

## حذف آنتی بیوتیک سفیکسیم از محلول های آبی با استفاده از فرایند الکتروفنتون

خدیدجه اکبری ولشکلائی<sup>۱</sup>، شهلا فتحی<sup>۲\*</sup>، فرشته چکین<sup>۳</sup>

<sup>۱</sup> کارشناسی ارشد، گروه شیمی، دانشگاه آزاد اسلامی واحد آیت ... آملی، آمل، ایران

<sup>۲</sup> استادیار شیمی تجزیه، دانشگاه آزاد اسلامی واحد آیت ... آملی، آمل، ایران

<sup>۳</sup> دانشیار شیمی تجزیه، دانشگاه آزاد اسلامی واحد آیت ... آملی، آمل، ایران

Email: fathi\_shahla@yahoo.com

### چکیده

ورود آنتی بیوتیک ها از راه های مختلف به محیط های طبیعی مانند آب و خاک به عنوان یک تهدید برای انسان ها و محیط زیست مطرح است. هدف از این مطالعه، بررسی کارایی روش الکتروفنتون در حذف آنتی بیوتیک سفیکسیم از محلول های آبی می باشد. روش الکتروفنتون برای حذف سفیکسیم در یک سلول الکترولیزی حاوی دو الکتروود آهن به مساحت های ۱۰ سانتی متر مربع و در دمای اتاق انجام شد. همگن سازی محلول الکترولیت توسط یک همزن مغناطیسی انجام شد. جذب محلول دارو قبل از الکترولیز و زمان های مختلف در حین الکترولیز با استفاده از یک اسپکتروفتومتر UV-Vis اندازه گیری شد. فاکتورهای موثر بر حذف دارو مانند غلظت  $\text{H}_2\text{O}_2$ ، pH و دانسیته جریان بهینه سازی شدند. نتایج حاصل مشخص نمود که کارایی فرایند تحت تاثیر متغیرهای مورد مطالعه قرار دارد. بهترین راندمان حذف دارو در شرایط بهینه ( غلظت ۱۲ میلی مولار  $\text{H}_2\text{O}_2$  ، pH برابر با ۴ و دانسیته جریان ۱۵  $\text{mAcm}^{-2}$ ) بعد از یک ساعت الکترولیز ۹۷٪ بدست آمد. در pH های قلیایی راندمان حذف سفیکسیم به شدت کاهش می یابد.

واژگان کلیدی: حذف سفیکسیم، الکتروفنتون، الکترولیز، هیدروژن پراکسید، الکتروود آهن

## مقدمه

آنتی‌بیوتیک‌ها گروهی از داروهای قوی هستند که برای درمان بیماری‌های عفونی انسان‌ها و حیوانات استفاده شده و حدود ۱۵ درصد از کل داروهای مصرفی دنیا را به خود اختصاص می‌دهند. آنتی‌بیوتیک‌ها پس از مصرف به مقدار اندکی در بدن متابولیزه شده و در نتیجه بخش عمده‌ای از این ترکیبات از بدن دفع شده و وارد محیط‌زیست می‌شوند. تاکنون مطالعات مختلفی نشان داده‌اند که آنتی‌بیوتیک‌ها در محیط‌های طبیعی از قبیل آب‌های سطحی، آب‌های زیرزمینی، خاک و همچنین فاضلاب‌ها و آب آشامیدنی حضور دارند [۱]. آنتی‌بیوتیک‌ها از دو طریق کلی اثرات منفی بر محیط‌زیست می‌گذارند؛ یکی تأثیر بر جانوران غیر هدف و دیگری ایجاد مقاومت در باکتری‌ها. استاندارد سازمان حفاظت محیط‌زیست آمریکا برای حضور این ترکیبات در پساب تصفیه‌شده ۱ میلی‌گرم در لیتر می‌باشد.

