

Remoción de amoxicilina de aguas contaminadas por electrocoagulación

Removal of amoxicillin from contaminated water by electrocoagulation

Recibido: 28 de Abril del 2023 | Aceptado: 19 de Agosto del 2023

Maribel Elvira Huaman Acuña¹, Ricky Anthony Mendoza Pachacutec² & Amanda Rosa Maldonado Farfan³

¹ *Escuela Profesional de Ingeniería Química. Universidad Nacional San Antonio Abad del Cusco – Perú*

² *Escuela Profesional de Ingeniería Química. Universidad Nacional San Antonio Abad del Cusco – Perú*

³ *Departamento Académico Ingeniería Química. Instituto de Investigación Universidad y Región. Universidad Nacional San Antonio Abad del Cusco – Perú*

ORCID: [0009-0001-2000-7467](https://orcid.org/0009-0001-2000-7467)

Correo electrónico: 183377@unsaac.edu.pe

Resumen

El objetivo de la investigación fue determinar el grado de reducción de amoxicilina en aguas contaminadas, mediante el proceso de electrocoagulación. La celda de electrocoagulación trabajó con electrodos de acero inoxidable y aluminio (cátodo y ánodo respectivamente), para una capacidad de 1 litro de agua contaminada. El proceso consistió en suministrar corriente eléctrica a través de los electrodos, haciendo que las partículas en suspensión pierdan su estabilidad y así formen aglomerados que flotaron hacia la superficie del agua, así como precipitados que cayeron hacia la base de la celda de electrocoagulación. Por tal motivo, la investigación es de tipo aplicativo con un enfoque cuantitativo y diseño experimental. Para lo cual se realizaron 9 experimentos donde se trabajaron con las variables de Voltaje (7, 9 y 11V) y pH (5, 6.5 y 8), lográndose remociones entre 47.2 mg/L hasta 7.9 mg/L, resultando que las dos variables en estudio fueron significativas. Se concluyó que a condiciones de pH=5 y V=11V, se logró la mayor remoción de la Demanda Química de Oxígeno (%DQO) 84.56% ;por tanto, es posible aplicar el tratamiento de electrocoagulación a aguas contaminadas con Amoxicilina.

Palabras clave: Electrocoagulación, Amoxicilina, aguas contaminadas, pH, voltaje, DQO.

Abstract

The objective of the investigation was to determine the degree of reduction of amoxicillin in contaminated water, through the electrocoagulation process. The electrocoagulation cell worked with stainless steel and aluminum electrodes (cathode and anode respectively), for a capacity of 1 liter of contaminated water. The process consisted of supplying electric current through the electrodes, causing the suspended particles to lose their stability and thus form agglomerates that floated towards the surface of the water, as well as precipitates that fell towards the base of the electrocoagulation cell. For this reason, the research is of an applicative type with a quantitative approach and experimental design. For which 9 experiments were carried out where they worked with the variables of Voltage (7, 9 and 11V) and pH (5, 6.5 and 8), achieving removals between 47.2 mg/L to 7.9 mg/L, resulting that the two variables in study were significant. It was observed that under conditions of pH = 5 and V = 11V, the highest removal of the Chemical Oxygen Demand (% COD_c) 84.56% was achieved; therefore, it is possible to apply electrocoagulation treatment to water contaminated with amoxicillin.

Keywords: Electrocoagulation, Amoxicillin, contaminated water, pH, voltage, COD.

Introducción

Los altos niveles de contaminación, a menudo se deben a elevadas concentraciones de productos farmacéuticos presentes en el ambiente (aire, suelo y agua), ya que en los últimos años se han desarrollado una gran cantidad de fármacos, mucho de los cuales incluso forman parte del estilo de vida de las personas (Gil et al., 2012).

