

An experimental investigation of proxy electrocoagulation process efficiency for COD removal from Azithromycin contaminated aqueous solution

Ahmad Reza Yazdanbakhsh¹, Mohamadreza Massoudinejad², Sima Elyasi^{3*}

1- Associate Professor, Department of Environmental Health, School of Health Shahid Beheshti University of Medical Science, Tehran, Iran

2- Professor, Department of Environmental Health, School of Health Shahid Beheshti University of Medical Science, Tehran, Iran, and Injury Prevention Research Center of Shahid Beheshti University of Medical Science, Tehran, Iran

3- Msc, Department of Environmental Health, School of Health Shahid Beheshti University of Medical Science, Tehran, Iran

ABSTRACT

Background and Aims: Pharmaceuticals are considered as emerging environmental pollutants due to their continuous input and persistence in the aquatic ecosystem even at low concentrations. This work focuses on the removal of chemical oxygen demand (COD) from Azithromycin contaminated synthetic aqueous solution through proxy electrocoagulation process.

Materials and Methods: A batch method was used for removal of Azithromycin from water. The parameters affecting on the proxy electrocoagulation of antibiotics and subsequently COD removal efficiency such as reaction time, concentration of hydrogen peroxide, current density and pH of the solution was investigated.

Results: The proxy electrocoagulation process achieved a very high COD removal efficiency (95.6%) with reaction time of 60 min, current density of 20 mA/cm² and at pH 3 in the presence of 1.5 mg/L of hydrogen peroxide, producing cleaned water.

Conclusion: Although economically should be investigated compared to other methods, the studied process was useful in terms of Azithromycin removal from aqueous solutions.

Key words: Wastewater, electrocoagulation, Azithromycin, COD

*Corresponding Author:

Department of Environmental Health Engineering, School of Health Shahid Beheshti University of Medical Science, Tehran, Iran

Tel: +982122432040

Email: simael1363@yahoo.com

Received: 26 April 2014

Accepted: 15 January 2015

بررسی کارآیی فرآیند پراکسی الکتروکواگولاسیون در حذف COD آنتی بیوتیک آزیترومایسین از محلولهای آبی

احمد رضا یزدانبخش^۱، محمد رضا مسعودی نژاد^۲، سیما الیاسی^{۳*}

^۱ دانشیار گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی
^۲ استاد گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت و عضو هیات موسس مرکز تحقیقات ارتقاء ایمنی و پیشگیری از مصدومیتها، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی
^۳ کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی

چکیده

زمینه و هدف: ورود داروها و باقیمانده‌های دارویی به محیط‌های آبی و پایداری آنها در محیط به عنوان یک مساله مهم در محیط زیست مطرح می‌باشد. هدف از این تحقیق بررسی کارایی فرآیند پراکسی الکتروکواگولاسیون در حذف COD آنتی بیوتیک آزیترومایسین از فاضلاب می‌باشد.

مواد و روش‌ها: این مطالعه در راکتور در مقیاس آزمایشگاهی و روی نمونه‌های سنتتیک از آنتی بیوتیک آزیترومایسین انجام گرفت. در این تحقیق تاثیر پارامترهایی چون زمان واکنش، غلظت پراکسید هیدروژن، دانسیته جریان و pH بر راندمان حذف COD آنتی بیوتیک آزیترومایسین مورد بررسی قرار گرفت.

یافته‌ها: نتایج نشان دهنده تاثیر غلظت اولیه آنتی بیوتیک، pH، دانسیته جریان، زمان واکنش و غلظت پراکسید هیدروژن بر راندمان حذف بود. بیشترین راندمان حذف COD، ۹۵/۶ درصد، با غلظت ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر آنتی بیوتیک آزیترومایسین در زمان واکنش ۶۰ دقیقه، دانسیته جریان ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع، pH برابر ۳ و غلظت ۱/۵ میلی گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن، به دست آمد. **نتیجه گیری:** روش پراکسی الکتروکواگولاسیون در حذف آنتی بیوتیک آزیترومایسین از فاضلاب کارآیی مناسبی دارد. گرچه از نظر اقتصادی باید بررسی بیشتری در مقایسه با روش‌های دیگر صورت گیرد.