روش‌های مختلفی برای حذف آنتی‌بیوتیک‌ها از محیط‌های آبی پیشنهاد شده‌اند، نظیر جذب سطحی [۲ و ۳]، پرتو فرابنفش [۴]، انعقاد و انواع روش‌های اکسیداسیون پیشرفته [۵-۶] و نانوفیلتراسیون [۷-۸]. این روش‌ها با وجود داشتن مزایا، معایبی نیز دارند که استفاده از آن‌ها را محدود می‌سازد. از این بین فرایند اکسیداسیون پیشرفته فرایندی است شیمیایی و غیرانتخابی که با تولید رادیکال‌های هیدروکسیل در محل، و حمله این رادیکال‌ها به ترکیبات شیمیایی موجود در پساب، سریعاً منجر به اکسیداسیون و تجزیه آن‌ها می‌گردد. این رادیکال‌ها بسیار اکسیدکننده بوده و طول عمر کمی دارند و لذا در محل تولید می‌گردند [۹].

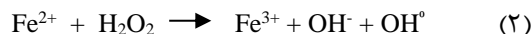
روش‌های الکتروشیمیایی، به‌عنوان یکی از فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته، به‌طور مؤثری برای تجزیه مواد آلی در محلول‌های آبی استفاده شده‌اند. فرایند اکسیداسیون الکتروشیمیایی یک تکنیک نسبتاً جدید و موثر، انتخابی، اقتصادی و یک جایگزین پاک، برای کاهش و حذف ترکیبات

آلی بخصوص آلاینده‌های آلی مقاوم به تصفیه بیولوژیکی است که در دهه ۹۰ توسعه یافت و به صورت موفقیت آمیزی برای تصفیه فاضلاب‌های صنعتی مختلف استفاده شده است [۱۰ و ۱۱]. از دیگر مزیت‌های این فرایندها، زمان کوتاه انجام واکنش، تولید لجن بسیار کم، عدم مصرف مواد شیمیایی یا مصرف کم آنها و توانایی تخریب آلاینده‌های مقاوم مانند ترکیبات آلی پلی‌آروماتیک است. این فرایندها در سالهای اخیر به‌عنوان تکنولوژیهای دوست‌دار محیط‌زیست و فرایندهای پاک در تصفیه انواع فاضلاب‌ها مورد استفاده قرار گرفته‌اند.

رادیکال هیدروکسیل یکی از قوی‌ترین اکسیدکننده‌ها می‌باشد که پتانسیل اکسایش آن  $2/78$  ولت می‌باشد. در فرایند الکتروشیمیایی، رادیکال هیدروکسیل به دو صورت تولید می‌شود. در روش اول که به روش مستقیم معروف است از طریق واکنش‌هایی که در سطح آند رخ می‌دهد، رادیکال هیدروکسیل تولید می‌شود. در این روش، رادیکال‌ها از طریق واکنش‌های اکسیداسیون آب شکل می‌گیرند (معادله ۱).

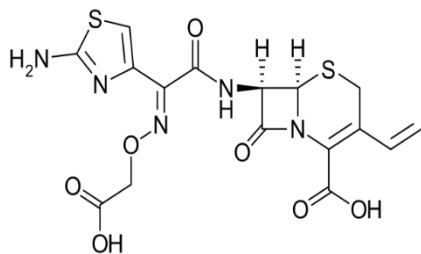


در روش دوم که به روش غیر مستقیم معروف است، از واکنش فنتون برای تولید رادیکال هیدروکسیل استفاده می‌شود. در این روش، از یون آهن دو ظرفیتی ( $\text{Fe}^{2+}$ ) و هیدروژن پراکسید جهت تولید رادیکال هیدروکسیل استفاده می‌شود (معادله ۲).



اگر در فرایند فنتون به جای استفاده از یون آهن دو ظرفیتی، از جریان الکتریسته و الکترودهای آهن جهت تولید یون دو ظرفیتی آهن استفاده شود، این فرایند الکتروفنتون نامیده می‌شود [۱۲]. این فرایند به دلیل ویژگی‌هایی مانند هزینه نسبی کمتر، راه‌اندازی و راهبری ساده و راندمان بالا مورد توجه محققین قرار دارد.

