*, D1193-06.
- American Water Works Association. (2012). *Standard: Granular Activated Carbon*. Issue B604-12.
- Baghdadi, M., Ghaffari, E., & Aminzadeh, B. (2016). Removal of carbamazepine from municipal wastewater effluent using optimally synthesized magnetic activated carbon: adsorption and sedimentation kinetic studies. *Journal of environmental chemical engineering*, 4(3), 3309-3321.
- Bolong, N., Ismail, A. F., Salim, M. R., & Matsuura, T. (2009). A review of the effects of emerging contaminants in wastewater and options for their removal. *Desalination*, 239(1), 229-246.
- Bonvin, F., Jost, L., Randin, L., Bonvin, E., & Kohn, T. (2016). Super-fine powdered activated carbon (SPAC) for efficient removal of micropollutants from wastewater treatment plant effluent. *Water Research*, 90, 90-99.
- Cherik, D., Benali, M., & Louhab, K. (2015). Occurrence, ecotoxicology, removal of diclofenac by adsorption on activated carbon and biodegradation and its effect on bacterial community: A review. *World Scientific News*, (10), 116-144.
- Choi, K. J., Kim, S. G., & Kim, S. H. (2008). Removal of antibiotics by coagulation and granular activated carbon filtration. *Journal of Hazardous Materials*, 151(1), 38-43.
- de Jongh, C. M., Kooij, P. J., de Voogt, P., & ter Laak, T. L. (2012). Screening and human health risk assessment of pharmaceuticals and their transformation products in Dutch surface waters and drinking water. *Science of the Total Environment*, 427, 70-77.
- Gardi, I., Nir, S., & Mishael, Y. G. (2015). Filtration of triazine herbicides by polymer-clay sorbents: Coupling an experimental mechanistic approach with empirical modeling. *Water Research*, 70, 64-73.

- Ivančev-Tumbas, I., Hoffmann, G., Hobby, R., Kerkez, Đ., Tubić, A., Babić-Nanić, S., & Panglisch, S. (2018). Removal of diclofenac from water by in/out PAC/UF hybrid process. *Environmental technology*, 39(18), 2315-2320.
- Jun, B. M., Heo, J., Park, C. M., & Yoon, Y. (2019). Comprehensive evaluation of the removal mechanism of carbamazepine and ibuprofen by metal organic framework. *Chemosphere*, 235, 527-537.
- Jurado, A., Vázquez-Suñé, E., Carrera, J., de Alda, M. L., Pujades, E., & Barceló, D. (2012). Emerging organic contaminants in groundwater in Spain: a review of sources, recent occurrence and fate in a European context. *Science of the Total Environment*, 440, 82-94.
- Kolpin, D. W., Schnoebelen, D. J., & Thurman, E. M. (2004). Degradates provide insight to spatial and temporal trends of herbicides in ground water. *Groundwater*, 42(4), 601-608.
- Kolpin, D. W., Thurman, E. M., & Linhart, S. M. (2000). Finding minimal herbicide concentrations in ground water? Try looking for their degradates. *Science of the Total Environment*, 248(2-3), 115-122.
- Kolpin, D. W., Thurman, E. M., & Linhart, S. M. (2001). Occurrence of cyanazine compounds in groundwater: degradates more prevalent than the parent compound. *Environmental Science & Technology*, 35(6), 1217-1222.
- Kümmerer, K. (2009). Antibiotics in the aquatic environment—a review—part I. *Chemosphere*, 75(4), 417-434.
- La Farre, M., Pérez, S., Kantiani, L., & Barceló, D. (2008). Fate and toxicity of emerging pollutants, their metabolites and transformation products in the aquatic environment. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 27(11), 991-1007.
- Li, C., Wang, L., & Shen, Y. (2014). The removal of atrazine, simazine, and prometryn by granular activated carbon in aqueous solution. *Desalination and Water Treatment*, 52(19-21), 3510-3516.
- Lipinski, C. A., Lombardo, F., Dominy, B. W., & Feeney, P. J. (1997). Experimental and computational approaches to estimate solubility and permeability in drug discovery and development settings. *Advanced Drug Delivery Reviews*, 23(1-3), 3-25.
- Löwenberg, J., Zenker, A., Baggenstos, M., Koch, G., Kazner, C., & Wintgens, T. (2014). Comparison of two PAC/UF processes for the removal of micropollutants from wastewater treatment plant effluent: process performance and removal efficiency. *Water Research*, 56, 26-36.
- Mailler, R., Gasperi, J., Coquet, Y., Buleté, A., Vulliet, E., Deshayes, S., & Caupos, E. (2016). Removal of a wide range of emerging pollutants from wastewater treatment plant discharges by micro-grain activated carbon in fluidized bed as tertiary treatment at large pilot scale. *Science of the Total Environment*, 542, 983-996.
- Margot, J., Kienle, C., Magnet, A., Weil, M., Rossi, L., De Alencastro, L. F., & Barry, D. A. (2013). Treatment of micropollutants in municipal wastewater: ozone or powdered activated carbon? *Science of the Total Environment*, 461, 480-498.
- Murray, K. E., Thomas, S. M., & Bodour, A. A. (2010). Prioritizing research for trace pollutants and emerging contaminants in the freshwater environment. *Environmental Pollution*, 158(12), 3462-3471.