کلید واژه‌ها: فاضلاب، الکتروکواگولاسیون، آزیترومایسین، COD

* آدرس نویسنده مسئول:

دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی شهید بهشتی، تهران، تلفن: ۰۲۱-۲۲۴۳۲۰۴۰-۴۱، فاکس: ۰۲۱-۲۲۴۳۲۰۳۷

Email: simael1363@yahoo.com

تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۳/۰۲/۰۶

تاریخ پذیرش مقاله: ۱۳۹۳/۱۰/۲۵

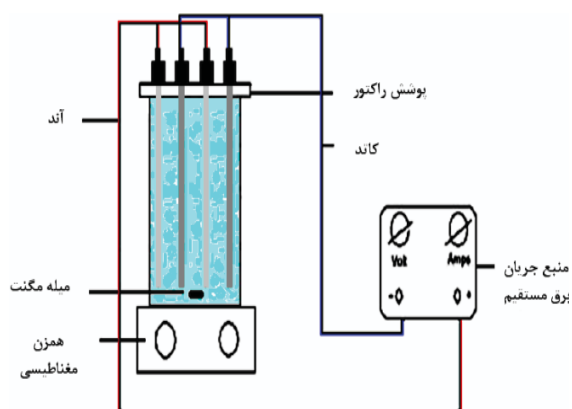
مقدمه

یکی از آلاینده‌های موجود در فاضلاب‌ها مواد دارویی پایدار در محیط زیست می‌باشند. داروها عناصری بسیار مهم به شمار می‌آیند که در درمان بیماری‌های انسان و حیوانات مورد استفاده قرار می‌گیرند [۱]. اخیراً تنها تعدادی از کشورهای پیشرفته از قبیل آمریکا، انگلستان، آلمان و ایتالیا شروع به بررسی اثرات منفی آلاینده‌های دارویی در محیط زیست کرده‌اند [۲]. به طور معمول این مواد به دلیل ناکارآمدی فن‌آوری‌های متداول تصفیه فاضلابها، از طریق پساب خروجی به محیط زیست راه یافته‌اند که این امر به افزایش نگرانی در مورد حضور طیف وسیعی از مواد دارویی در محیط‌های آبی در سال‌های اخیر منجر شده است [۳]. آنتی‌بیوتیک‌ها حدود ۱۵ درصد مصرف کل داروها را به خود اختصاص می‌دهند. ورود مواد دارویی و آنتی‌بیوتیک‌ها و همچنین متابولیت‌های حاصل از آنها در محیط‌های آبی در سال‌های اخیر نگرانی‌های زیادی را به دنبال داشته است. استاندارد قابل قبول سازمان حفاظت محیط زیست برای حضور در پساب ۱ میلی گرم در لیتر اعلام گردیده است [۴]. آنتی‌بیوتیک‌ها را براساس وجود حلقه بتا لاکتام به دو دسته بتالاکتام و غیربتالاکتام تقسیم بندی نموده‌اند [۵]. آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين، از گروه ماکرولیدها در دسته دارای حلقه لاکتام ۱۴ اتمی قرار می‌گیرد [۶، ۷]. این دارو به عنوان یکی از آنتی‌بیوتیک‌های بسیار مهم در پزشکی است که در درمان عفونت‌های باکتریایی به کار می‌رود [۸] [شکل ۱].

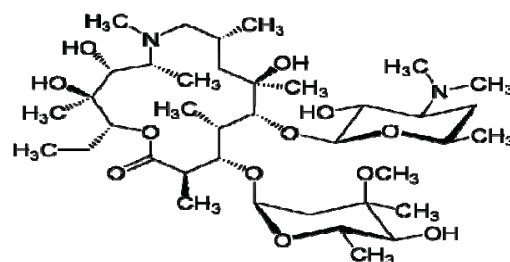
این مطالعه از نوع مطالعه بنیادی کاربردی می‌باشد که در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت ناپیوسته انجام گرفته است. شکل ۲ نمایی از راکتور پراکسی الکتروکواگولاسیون را نشان می‌دهد.

مواد و روش‌ها

این مطالعه از نوع مطالعه بنیادی کاربردی می‌باشد که در مقیاس آزمایشگاهی و به صورت ناپیوسته انجام گرفته است. شکل ۲ نمایی از راکتور پراکسی الکتروکواگولاسیون را نشان می‌دهد.