مطالعات نشان داده است که در طی دهه گذشته، این تکنیک در جهت تصفیه فاضلاب‌های آلوده به آفت‌کشهای سمی و مقاوم، رنگ‌های آلی سنتزی، محصولات مراقبت‌های فردی و دارویی و طیف وسیعی از آلاینده‌های صنعتی بسیار موثر

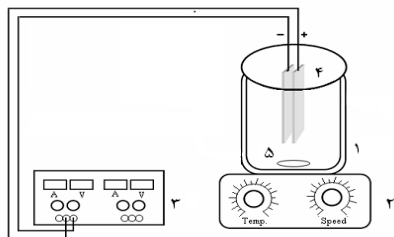


شمارتیک ۱- ساختار شیمیایی سفیکسیم

## مواد و روش‌ها

### ۱- مواد شیمیایی و دستگاهها

از هیدروژن پراکسید ۳۰٪ و سولفات سدیم ۹۹٪ ساخت شرکت مرک آلمان استفاده گردید. سلول الکتروشیمیایی استوانه‌ای، دارای حجم ۱۰۰ ml و دارای دو الکتروود آهن بوده که به دستگاه مبدل جریان MEGATEK MP-3003D جهت انجام الکترولیز متصل گردیدند. هر الکتروود از برش دادن ورق فولاد ساختمانی یا فولاد کم کربن با نام تجاری st<sub>37</sub> که ۹۹٪ آن آهن است به صورت صفحه‌ای با عرض ۲ و طول ۲/۵ سانتی‌متر و ضخامت ۱ میلی‌متر تهیه شد که مجموع مساحت دو روی آن در هر الکتروود ۱۰ سانتی‌متر مربع بوده است. شکل ۱ طرح سلول الکتروشیمیایی به کار رفته را نشان می‌دهد. از آمپرسنج دیجیتال سانوا CD770 جهت کنترل شدت جریان الکترولیز استفاده شد. از دستگاه اسپکتروفوتومتر UV-2100 تایوان، جهت بررسی جذب محلول طی فرایند الکترولیز استفاده گردید. از دستگاه pH ۸۰۲۷ متر متروهم ساخت سوئد برای تنظیم pH محلول‌ها استفاده شد.



شکل ۱- طرح سلول الکتروشیمیایی به کار رفته برای فرایند

الکتروفتون. ۱- سلول الکتروشیمیایی، ۲- همزن مغناطیسی، ۳- دستگاه

مبدل جریان، ۴- الکترودهای آهن، ۵- مگنت

است. در تحقیقی که در سال ۲۰۰۷ انجام شد، از فرایند الکتروفتون در حذف متیل پاراتیون استفاده شد [۱۳]. در سال ۲۰۰۸ این تکنیک در تصفیه علف کش پیکلورام بکار گرفته شد و طی آن علفکش پیکلورام طی الکترولیز ۸ ساعته به مقدار ۹۵ درصد حذف شد [۱۴]. در سال ۲۰۱۱ با استفاده از فرایند الکتروفتون اسید کوماریک موجود در فاضلاب صنایع روغن سازی مورد تصفیه قرار گرفت [۱۵]. در سال ۲۰۱۲ از فرایند الکتروفتون جهت حذف رنگ و آمونیاک از شیرابه محل دفن بهداشتی مواد زائد استفاده شد. راندمان حذف رنگ و آمونیاک طی این مطالعه به ترتیب ۹۸/۶ و ۵۵/۲ درصد بدست آمد [۱۶].

همچنین در سال ۲۰۱۶ تاثیر مواد آندی بر کارآمدی فرایند الکتروفتون در حذف آنتی بیوتیک سولفامتازین مورد بررسی قرار گرفت [۱۷]. باقری و همکاران در سال ۱۳۹۱ طی فرایند الکتروفتون به حذف فرمالدهید دست یافتند [۱۸]. در سال ۲۰۱۵ حیدری و همکاران با استفاده از روش الکتروفتون موفق به حذف پنتاکلروفنول از محلول‌های آبی شدند [۱۹]. سفیکسیم (شمارتیک ۱) یک آنتی‌بیوتیک سفالوسپورینی است. این آنتی‌بیوتیک‌ها در درمان طیف وسیعی از بیماری‌های عفونی باکتریایی مثل عفونت‌های تنفسی، عفونت‌های پوست و بافت نرم و عفونت‌های استخوان یا مفاصل، و عفونت‌های ادراری مؤثر می‌باشند. این آنتی‌بیوتیک همچنین ممکن است برای پیشگیری از ایجاد عفونت در افرادی که تحت عمل جراحی قرار گرفته‌اند یا در افرادی که به هر علتی مستعد عفونت هستند، استفاده شود [۲۰]. تا به حال حذف سفیکسیم به روش الکتروشیمیایی گزارش نشده است، تعداد محدودی از مقالات به حذف سفیکسیم از محلول‌های آبی پرداختند که بیشتر از روش جذب سطحی یا اکسایش شیمیایی استفاده شده است. در این کار تحقیقاتی حذف سفیکسیم از محلول‌های آبی توسط روش الکتروفتون مورد بررسی قرار می‌گیرد.