Los productos farmacéuticos excretados por los seres humanos llegan hasta el 90% de la cantidad total de fármacos ingeridos, por lo que representa una grave amenaza para vida acuática. Las plantas de tratamiento de aguas residuales en varios países no tratan específicamente estos contaminantes porque se consideran pequeños e insignificantes, pero el consumo de medicamentos recetados y sin receta ha aumentado significativamente en los últimos años, esto más aun a causa de la pandemia del COVID-19 ya que la población comenzó a ingerir fármacos de manera incontrolable (GreenFacts, 2022).

Los diversos tratamientos de aguas residuales contaminadas por fármacos, también denominados “contaminantes emergentes”, se pueden caracterizar por diversas metodologías, las cuales varían en función al porcentaje de eficiencia en su remoción.

Existen diferentes investigaciones como el publicado por Yañez et al., (2021), quienes hicieron uso de electrodos de hierro con área efectiva de 20 cm², volumen de 30 mL y tiempo de 15 min. Se varió pH (3.8, 8 y 12) y la intensidad de corriente (100, 150, 200, 250, 300, 350 y 400 mA), se concluyó que la intensidad de corriente y el pH afectan a la remoción de la DQO y que a una intensidad de corriente de 400 mA y un pH de 8 se da un 68% de eliminación de la DQO. Así como Kaur et al., (2019) que mediante la técnica de oxidación electrocatalítica en el cual se hizo uso de un ánodo de titanio recubierto de dióxido de rutenio (Ti/RuO₂), con el cual se manipularon los parámetros del proceso como el pH, densidad de corriente (i), concentración de amoxicilina (C0) y la concentración de electrolito de soporte NaCl (S0); los cuales fueron de 2 - 9, 5.88 mA/cm², 1.47 - 50mg/l y 2g/l respectivamente, como consecuencia se tiene que a una densidad de corriente de 5.88 mA/cm² y un pH de 7 se obtuvo un 60% de ARE y un 48% de TRE los cuales se obtuvieron en un tiempo de 60 y 240 minutos de electrólisis respectivamente. Por otro lado, según la investigación de Burnes Velasquez & Martinez Tafur (2019), desarrollaron sus experimentaciones en un intervalo de 5 minutos cada uno y con tres repeticiones, teniéndose que el pH_{inicial} fue de 10.54, la concentración del ibuprofeno en agua fue de 40.2 ppm, por la cual concluyeron que la concentración de Ibuprofeno en agua fue reducida por el método de electrocoagulación con un pH de 7.53, una concentración de Ibuprofeno de 4.9 ppm, con una intensidad de 8 a 9 Amperios, voltaje de 12 V y con un tiempo de 20 min, logrando una reducción de la concentración en un 87.61% como promedio de eficiencia.

La amoxicilina es un fármaco que está incluido en el grupo de antibióticos, al cual se le considera como compuesto semisintético ya que es sintetizado en laboratorio en base de ingredientes primordiales de la penicilina; se hace uso de la amoxicilina para tratar las diversas infecciones que son causadas por actividad bacteriana. (Castro, 2022).

Su composición consta de 52.59 % de C, 5.24 % de H, 11.5 % de N, 21.89 % de O y 8.78 % de S. Los grupos funcionales con los que cuenta la molécula de amoxicilina son: ácido carboxílico (-COOH), cetona (-CO), azufre (S), amida (CONH₂), alcohol (-OH), amina (-NH₂) y metilo (-CH₃). En la figura 1 se muestra la molécula de la amoxicilina. (Padi (Padilla, 2014).

La electrocoagulación es un proceso electroquímico en el que las partículas contaminantes suspendidas, emulsionadas o disueltas en un medio acuoso se desestabilizan induciendo una corriente eléctrica en el agua a través de placas metálicas paralelas de diversos materiales, entre ellos hierro y aluminio los más utilizados, en estos electrodos se generan coagulantes por la disolución de iones, lo que permite aglomerar las partículas coloidales y por flotación, estas suben a la superficie. Por lo que de esta manera se puede retirar los flóculos de la superficie (Arango Ruiz, 2011).

Por tanto, la presente investigación tuvo como objetivo: Determinar el grado de reducción de amoxicilina en aguas contaminadas, mediante el proceso

de electrocoagulación.

