

# **Eliminación multicomponente de sulfonamidas del agua mediante carbón activado**

## **Single and ternary removal of sulfonamidas from water using activated carbon**

*Juan Carlos Serna-Carrizales<sup>1</sup>, Raúl Ocampo-Pérez<sup>2</sup>, Pedro Alonso-Dávila<sup>3</sup>, Nahum Medellín<sup>4</sup>*

<sup>1,2,3</sup> Facultad de Ciencias Químicas, Universidad Autónoma de San Luis Potosí, Av. Dr. Manuel Nava Martínez No. 6 Zona Universitaria, C.P. 78210 San Luis Potosí, México.

<sup>4</sup> Centro de Investigación y Estudio de Posgrado, Facultad de Ingeniería, Universidad Autónoma de San Luis Potosí, Av. Dr. Manuel Nava Martínez No. 8 Zona Universitaria Poniente, C.P. 78290 San Luis Potosí, México.

Tel. 4442340251, correo: <sup>1</sup>[195043@alumnos.uaslp.mx](mailto:195043@alumnos.uaslp.mx), <sup>2</sup>[raul.ocampo@uaslp.mx](mailto:raul.ocampo@uaslp.mx)

**Palabras clave:** Sulfonamidas, adsorción, multicomponente, CAG F400.

**Key words:** sulfonamides, adsorption, multi-component, CAG F400.

## **INTRODUCCIÓN, METODOLOGIA, RESULTADOS Y DISCUSION Y CONCLUSIONES**

### **Introducción**

Los contaminantes emergentes son un problema actual ya que no son eliminados durante el tratamiento convencional del agua debido a sus propiedades fisicoquímicas, y por lo tanto, su concentración en el agua se incrementa continuamente pudiendo ser un grave problema para los seres vivos en corto plazo (Peña y col., 2019). Entre los contaminantes emergentes más conocidos sobresalen los antibióticos, que son fármacos utilizados ampliamente para curar enfermedades infecciosas (Rasheed y col., 2019). Entre los antibióticos más destacados se encuentran las sulfonamidas, las cuales son utilizadas para combatir enfermedades del tracto urinario y como suplemento alimenticio en la ganadería. Estas aplicaciones generan una elevada cantidad de residuos de estos fármacos que posteriormente llegan a los mantos acuíferos debido a su pobre eliminación en las plantas de tratamiento de agua (Zhang y col., 2018). Por esta razón, es necesario investigar tecnologías eficientes para la eliminación de este tipo de contaminantes que sean de bajo costo y amigables con el medio ambiente.

Entre las tecnologías más eficientes y fácilmente implementables en plantas de tratamiento existentes está la adsorción. La cual emplea como medio de captura un sólido altamente poroso con propiedades químicas idóneas para llevar a cabo la eliminación de los contaminantes deseados. Sin embargo, las aguas residuales son matrices complejas donde coexisten más de un tipo de contaminante o bien una familia de contaminantes. Este hecho puede modificar los mecanismos de adsorción y/o los mecanismos de difusión presentes de manera individual sobre la superficie del adsorbente. Por lo anterior, en esta Tesis se plantea realizar un estudio a profundidad que permita elucidar el comportamiento del material adsorbente en sistemas multicomponente.

## Metodología Experimental

*Adsorbato:* Se emplearon tres sulfonamidas de grado analítico suministradas por Sigma Aldrich con pureza  $\geq 99\%$ , sulfametoxazol (SMX), sulfametazina (SMT) y sulfadiazina (SMD).

*Adsorbente:* Fue utilizado carbón activado granular (CAG) elaborado por Calgon Carbon Corporation y comercializado como Filtrasorb 400 (F400). Se utilizó un radio promedio de partícula de 0.542 mm, se caracterizó química y texturalmente para determinar sus características.

*Caracterización química y textural:* La caracterización química consta de la concentración de sitios activos, la cual se determinó por medio del método de titulación ácido-base propuesto por Boehm (1996). Además, de la determinación de la carga superficial por medio del procedimiento de titulación ácido-base propuesto por Kuzin y Loskov (1996). Por otro lado, la caracterización textural se determinó por medio de una fisisorción de nitrógeno a 77 K.