## ۲- روش انجام الکترولیز

محلول ۴۵ ppm دارو شامل ۲۰ ppm سولفات سدیم و غلظت‌های متفاوت  $H_2O_2$  با pH تنظیم شده برای فرایند الکتروفنتون به کار رفت. لازم به ذکر است که یون‌های آهن لازم برای الکتروفنتون از اکسید شدن الکتروشیمیایی الکتروود آهن در آند فراهم می‌گردد. الکتروودها به فاصله ۲ سانتی‌متر از همدیگر در محلول حاوی دارو قرار گرفتند و به وسیله سیم‌های رابط به قطب مثبت و منفی دستگاه مبدل جریان متصل گردیدند. آمپرسنج به صورت سری در مدار قرار گرفت و شدت جریان مورد نظر با تغییر ولتاژ به سیستم اعمال شد. جذب محلول‌ها قبل از الکترولیز و در زمان‌های مختلف الکترولیز توسط دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج ۲۸۵ نانومتر اندازه‌گیری شد. همچنین در طی الکترولیز، محلول توسط یک همزن مغناطیسی مخلوط گردید.

## نتایج و بحث

### ۱- بهینه‌سازی غلظت $H_2O_2$

از آنجایی که غلظت  $H_2O_2$  یک عامل تأثیرگذار در فرایند الکتروفنتون می‌باشد، محلول‌های مختلفی با غلظت ثابت دارو و حاوی غلظت‌های مختلف  $H_2O_2$  تهیه گردید و پس از تنظیم pH محلول در برابر pH ۳ (طبق مقالات) محلول تحت الکترولیز با الکتروودهای آهن قرار گرفت. نتایج بدست آمده در جدول ۱ ارائه شده است. به علت بالا بودن غلظت اولیه دارو، مقدار جذب اولیه بالاست ولی پس از انجام الکترولیز به تدریج میزان جذب کاهش می‌یابد؛ درصد حذف دارو از فرمول زیر محاسبه گردید.

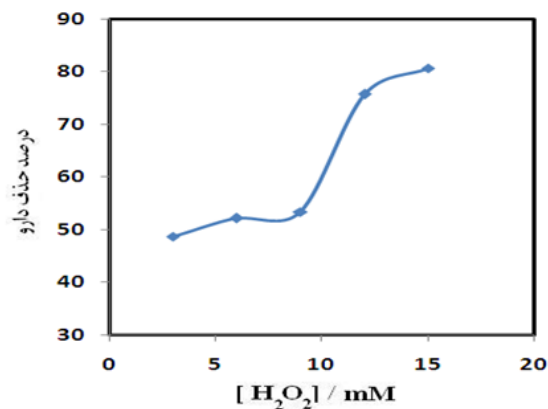
$$\text{درصد حذف دارو} = \frac{\text{جذب ثانویه} - \text{جذب اولیه}}{\text{جذب اولیه}} \times 100$$

نمودار تغییرات درصد حذف دارو با غلظت  $H_2O_2$  (شکل ۲) نشان می‌دهد که با افزایش غلظت  $H_2O_2$ ، درصد حذف بیشتر شده، اما از غلظت ۱۲ میلی‌مولار به بعد تأثیر چندانی ندارد. علاوه بر این، غلظت‌های خیلی بالا خود منجر به آلودگی آب

می‌شود. بنابراین غلظت ۱۲ mM به عنوان غلظت بهینه برای انجام فرایند الکتروفنتون در ادامه مطالعات انتخاب شد.