Material y Métodos

La investigación presentada fue de tipo aplicativo de enfoque cuantitativo que presenta un diseño de carácter experimental y de alcance explicativo.

Materiales

Celda de electrocoagulación (Recipiente de vidrio, fuente de poder y electrodos de aluminio y acero inoxidable), balanza digital (Marca EUROTTECH. Modelo FSF-A2204B. Capacidad 200 g.), pH metro (Marca LUTRON YK-2001), cronómetro, Software STATGRAPHICS 18 - X64, vasos precipitados de 100 y 1000 mL, embudo, pipeta de 10 mL, fiola de 100 mL, bagueta, papel filtro, gotero, frascos ámbar, rotulador, luna de reloj, matraz aforado, espátula, hidróxido de sodio, NaCl y Agua destilada.

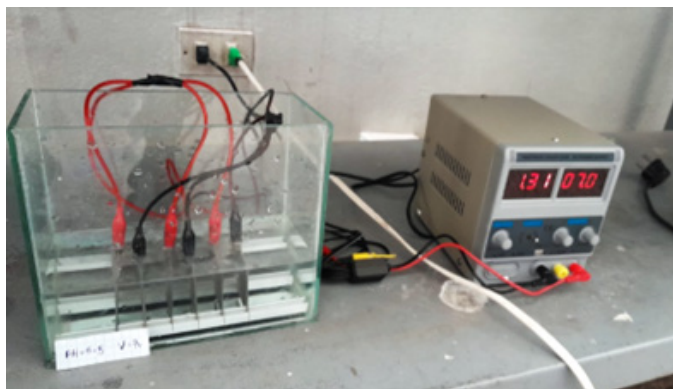
Métodos

La muestra de análisis estuvo compuesta por 10 L de una solución sintética de amoxicilina con una concentración de 47.2 ppm, considerando que la presencia de este contaminante es aproximadamente a esta concentración (Ramírez-Franco et al., 2019).

Preparación de la muestra. A la muestra se le agregó 2g/L de NaCl como electrolito de soporte, (Kaur et al., 2019), necesarios para desarrollar 9 tratamientos de 1L cada uno. Para esto se separaron 3L de muestra a un pH = 5. Asimismo, se prepararon 3L de muestra a pH = 6.5 y pH = 8 respectivamente, esto añadiendo gotas de NaOH.

Equipo de electrocoagulación. Se desarrolló en una celda de electrocoagulación de 1.5L de volumen, que contiene 6 electrodos (3 de acero inoxidable y 3 de aluminio) colocados intercaladamente a 2 cm uno con el otro; conectada a una fuente de poder; el cátodo a los electrodos de acero inoxidables y el ánodo a los electrodos de aluminio. Ver figura 1

Proceso de electrocoagulación: Consistió en tratar 1L de agua contaminada en la celda, se encendió la fuente de alimentación a un tiempo de contacto de 25 minutos, temperatura ambiente y a diferentes pH (5, 6.5 y 8) y voltajes (7, 9 y 11 V) establecidos en base a los resultados de las investigaciones de Yañez et al., (2021) y Burnes & Martinez, (2019).

Figura 1*Celda de electrocoagulación*

Finalizado el proceso se verificó el pH final y se observó la presencia de flocúlos suspendidos donde se tomaron capturas de dichos cambios.

Al termino de cada experiencia se tomó 20 mL de muestra tratada, la cual fue filtrada y dispuesta en botellas ámbar, las cuales fueron rotuladas y enviadas al laboratorio de Química Analítica Ambiental de la UNSA; para la medición indirecta de la concentración de Amoxicilina se realizó mediante la determinación de la DQO, considerando la muestra patrón inicial de 47.2 mg/L.

Cálculo de Porcentaje de la DQO Eliminada

El porcentaje de eliminación de DQO se calculó con la siguiente ecuación:

$$\% DQO_e = \left(\frac{DQO_i - DQO_f}{DQO_i} \right) * 100\% \quad \text{Ecuación 1}$$

Donde:

DQO_e : Valor de DQO eliminado, DQO_i : Valor de DQO inicial, DQO_f : Valor de DQO final y $\% DQO_e$: Porcentaje de DQO eliminado

El diseño experimental desarrollado fue factorial 3^2 , que corresponde a 9 experimentos.