*Equilibrio de adsorción individual y multicomponente:* Para obtener los datos experimentales del equilibrio de adsorción individual y ternario de las sulfonamidas sobre CAG se utilizó un adsorbente de lote, el cual consiste en un tubo de centrifuga de 50 mL, se agregó una solución individual o ternaria de concentración inicial conocida de las sulfonamidas y una cierta masa de adsorbente. Posteriormente, los adsorbentes se colocaron en una gradilla que se sumergió parcialmente en un baño a temperatura constante, la solución se dejó en contacto con el CAG por un periodo de 21 días. Pasando este tiempo se tomó una alícuota para analizar la concentración final de sulfonamida. El efecto de las variables de operación para el sistema ternario se estudió por medio de un diseño de experimentos de superficie de respuesta, usando valores mínimos y máximos de 2 y 10 para pH, 10 y 40 °C para temperatura y 0.02 y 0.24 mmol/L para concentración, se eligió un diseño de experimentos tipo Box-Behnken compuesto por 5 factores con 3 repeticiones del punto central. Finalmente, por medio de la concentración final de la sulfonamida se obtuvo por medio de un balance de masa como el mostrado a continuación:

$$q = \frac{V(C_0 - C)}{m} \quad (1)$$

Para el sistema multicomponente se obtuvo mediante la correlación siguiente:

$$q_T = q_{SMD} + q_{SMT} + q_{SMX} \quad (2)$$

*Velocidad de adsorción individual y multicomponente:* Los datos experimentales de las curvas de decaimiento de la concentración individuales o multicomponente se obtuvieron en un adsorbedor de lote de canastillas rotatorias, este adsorbedor está constituido por un matraz de tres bocas con capacidad de 1 L, en el que se añade una solución individual o multicomponente de concentración inicial conocida, contiene dos canastillas porosas de acero inoxidable donde se coloca el adsorbente y están conectadas a un rotor que proporciona la agitación al sistema. La masa que se agregan a estas canastillas corresponde a aproximadamente 0.4g de material. La temperatura del adsorbedor y pH de la solución se mantienen constantes ya que el reactor se encuentra sumergido en un baño que se mantiene a temperatura constante con ayuda de un recirculador, a una velocidad de 200 rpm. La variación de la concentración en función del tiempo dentro del reactor se obtuvo tomando alícuotas de 1 mL en distintos intervalos de tiempo hasta que se alcanzó el equilibrio.

*Adsorción en régimen dinámico:* El sistema consiste en un recipiente de alimentación con capacidad de 32 L, al que se le agregó una solución individual o multicomponente de concentración inicial conocida de SMD, SMT, SMX. La solución se mantuvo en constante agitación por medio de un agitador magnético. Con ayuda de una bomba peristáltica la solución se alimentó en forma ascendente a una columna de acrílico de 9.34 cm de altura y 1.11 cm de diámetro interior y a un flujo volumétrico de 3 mL/min. La columna se empacó con una masa determinada de CAG, seguido de unas perlas de vidrio de 4 mm de diámetro para completar el empaque. A la salida de la columna se colectó periódicamente 6 mL de solución en tubos de ensayo con capacidad de 9 mL a diversos intervalos de tiempo.