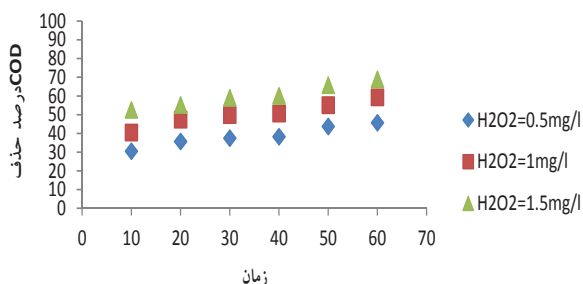


شکل ۲- نمایی از راکتور پراکسی الکتروکواگولاسیون

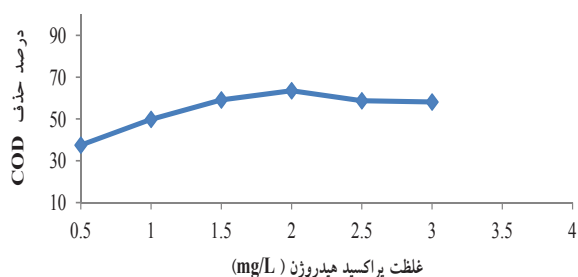


شکل ۱- ساختار مولکولی آنتی‌بیوتیک آزیترومايسين

مواد دارویی و متابولیت‌های آن پس از مصرف و دفع، وارد فاضلاب شهری می‌شوند و چون عملیات تصفیه در تصفیه خانه‌های متداول فاضلاب برای حذف این مواد کافی نیست در نتیجه وارد آب پذیرنده می‌شوند [۹]. ورود داروها به محیط‌های آبی به آلودگی محیط زیست و به خطر انداختن زندگی آبزیان منجر می‌گردد [۱۰، ۱۱]. فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته براساس تولید رادیکال‌های آزاد و فعال به ویژه هیدروکسیل

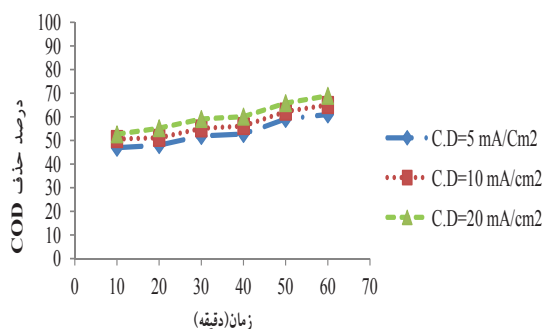


شکل ۳- حذف COD آنتی بیوتیک آزیترومایسین در شدت جریان ۱/۴۴ آمپر، pH معادل ۷ در غلظت های مختلف H_2O_2 و زمان های مختلف



شکل ۴- اثر غلظت پراکسید هیدروژن بر درصد حذف COD [غلظت آنتی بیوتیک آزیترومایسین ۱۰۰ میلی گرم در لیتر، شدت جریان ۱/۴۴ آمپر، pH معادل ۷ و زمان ۳۰ دقیقه]

اثر دانسیته جریان بر فرآیند پراکسی الکترودکوالاسیون شکل ۵ تاثیر دانسیته جریان بر میزان حذف COD آنتی بیوتیک آزیترومایسین در زمان های مختلف با غلظت آنتی بیوتیک آزیترومایسین ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر را نشان می دهد. همانطور که مشاهده می شود بیش ترین راندمان حذف COD ۶۷/۹ درصد اندازه گیری گردید. شکل ۶ نشان می دهد که مقدار دانسیته جریان بیش از ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع به کاهش راندمان حذف منجر می شود.



شکل ۵- اثر دانسیته جریان بر میزان حذف آنتی بیوتیک آزیترومایسین ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر و غلظت پراکسید هیدروژن ۱/۵ میلی گرم در لیتر در زمان ها و دانسیته جریان های مختلف

همان طور که در شکل دیده می شود. الکتروود آند خورده شده و کاتیون های فلزی از طریق الکتروولیت به سمت یون های مثبت حرکت می کند. تولید الکتروشیمیایی پراکسید هیدروژن به صورت الکتروشیمیایی در کاتد رخ می دهد. در نهایت از واکنش بین آهن دو ظرفیتی و پراکسید هیدروژن تولیدی، رادیکال $OH\cdot$ تولید می شود که لازمه واکنش های اکسیداسیون پیشرفته است. متغیرهای مورد بررسی در این پژوهش پراکسید هیدروژن با غلظت های ۰/۵، ۱ و ۱/۵ میلی گرم بر لیتر، pH معادل ۲ تا ۸، دانسیته جریان ۵، ۱۰ و ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع و زمان واکنش ۱۰ تا ۶۰ دقیقه انتخاب شد.