El análisis estadístico de los datos consistió en determinar la significancia de las variables independientes pH y voltaje sobre el $\%DQO_e$ mediante la tabla de varianza ANOVA, así como el efecto de las variables independientes pH y voltaje sobre el $\%DQO_e$ mediante el diagrama de Pareto, y se encontró el modelo matemático que mejor represente los datos experimentales; estos datos fueron tratados con la ayuda del software Statgraphics.

Resultados y Discusión

Proceso de Electrocoagulación

Los resultados de remoción de amoxicilina (%DQO_e) mediante el proceso de electrocoagulación se muestra en la tabla 1.

Tabla 1

Resultados del % DQO_e mediante electrocoagulación

Tiempo de experimentación			25 minutos			
Nº experimento	pH	voltaje	DQO _i (mg/l)	DQO _f (mg/l)	DQO _e (mg/l)	% DQO _e
1	5	7	47.2	8.52	38.68	81.95%
2	6.5	7	47.2	18.87	28.33	60.02%
3	8	7	47.2	28.14	19.06	40.38%
4	5	9	47.2	7.29	39.91	84.56%
5	6.5	9	47.2	14.75	32.45	68.75%
6	8	9	47.2	25.62	21.58	45.72%
7	5	11	47.2	7.29	39.91	84.56%
8	6.5	11	47.2	12.96	34.24	72.54%
9	8	11	47.2	22.79	24.41	51.72%

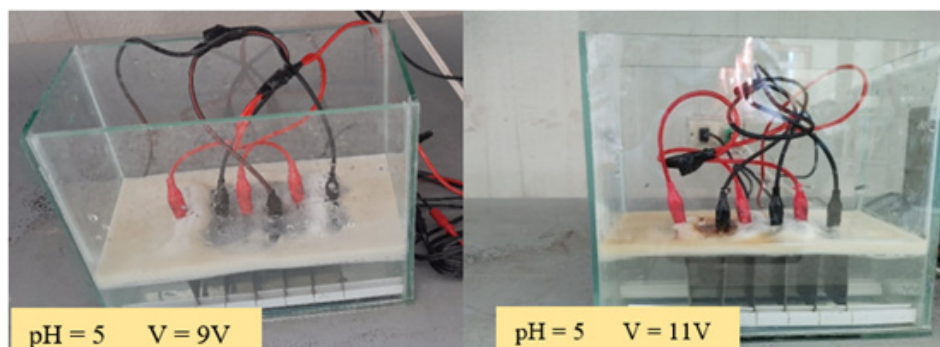
Nota: DQO: Demanda Química de Oxígeno.

De acuerdo a los resultados (tabla 1) del proceso de electrocoagulación de las muestras de agua contaminada con amoxicilina indica que en todos los experimentos se logra remover materia orgánica (expresada como %DQO_e), en un rango de 19.06 a 39.91 mg/L que se verifica en todos los casos por la presencia de flóculos. Se pudo observar así mismo que a mayor remoción de amoxicilina existe mayor presencia de flóculos y viceversa.

Se lograron mayores porcentajes de remoción en los experimentos 4 y 7 a un pH = 5 y voltaje de 9V y 11V respectivamente, los cuales presentaron 84.56% DQO_e lo cual indicaría que a este pH no ejercen influencia los voltajes mayores; por otro lado, se observa que a mayor voltaje se presenta mayor presencia de flóculos. Ver figura 2

Figura 2

Espesor de materia orgánica removida a pH=5; V=9V y V=11V.



Por tanto, los parámetros adecuados serán pH 5 y 9V; este resultado tiene similitud con los reportados por Burnes & Martinez (2019) quienes obtuvieron una eficiencia de remoción del 87.61% de ibuprofeno de aguas contaminadas, durante 20 min.