- Nadour, M., Boukraa, F., & Benaboura, A. (2019). Removal of Diclofenac, Paracetamol and Metronidazole using a carbon-polymeric membrane. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 7(3), 103080.
- National Center for Biotechnology Information (NCBI): PubChem Compound. Open Chemistry Database (2017). [Consulted: April 2020]. Recuperado de <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/>
- Seo, J., Kato, S., Ataka, Y., & Chino, S. (2009). Performance test for evaluating the reduction of VOCs in rooms and evaluating the lifetime of sorptive building materials. *Building and Environment*, 44(1), 207-215.
- Sing, K. S. (1985). Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity (Recommendations 1984). *Pure and Applied Chemistry*, 57(4), 603-619.
- Sing, K. S. W., Everett, D. H., Haul, R. A. W., Moscou, L., Pierotti, R. A., Rouquerol, J., & Siemieniewska, T. (1985). International Union of Pure and Applied Chemistry: reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity. *Pure Appl Chem*, 57, 603-619.
- Stavropoulos, G. G., Samaras, P., & Sakellariopoulos, G. P. (2008). Effect of activated carbons modification on porosity, surface structure and phenol adsorption. *Journal of Hazardous Materials*, 151(2-3), 414-421.
- Stoquart, C., Vázquez Rodríguez, G. A., Servais, P., Sauvé, S., & Barbeau, B. (2016). Micropollutant removal potential by aged powdered activated carbon. *Journal of Environmental Engineering*, 142(11), 04016058.
- Unión Europea. (2013). Directiva 2013/39/UE del Parlamento Europeo y del Consejo, de 12 de agosto de 2013 por la que se modifican las Directivas 2000/60/CE y 2008/105/CE en cuanto a las sustancias prioritarias en el ámbito de la política de aguas. *Diario Oficial de la Unión Europea de 24 de agosto de 2013*, pp. L 226/1-17.
- Wille, K., Claessens, M., Rappé, K., Monteyne, E., Janssen, C. R., De Brabander, H. F., & Vanhaecke, L. (2011). Rapid quantification of pharmaceuticals and pesticides in passive samplers using ultra high performance liquid chromatography coupled to high resolution mass spectrometry. *Journal of Chromatography A*, 1218(51), 9162-9173.
- Yi, F. Y., Lin, X. D., Chen, S. X., & Wei, X. Q. (2009). Adsorption of VOC on modified activated carbon fiber. *Journal of Porous Materials*, 16(5), 521-526.
- Zahoor, M. (2013). Removal of Pesticides from Water Using Granular Activated Carbon and Ultrafiltration Membrane—A Pilot Plant Study. *Journal of Encapsulation and Adsorption Sciences*, 3, 71-76.

Comunicación alineada con los Objetivos de Desarrollo Sostenible