محللول استوک سنتتیک آزیترومایسین ۱۰۰۰ میلی گرم در لیتر از طریق انحلال ۱۰۰۰ میلی گرم آزیترومایسین در ۱۰۰۰ میلی لیتر آب مقطر دو بار تقطیر تهیه شد. با انجام رقیق سازی [با نسبت ۱ به ۱۰] غلظت آزیترومایسین ۱۰۰ میلی گرم در لیتر آب حاصل شد. سپس فاضلاب به راکتور ۵۰۰ میلی لیتری وارد شد و به منظور برقراری دانسیته جریان ۱/۵ گرم نمک سولفات سدیم به راکتور اضافه گردید. راکتور دارای چهار الکتروود آهن بود که به صورت تک قطبی به مولد جریان الکتریسته وصل شد. آزمایشات ۳ بار تکرار و مقدار متوسط آن ها گزارش گردید. COD اولیه آنتی بیوتیک آزیترومایسین با غلظت ۱۸۰ mg/l تعیین شد که برابر ۱۸۰ mg/l بود. اندازه گیری غلظت COD نهایی پس از صاف کردن نمونه رقیق شده [با نسبت ۱ به ۱۰] توسط صافی واتمن به وسیله دستگاه تقطیر برگشتی طبق دستورالعمل های موجود در کتاب روش های استاندارد جهت انجام آزمایش های آب و فاضلاب انجام گرفت [۱۷]. در انتها راندمان حذف نمونه های مختلف محاسبه و با هم مقایسه شد.

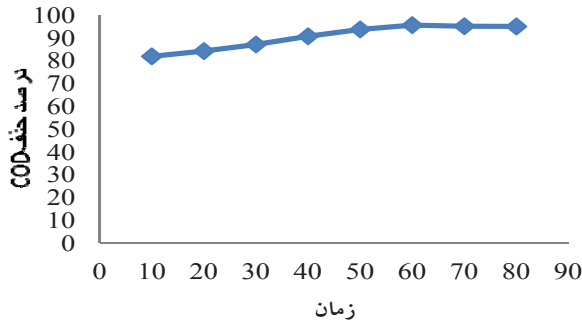
یافته ها

اثر H_2O_2 بر راندمان حذف COD

از نتایج این تحقیق با توجه به شکل ۳ و ۴ دریافت شد که حداکثر مقدار حذف برای غلظت ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر آنتی بیوتیک آزیترومایسین در غلظت ۲ میلی گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن، شدت جریان ۱/۴۴ آمپر، pH معادل ۷ و زمان ۳۰ دقیقه ۶۳/۵ درصد می باشد. در این مطالعه این نتیجه کسب شد که با افزایش غلظت پراکسید هیدروژن تا ۲ میلی گرم بر لیتر راندمان حذف COD افزایش و افزایش غلظت به بیش از ۲ میلی گرم بر لیتر پراکسید هیدروژن به کاهش راندمان حذف COD منجر می شود.

اثر زمان بر راندمان حذف COD

شکل ۹ اثر زمان بر راندمان حذف COD را نشان می دهد. همانطور که مشاهده می شود با افزایش زمان تا ۶۰ دقیقه راندمان حذف افزایش می یابد و با افزایش زمان از ۶۰ تا ۹۰ دقیقه راندمان حذف حالت ثابت به خود می گیرد.

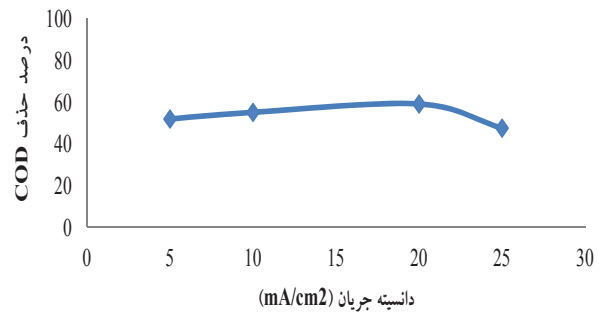


شکل ۹- اثرات زمان بر راندمان حذف COD (غلظت آنتی بیوتیک آزیترومايسين ۱۰۰ میلی گرم در لیتر، pH معادل ۳، غلظت پراکسید هیدروژن ۱/۵ میلی گرم در لیتر و شدت جریان ۱/۴۴ آمپر در زمان‌های مختلف)