En la figura 2 se adquirió una mayor cantidad de flocos, esto porque se trabajó a mayores voltajes lo que generó mayor formación de coagulante y producción de burbujas de H₂; esto según Rojas et al., (2018) quienes indican que a un mayor voltaje se da mayor formación de materia orgánica floculada, la cual representa la cantidad de concentración de amoxicilina eliminada.

Otros resultados, indican mayores remociones como en la investigación publicada por Xinze Bian et al., (2019) donde se usaron un electrodo de PbO₂ dopado con Cu en el cual se obtuvo tasas de eliminación de amoxicilina alcanzando el 99.4% esto durante 150 minutos; esto se puede deber al material de los electrodos y al tiempo de contacto.

Sin embargo, la menor eliminación se dio en el experimento N° 3 a un pH = 8 y V = 7V con una remoción del 40.38%, como se muestra en la figura 2. Este resultado presenta similitud con la investigación publicada por Appia Foffie et al., (2016) quienes usaron como ánodo RuO₂ y cátodo de Ti, en el cual se obtuvo un rendimiento de degradación de la amoxicilina alcanzando más del 50% y es probable que se deba al material de los electrodos. De la misma forma en la investigación reportada por Kaur et al., (2019) usaron como ánodo Ti y cátodo RuO₂ se obtuvo una eficiencia de eliminación de amoxicilina de 60% en un intervalo de tiempo de 60 min de electrolisis, esto en función de la determinación de la DQO.

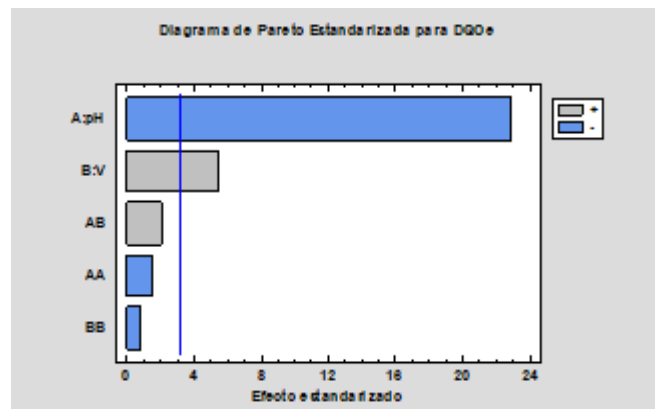
Análisis Estadístico del %DQO_e

El efecto de las variables independientes pH y voltaje sobre la variable dependiente %DQO_e se muestra en la tabla 2 y figura 3.

Tabla 2*Efectos estimados para DQO_e (%)*

Efecto	Estimado	Int. Confianza	V.I.F.
promedio	67.8356	+/- 4.80667	
A: pH	-37.85	+/- 5.26544	1.0
B: V	8.92333	+/- 5.26544	1.0
AA	-4.47667	+/- 9.12002	1.0
AB	4.215	+/- 6.44883	1.0
BB	-2.19667	+/- 9.12002	1.0

Nota. Intervalos de confianza del 95.0 de confianza (intervalos) basados en el error total con 3 g.l. ($t = 3.18245$), donde AA interacción pH*pH, AB interacción pH y V, BB interacción V*V)

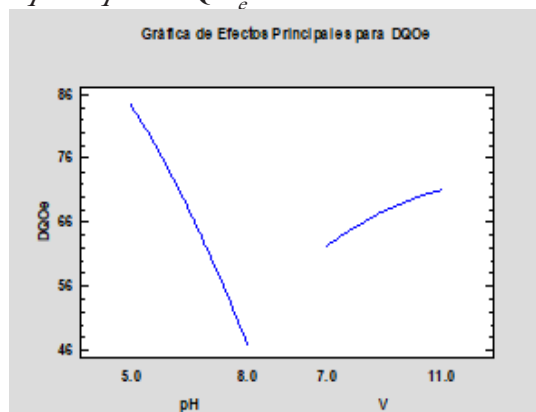
Figura 3*Diagrama de Pareto Estandarizada para DQO_e*

La tabla 2 y figura 3 muestran las estimaciones para cada uno de los efectos estimados y sus interacciones; así como también el intervalo de confianza de cada uno de los efectos.