## Resultados y discusión

Los resultados evidenciaron que el carbón activado tiene un área específica BET de 691 m<sup>2</sup>/g y está constituido principalmente por microporos. Además, se encontró que posee una mayor cantidad de sitios básicos (0.486 meq/g) resultando en un punto de carga cero de 9.43. Los resultados del equilibrio de adsorción individual se interpretaron de una mejor manera con el modelo de Praunitz-Radke. Las máximas capacidades de adsorción encontradas fueron de 1.3 mmol/g para SMX, 0.71 mmol/g para SMT y 1.0 mmol/g para SMD a pH de 6 y T de 25 °C. Por consiguiente, el carbón F400 presentó una mayor afinidad hacia el SMX debido a que es una molécula aceptora de electrones por los grupos funcionales que contiene (anillo N y O-heteroaromático) y que el mecanismo está dado por interacciones π-π a las condiciones antes mencionadas. Por otro lado, en el estudio de adsorción multicomponente se encontró una capacidad de adsorción total de 2.41 mmol/g, es decir, capacidades mucho mayores que las obtenidas individualmente, lo cual sugiere que la adsorción se lleva a cabo por un mecanismo de adsorción en multicapa. Además, se confirmó que el carbón F400 presentó una afinidad superior para el SMX, seguido por el SMD y SMT, respectivamente. El estudio cinético de adsorción individual demostró que los datos experimentales se interpretaron de una mejor manera con el modelo cinético de pseudo segundo orden, cuyas constantes de velocidad variaron de 0.0544 a 0.0051 g/mmol min, 0.0224 a 0.0044 g/mmol min y 0.0503 a 0.0055 g/mmol min para SMD, SMT y SMX; respectivamente. En el estudio

multicomponente se encontraron valores similares de estas constantes, concluyendo que la velocidad de adsorción no se afecta por la presencia de más de una sulfonamida. El estudio dinámico permitió la caracterización de la columna de adsorción individual obteniendo capacidades de adsorción hasta el punto de saturación de 1.011 mmol/g para SMD, 0.655 para SMT y 1.146 para SMX, mientras que para el estudio multicomponente se obtuvieron valores de 0.306 mmol/g para el SMT, 0.278 mmol/g para el SMD y 0.260 mmol/g para el SMX. Los datos experimentales de las curvas de ruptura se interpretaron adecuadamente con el modelo de Yan, debido a que este modelo toma como referencia una cinética de segundo orden. La razón del uso del adsorbente ( $U_r$ ) demostró que el CAG F400 es más eficiente para remover SMX seguido de SMD y SMT en forma individual, mientras que para la mezcla multicomponente es mejor para remover SMT seguido de SMD y SMX.

## **Conclusiones**

El equilibrio de adsorción individual demostró que el carbón F400 posee una afinidad similar por las tres sulfonamidas a bajas concentraciones en el equilibrio, pero a concentraciones mayores, la afinidad disminuyó en el orden siguiente: SMX>SMD>SMT debido a los mecanismos de adsorción presentes. Por ejemplo para el SMX su remoción se potencia debido al establecimiento de interacciones electrostáticas atractivas e interacciones dispersivas.

El equilibrio de adsorción multicomponente mostró que independientemente del pH y de la temperatura la capacidad de adsorción total del F400 fue mayor que la máxima capacidad de adsorción individual, lo que sugiere que en sistemas multicomponente las sulfonamidas se pueden estar adsorbiendo en multicapa.

El análisis de las curvas de decaimiento de la concentración mostró que el tiempo en alcanzar el equilibrio para las tres sulfonamidas es bastante similar cuando están presentes de manera individual como multicomponente y los resultados de las curvas de ruptura evidenciaron que individualmente el SMT es el que se satura más rápido, seguido del SMD y SMX, sin embargo, en multicomponente tienen un comportamiento similar, en donde los tres tienen un comportamiento similar en el tiempo de saturación.

## **Bibliografías**

C. Peña-Guzmán, S. Ulloa-Sánchez, K. Mora, R. Helena-Bustos, E. Lopez-Barrera, J. Alvarez, M. Rodriguez-Pinzón, Emerging pollutants in the urban water cycle in Latin America: A review of the current literature, *Journal of Environmental Management* 237 (2019) 408-423.

T. Rasheed, M. Adeel, F. Nabeel, M. Bilal, H.M.N. Iqbal, TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> decorated carbon nanostructured materials as a multifunctional platform for emerging pollutants removal, *Science of The Total Environment* 688 (2019) 299-311.

Y. Zhang, H. Ou, H. Liu, Y. Ke, W. Zhang, G. Liao, D. Wang, Polyimide-based carbon nanofibers: A versatile adsorbent for highly efficient removals of chlorophenols, dyes and antibiotics, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 537 (2018) 92-101.