جدول ۱- نتایج مربوط به فرایند الکتروفنتون در غلظت‌های مختلف  $H_2O_2$  دانسیته جریان  $5 \text{ mA/cm}^2$ ، مدت زمان الکترولیز ۶۰ دقیقه

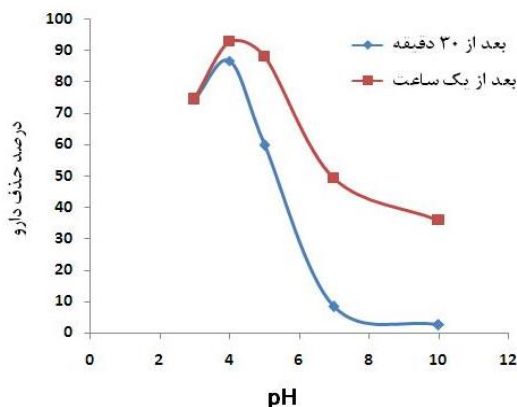
درصد حذف دارو	جذب ثانویه	جذب اولیه	غلظت $H_2O_2$ (mM)
۴۸/۶۳	۱/۷۱۸۳	۳/۳۴۵۰	۳
۵۲/۱۲	۱/۵۳۴۸	۳/۲۰۵۶	۶
۵۳/۳۸	۱/۴۶۲۹	۳/۱۳۸۰	۹
۷۵/۷۱	۰/۷۵۳۴	۳/۰۹۷۶	۱۲
۸۰/۶۲	۰/۵۹۹۴	۳/۰۹۳۲	۱۵



شکل ۲- نمودار تغییرات درصد حذف دارو برحسب غلظت اولیه  $H_2O_2$  در فرایند الکتروفنتون.

### ۲- بهینه‌سازی pH در فرایند الکتروفنتون

یکی دیگر از عوامل تأثیرگذار در فرایند الکتروفنتون pH محلول می‌باشد. از اینرو محلول‌های مختلفی با غلظت ثابت  $H_2O_2$  و دارو تهیه شد و pH آن در مقادیر متفاوت ۳، ۴، ۵، ۷ و ۱۰ تنظیم گردیدند. نتایج مربوط به الکترولیز در pH های مختلف در جدول ۲ نشان داده شده است. همانطور که از جدول ۲ و شکل ۳ مشخص است pH برابر با ۴ بهترین pH در این آزمایش



شکل ۳- نمودار تغییرات درصد حذف دارو بر حسب pH محلول در فرایند الکتروفتون

### ۳- بررسی تاثیر دانسیته جریان در فرایند الکتروفتون

محلول در شرایط بهینه تهیه شد و با دانسیته جریان های مختلف مورد الکترولیز قرار گرفت. نتایج در جدول ۳ ارائه شده است. همانطور که مشاهده می شود با افزایش دانسیته جریان در مدت زمان یک ساعت راندمان حذف به مقدار کمی افزایش داشته است البته شدت جریان بالاتر منجر به هزینه بیشتر الکتروسیته نیز می شود.

جدول ۳- تاثیر دانسیته جریان بر درصد حذف دارو در فرایند الکتروفتون

درصد حذف	دانسیته جریان
٪۹۲	۵
٪۹۵	۱۰
٪۹۷	۱۵

### ۴- بررسی تاثیر زمان در فرایند الکتروفتون

به منظور بررسی تأثیر مدت زمان الکترولیز، محلولی با شرایط بهینه تهیه شد و جذب اولیه آن ثبت گردید سپس در فواصل زمانی مشخص پس از شروع الکترولیز (الکتروفتون) از محلول

می باشد. در pH قلیایی، سرعت حذف دارو کاهش می‌یابد. در واقع در pH قلیایی، یون‌های آهن ایجاد شده از اکسایش الکترو، به صورت هیدروکسید آهن رسوب می‌کنند و بنابراین نمی‌توانند در فرایند فنتون (معادله (۲)) و تولید رادیکال هیدروکسیل شرکت کنند. لازم به ذکر است که در محیط قلیایی، پس از شروع الکترولیز به تدریج رسوبات تیره رنگی در محلول رویت می‌شود که مربوط به هیدروکسید آهن می‌باشد.