بحث

از نتایج این تحقیق مشخص گردید که مقدار بهینه پراکسید هیدروژن بر فرآیند الکتروکواگولاسیون موثر است [۱۷]. در این مطالعه مشخص گردید که با افزایش غلظت پراکسید هیدروژن تا ۲ میلی گرم بر لیتر راندمان حذف COD افزایش می یابد و با افزایش غلظت از ۲ میلی گرم بر لیتر راندمان حذف رو به کاهش خواهد گذاشت. به عبارت دیگر، پراکسید هیدروژن در غلظت‌های بیش از بهینه [۲ میلی گرم بر لیتر] نقش بازدارندگی در تولید رادیکال‌های $\cdot\text{OH}$ داشته و به کاهش بازدهی فرآیند منجر می شود. به طور کلی افزایش پراکسید هیدروژن به بیش از مقدار بهینه منجر به کاهش رادیکال $\cdot\text{OH}$ به علت خاصیت اسکاونجری پراکسید هیدروژن می شود.

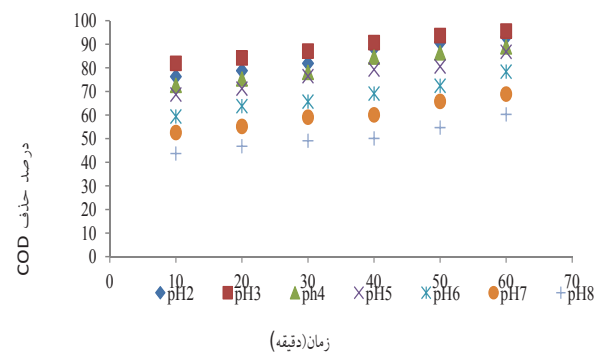
دهقانی و همکاران در مطالعه‌ای با عنوان بررسی کارایی فرآیند اکسیداسیون پیشرفته فنتون در کاهش آنتی بیوتیک سولفادیازین از محیط آبی به این نتیجه رسیدند که با افزایش غلظت پراکسید هیدروژن از غلظت ۱/۴۷ میلی مولار به ۱/۹۶ میلی مولار، میزان حذف آنتی بیوتیک از ۸۴ درصد به ۹۶/۱ درصد افزایش یافت [۱۸]. فرهادی و همکاران نیز به این نتیجه رسیدند که با افزایش غلظت پراکسید هیدروژن از مقدار بهینه راندمان کاهش می یابد. هنگامی که دوز پراکسید هیدروژن از ۱۰۰ به ۳۰۰ میلی گرم بر لیتر افزایش می یابد، حذف COD از ۳۵/۶ درصد به ۴۲/۲ درصد افزایش می یابد،



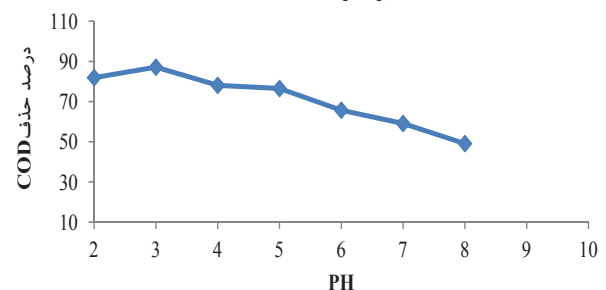
شکل ۶- اثر دانسیته جریان بر راندمان حذف COD آنتی بیوتیک آزیترومايسين ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر، زمان ۳۰ دقیقه و غلظت پراکسید هیدروژن ۱/۵ میلی گرم در لیتر

اثر pH بر فرآیند پراکسی الکتروکواگولاسیون

اثر pH بر میزان حذف COD آنتی بیوتیک آزیترومايسين ۱۰۰ میلی گرم در لیتر در زمان‌های مختلف در شکل ۷ دیده می شود. بهترین راندمان حذف در pH معادل ۳ مشاهده گردید. همانطور که در شکل ۸ دیده می شود افزایش pH از ۲ به ۳ به افزایش درصد راندمان حذف COD منجر می شود. افزایش pH از ۴ تا ۸ به کاهش درصد راندمان حذف COD منجر می شود.



شکل ۷- اثر pH بر میزان حذف آنتی بیوتیک آزیترومايسين ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر، شدت جریان ۱/۴۴ آمپر، غلظت پراکسید هیدروژن ۱/۵ میلی گرم بر لیتر و pH مختلف



شکل ۸- اثر pH اولیه بر راندمان حذف COD (غلظت آنتی بیوتیک آزیترومايسين ۱۰۰ میلی گرم در لیتر، زمان ۳۰ دقیقه)

واکنش پراکسید هیدروژن با آهن دو ظرفیتی در pH کمتر از ۲ تحت تأثیر کمپلکس‌های پیچیده $[Fe [H_2O]_6]$ قرار می‌گیرد. به عبارت دیگر $Fe[OH]_2$ در pH های پایین‌تر از ۲/۵ با پراکسید هیدروژن واکنش می‌دهد و باعث کاهش تعداد رادیکال‌های OH \cdot شده و در نتیجه بازدهی فرآیند کاهش می‌یابد. فرهادی و همکاران مقایسه‌ای در حذف COD فاضلاب داروسازی به وسیله فرآیندهای الکتروکواگولاسیون، فتو الکتروکواگولاسیون و پراکسی الکتروکواگولاسیون انجام دادند و به این نتیجه رسیدند که مقدار pH بهینه در روش پراکسی الکتروکواگولاسیون ۳ می‌باشد [۱۹]. دهقانی و همکاران pH بهینه برای حذف آنتی‌بیوتیک سولفادiazین را با استفاده از فرآیند فتون حدود ۳/۵ اعلام نمودند. آن‌ها دریافتند آهن به شکل پایدار در محیط اسیدی باقی مانده و تولید رادیکال OH \cdot به علت کاهش پتانسیل احیای سیستم واکنش افزایش می‌یابد [۱۸]. همان‌طور که نتایج نشان می‌دهد با افزایش زمان از ۱۰ تا ۶۰ دقیقه راندمان حذف افزایش می‌یابد و از آن به بعد راندمان کاهش می‌یابد. راندمان حذف به مقدار جزئی با افزایش زمان بیش از حد بهینه به علت مصرف رادیکال OH \cdot کاهش یافته و روند ثابت را طی می‌کند. دهقانی دریافت راندمان حذف COD با افزایش زمان از ۱۵ تا ۶۰ دقیقه افزایش می‌یابد [۱۸]. فرهادی دریافت غلظت COD با افزایش زمان از ۱۰ تا ۵۰ دقیقه کاهش یافته و از ۶۰ تا ۹۰ دقیقه راندمان ثابت است [۱۹]. در مطالعه مورد بررسی دریافت شد که راندمان با افزایش زمان از ۱۰ تا ۶۰ دقیقه افزایش می‌یابد و از ۷۰ تا ۸۰ دقیقه راندمان ثابت است که با مطالعات فوق هم خوانی دارد.

نتیجه گیری

امروزه اکثر محققان در تلاش هستند تا روشهای مؤثر و درعین حال مناسب از لحاظ اقتصادی را به منظور تصفیه فاضلابهای صنعتی ارائه دهند. لذا با توجه به نتایج به دست آمده می‌توان به این موضوع اشاره نمود که در ارتباط با فاضلابهایی که دارای مواد دارویی می‌باشند استفاده از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته می‌تواند بسیار مفید باشد و سبب می‌گردد که بار آلی کم و دارای قابلیت تجزیه بیولوژیکی بالا وارد سیستمهای بیولوژیکی گردد که هم از لحاظ راندمان و هم از لحاظ اقتصادی قابل توجه باشد. بنابراین این روش می‌تواند به عنوان روشی مؤثر در حذف آنتی‌بیوتیک‌هایی با ساختار مشابه مورد استفاده قرار گیرد.