جدول ۲- نتایج مربوط به فرایند الکتروفتون در pH های مختلف. غلظت ۱۲ میلی‌مولار. دانسیته جریان ۵ mA/cm<sup>2</sup>.

pH	جذب اولیه	مدت زمان الکترولیز	جذب ثانویه	درصد حذف دارو
۳	۳/۰۲۰۱	۳۰ دقیقه	۰/۷۷۳۷	۷۴/۳۸
		۶۰ دقیقه	۰/۷۶۸۳	۷۴/۵۶
۴	۳/۰۹۷۰	۳۰ دقیقه	۰/۴۱۰۳	۸۶/۷۵
		۶۰ دقیقه	۰/۲۲۳۲	۹۲/۷۹
۵	۳/۰۸۹۴	۳۰ دقیقه	۱/۲۴۳۰	۵۹/۷۷
		۶۰ دقیقه	۰/۳۶۷۹	۸۸/۰۹
۷	۳/۰۹۹۰	۳۰ دقیقه	۲/۸۴۱۷	۸/۳
		۶۰ دقیقه	۱/۵۶۶۵	۴۹/۴۵
۱۰	۳/۰۱۹۲	۳۰ دقیقه	۲/۹۴۳۷	۲/۵۰
		۶۰ دقیقه	۱/۹۳۰۴	۳۶/۰۶

البته همانطور که از داده های جدول مشخص است در مدت زمان طولانی تر، حتی در pH برابر با ۱۰ نیز ۳۶ درصد دارو حذف می‌شود که می‌تواند به علت انعقاد الکتروشیمیایی<sup>۱</sup> دارو روی رسوبات هیدروکسید آهن باشد.

<sup>1</sup>Electrocoagulation

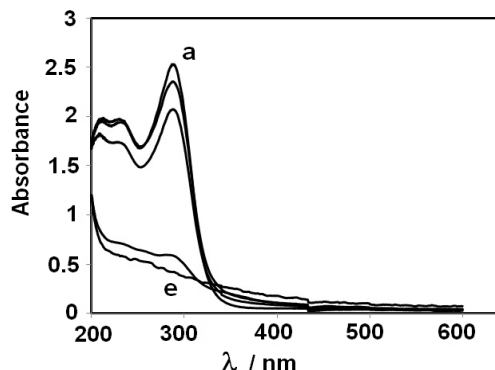
بدست می آید همچنین میزان حذف دارو در pH های اسیدی نسبت به pH های قلیایی بیشتر است.

جدول ۴- مقایسه کارایی روش پیشنهادی با روش های گزارش شده در

مقالات

منبع	روش کار	غلظت سفیکسیم	ماکزیمم درصد حذف دارو	مدت زمان لازم
[۲۰]	اکسایش پیشرفته ( نور فرابنفش + هیدروژن پروکساید)	۹	۱۰۰	۳ ساعت
		۱۸	۲۵	
		۲۷	۲۰	
[۲۱]	اکسایش پیشرفته (نور فرابنفش+ پروکسی دی سولفات $S_2O_8^{2-}$ )	۱۰	۹۱/۸	۳۰ دقیقه
کار حاضر	الکتروفنتون	۴۵	۹۷	۱ ساعت

نمونه برداری شد و پس از صاف کردن محلول توسط سانتریفوژ، طیف جذبی آنها ثبت گردید. همانطور که در شکل ۴ مشاهده می شود با گذشت زمان پیک جذبی به تدریج کاهش می یابد.



شکل ۴- طیف جذبی محلول حاوی ۴۵ppm سفیکسیم، در زمان های مختلف الکترولیز: (a) ۰، (b) ۱۵، (c) ۳۰، (d) ۴۵ و (e) ۶۰ دقیقه

## منابع

- [1] Nasseh, N., Barikbin, B., Nasseri, M.A., J. Nurse and Physician within War. 2016, 4, 50-62. [In Persian].
- [2] Gao, Y., Li, Y., Zhang, L., et al. *J. Colloid Interf. Sci.*, **2012**, 368, 540-46.
- [3] Wan-RU, C., Ching-Hua, H., *Chemospher* **2010**, 79, 779-785.
- [4] Dantas, R.F., Rossiter, O., Teixeira, A.K.R., et al, *Chem. Engin. J.*, **2010**, 158, 143-147.
- [5] Yazdanbakhsh, A.R., Sheykhmohammadi, A., Manshori, M., et al. *J. Water Wastwater*, **2012**, 23, 22-29. [In Persian].
- [6] Jianming, X.Z.C.Z.L., Chin. J. Environ. Engin., **2009**, 3, 109-119.
- [7] Zazouli, M.A., Ulbricht, M., Nasseri, S., et al. *J. Environ. Heal. Sci. Engin.*, **2010**, 7, 15-24.
- [8] Zazouli, M.A., Susanto, H., Nasseri S, Ulbricht, M., *Water res.*, **2009**, 43, 3270-3280.
- [9] Homem, V., Santos, L., *J. Environ. Manag.*, **2011**, 92, 2304-2347.
- [10] Ventura, A., Jacquet, G., Bermond, A., et al. *Water res.*, **2002**, 36, 3517-3522 .

## ۵- مقایسه کارایی روش پیشنهادی با روش های

### گزارش شده در مقالات

مطالعات نشان می دهد که تاکنون روش های الکتروشیمیایی برای حذف داروی سفیکسیم گزارش نشده و معمولاً از روش جذب سطحی استفاده شده است. همانطور که در جدول ۴ مشاهده می شود با استفاده از روش پیشنهادی در این کار تحقیقاتی در مدت زمان کوتاهتر غلظت های بالاتری از سفیکسیم از محلول حذف می شود.

### نتیجه گیری

با توجه به نتایج حاصل از این مطالعه ، روش الکتروفنتون توانایی حذف آنتی بیوتیک سفیکسیم را داراست و در غلظت های مورد آزمایش و در شرایط بهینه ، حذف ۹۷ درصدی دارو بدست آمد. بر اساس این نتایج، مهمترین عامل در حذف آنتی بیوتیک سفیکسیم به وسیله فرایند الکتروفنتون، pH اولیه محلول است به طوری که در pH برابر با ۴، حداکثر حذف دارو

- [11] Hammami, S., Oturan, N., Bellakhal, N., *J. Electroanal. Chem.*, **2007**, 610, 75-84.
- [12] Malakootian, M., Asadi, M., Mahvi, A.H., *J. Inviromen. Sci. technol.*, **2015**, 16, 177-187. [In Persian].
- [13] Diagne, M., Oturan, N., Oturan, M.A., *Chemosphere*, 2007, 66, 841-848.
- [14] Ozcan, A., Şahin, Koparal, A.S., Oturan, M.A., *J. Hazard. Mater.*, **2008**, 153, 718-727.
- [15] Elaoud, S.C., Panizza, M., Cerisola, G., et al. *J. Electroanal. Chem.*, **2011**, 667, 19-23.
- [16] Shi, Y., Yu, H.C., Xu, D.Y., et al. *Adv. Mater. Res.*, **2012**, 347, 440-443.
- [17] Sopaj, F., Oturan, N., Pinson, J., et al. *Appl. Catal. B. Environ.*, **2016**, 199, 331-341.
- [18] Bagheri, A., Moussavi, G., Khavanin, A., *Scient. J. Kurdistan. Uni. Med. Sci.*, **2012**, 17, 72-81. [In Persian].
- [19] Heidari, Z., Motevasel, M., Jaafarzadeh, N.A., *Iran. J. Oil. Gas. Sci. Technol.*, **2015**, 4, 76-87.
- [20] Belghadr, I., Shams Khorramabadi, G., Godini, H., et al. *Desalin water treat.*, **2015**, 55, 1068-1075.
- [21] Rasoulifard, M.H., Ghalamchi, L., Azizi, M., et al. *J. Appl. Chem. Res.*, **2015**, 9, 61-72.