اگرچه هنگامی که مقدار پراکسید هیدروژن از ۳۰۰ میلی گرم بر لیتر به ۱۰۰۰ میلی گرم بر لیتر افزایش یافت حذف COD حدود ۲۸ درصد کاهش می‌یابد [۱۹]. دانسیته جریان یکی از مهم‌ترین پارامترهای مؤثر بر راندمان حذف در فرآیند پراکسی الکتروکواگولاسیون محسوب می‌شود. کاربرد دانسیته جریان به افزایش مقدار پراکسید هیدروژن و تعداد رادیکال‌های OH \cdot در محیط الکترولیت منجر می‌شود. افزایش دانسیته جریان به افزایش حذف آلاینده به علت افزایش شار منجر می‌شود. از مطالعه مورد بررسی دریافت شد با افزایش دانسیته جریان از ۵ تا ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع راندمان حذف COD آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین افزایش می‌یابد. بیش‌ترین راندمان حذف COD برای غلظت ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین در زمان ۶۰ دقیقه و دانسیته جریان ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع ۶۸/۹ درصد بوده است.

با افزایش دانسیته جریان بیش از ۲۰ میلی آمپر بر سانتی متر مربع راندمان حذف به دلیل تخریب رادیکال OH \cdot کاهش می‌یابد. همچنین می‌توان استدلال نمود که افزایش دانسیته جریان به کاهش راندمان حذف به علت افزایش تخریب رادیکال OH \cdot در اثر افزایش دما منجر می‌شود. فرهادی و همکاران دریافتند راندمان حذف COD با افزایش دانسیته جریان افزایش می‌یابد. او دریافت راندمان حذف COD بعد از ۳۰ دقیقه از ۱۲ درصد به ۳۲ درصد به ترتیب در دانسیته جریان ۰/۴۳ و ۱/۸۳ میلی آمپر بر سانتی متر مربع می‌رسد. آن‌ها دریافتند افزایش دانسیته جریان به افزایش میزان انحلال آهن آندی منجر می‌شود. بنابراین مقدار بیشتری آهن دو ظرفیتی و هیدروکسیدهای آهن در محیط تولید می‌شود [۱۹]. بهترین راندمان در مطالعه مورد بررسی در pH معادل ۳ مشاهده شد. حداکثر راندمان حذف برای غلظت ۱۰۰ میلی گرم بر لیتر آنتی‌بیوتیک آزیترومایسین در pH معادل ۳، زمان ۶۰ دقیقه، شدت جریان ۱/۴۴ و غلظت پراکسید هیدروژن ۱/۵ میلی گرم بر لیتر، ۹۵/۶ درصد بود. راندمان حذف COD در pH بیش از ۳ [قلیایی] کاهش یافت. می‌توان کاهش راندمان حذف را به تولید کمپلکس هیدروکسید فریک به علت تبدیل Fe^{+2} به Fe^{+3} نسبت داد. یعنی آهن سه ظرفیتی به صورت $Fe[OH]_3$ ترسیب می‌یابد، از چرخه کاتالیستی خارج می‌شود و از واکنش بین آهن سه ظرفیتی و پراکسید هیدروژن جلوگیری می‌کند. بنابراین آهن دو ظرفیتی دوباره تولید می‌شود. علاوه بر این کاتالیز $Fe[OH]_3$ به کاهش ظرفیت اکسیداتیو به علت تجزیه پراکسید هیدروژن به اکسیژن و آب منجر می‌شود.

تشکر و قدردانی

این مقاله بر اساس نتایج حاصل از پایان نامه کارشناسی ارشد در دانشکده بهداشت دانشگاه شهید بهشتی تهران نگاشته شده است. به این وسیله از مسئولین محترم دانشکده، گروه مهندسی بهداشت محیط و پرسنل آزمایشگاه شیمی آب و فاضلاب بخصوص سرکار خانم مهندس میرشفیعیان و جناب آقای مهندس آقایانی تشکر می‌گردد.

REFERENCES

1. Sayadi MH, Trivedy RK, Pathak RK. Pollution of pharmaceutical in environment. *Journal of Industrial Pollution Control* 2010; 26(1):89-94.
2. Gagnon C, Lajeunesse A, Cejka P, Gagne F, Hausler R. Degradation of selected acidic and neutral pharmaceutical products in a primary-treated wastewater by disinfection processes. *Ozone: Science and Engineering* 2008; 30(5): 387-92.
3. Dirany A, Sirés I, Oturan N, Oturan MA. Electrochemical abatement of the antibiotic sulfamethoxazole from water. *Chemosphere* 2010; 81(5):594-602.
4. Rosario S, Valverde A, Dolores Gil Garc A, Maria Mart´inez G, H´ector C, Goicoechea B. “Determination of tetracyclines in surface water by partial least squares using multivariate calibration transfer to correct the effect of solid phase preconcentration in photochemically induced fluorescence signals.” *Analytica Chimica Acta* 2006; 562: 85-93.
5. Botsoglou N. A, Fletouris D.J. *Drugs residues in foods: Pharmacology, Food Safety, and Analysis*, Marcel Dekker Inc. New York .2000; P: 52-61.
6. Elks J, Ganellin C.R . *Dictionary of drugs*, Chapman and Hall, Pub. London. 1991 ; p:1001-1009.
7. Reynolds J.E.F, Martindale G. *The extra pharmacopoeia*, 30th Ed. The Pharmaceutical Press., London.1993; P: 232.
8. Seifrtov M, Novov L, Linob C, Penab A, Solicha P. An overview of analytical methodologies for the determination of antibiotics in environmental waters. *Analytica Chimica Acta* 2009; 649: 158-79.
9. Yu-Chen A. L, Lin C. F, Line J. M, Andy Hong P.K. O₃ and O₃/H₂O₂ treatment of sulfonamide and macrolide antibiotics in wastewater. *J. of Hazardous Materials* 2009; 171: 452-58.
10. Niina M, Vieno A.B, Tuula Tuhkanen B, Leif K. Analysis of neutral and basic pharmaceuticals in sewage treatment plants and in recipient rivers using solid phase extraction and liquid chromatography–tandem mass spectrometry detection. *Journal of Chromatography* 2006; 1134:101-111.
11. Virender K.S. Oxidative transformations of environmental pharmaceuticals by Cl₂, ClO₂, O₃, and Fe[VI]: Kinetics assessment. *Chemosphere* 2008; 73: 1379-86.
12. Arsene D, Petronela Musteret C, Catrinescu C, Apopei P, Brajoveanu G, Teodosiu C. Combined oxidation and ultrafiltration processes for the removal of priority organic pollutants from wastewaters. *Journal of Environmental Engineering and Management* 2011; 10: 1967-76.
13. Kestioslu K, Yonar T, Azbar N. Feasibility of physico-chemical treatment and advanced oxidation processes [AOPs] as a means of pretreatment of olive mill effluent. *J. Process Biochemistry* 2005; 40, 2409-16.
14. Xing Z. P, Sun D.Z. Treatment of antibiotic fermentation wastewater by combined polyferric sulfate coagulation, Fenton and sedimentation process. *J. of Hazardous Materials* 2009; 168: 1264-1268.
15. Ben W, Qiang Z, Pan X, Chen M. Removal of veterinary antibiotics from sequencing batch reactor [SBR] pretreated swine wastewater by Fenton’s reagent. *Water research* 2009; 43 (17): 4392-4402.
16. Aliabadi M, Fazel S, Vahabzadeh F. Processes in Application of Acid Cracking and Fenton Treating Olive Mill Wastewater. *Water and wastewater* 2006; 17(1): 30-36. (In Persian).
17. Ting W.P, Lu M.C, Huang Y.H, The reactor design and comparison of Fenton, electro-Fenton and photoelectro-Fenton processes for mineralization of benzene sulfonic acid [BSA]. *J. Hazard. Mater* 2008; 156(1-3): 421-7.

18. Badawy M.I, Ali M.E.M. Fenton's peroxidation and coagulation processes for the treatment of combined industrial and domestic wastewater. *J. Hazard. Mater* 2006; 136(3): 961–66.
19. Chen X, Chen G, Yue P.L, Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation, *Sep. Purif. Technol* 2000; 19(1-2): 65–76.
20. Barbusinski K. Fenton reaction-controversy concerning the chemistry. *Ecolog. Chem. Eng* 2009; 42: 347-58.
21. Farhadi S, Aminzadeh A. Comparison of COD removal from pharmaceutical wastewater by electrocoagulation, photoelectrocoagulation, peroxi-electrocoagulation and peroxi-photoelectrocoagulation processes. *Journal of hazardous materials* 2012; 35: 219-220.
22. Dehghani S, Jonidi jafari A, Farzadkia M, Gholami M. Investigation of the efficiency of Fenton's advanced oxidation process in sulfadiazine antibiotic removal from aqueous solutions. *Arak Medical University Journal* 2012; 15 (66): 19-29. (In Persian).