Se puede indicar que cuando varía el pH de 5 a 8 se da un efecto inverso en relación con el %DQO_e en un 37.85% en promedio, es decir que a un mayor incremento del pH existe un menor %DQO_e y viceversa; por otro lado, cuando se varía el voltaje de 9 a 11V el %DQO_e se incrementa en un 89.23% en promedio, es decir que a mayor voltaje existe mayor %DQO_e; por lo tanto, la variable de mayor efecto sobre el %DQO_e es el pH, seguido del voltaje. Estas variaciones también se pueden visualizar en la figura 4.

Figura 4

Gráfica de Efectos Principales para DQO_e



El análisis de varianza (ANOVA) se presenta en la tabla 3.

Tabla 3

Análisis de Varianza para %DQO_e

Fuente	Suma de Cuadrados	Gl	Cuadrado Medio	Razón-F	Valor-P
A: pH	2148.93	1	2148.93	523.34	0.0002
B: V	119.439	1	119.439	29.09	0.0125
AA	10.0203	1	10.0203	2.44	0.2162
AB	17.7662	1	17.7662	4.33	0.1290
BB	2.41267	1	2.41267	0.59	0.4992
Error total	12.3186	3	4.10618		
Total (corr.)	2310.89	8			

La tabla ANOVA particiona la variabilidad del %DQO_e en piezas separadas para cada uno de los efectos. Entonces prueba la significancia estadística de cada efecto comparando su cuadrado medio contra un estimado del error experimental. En este caso, 2 efectos tienen un valor-P menor que 0.05, indicando que son significativamente diferentes de cero con un nivel de confianza del 95.0%. Por tanto, las dos variables en estudio (pH y V) son significativas. Estos resultados concuerdan con la investigación publicada por Yañez et al., (2021), quienes concluyeron que tanto el pH como la intensidad de corriente influyen significativamente en la remoción de la DQO.

Modelo Matemático

El modelo matemático que representa a los datos experimentales es:

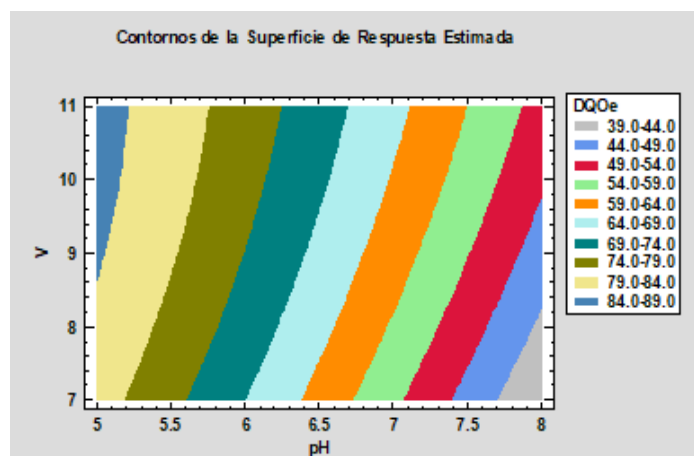
$$DQO_e = 106.59 - 6.00657 * pH + 2.60708 * V - 0.994815 * pH^2 + 0.7025 * pH * V - 0.274583 * V^2$$

Donde el estadístico R-Cuadrado indica que el modelo, así ajustado, explica 99.47% de la variabilidad en DQO_e . Por tanto, representa adecuadamente a los datos experimentales. Gráficamente el modelo matemático se muestra en la figura 5.

Contornos de Superficie

Figura 5

Contornos de la Superficie de Respuesta Estimada



En la figura 5 se observa los resultados de las remociones de la DQO, donde se muestran que las menores remociones de la DQO se obtuvieron a menores valores de V y valores mayores de pH en un rango de 39% a 44%. Por otro lado, cuando el proceso se realizó a mayor V y menor pH la remoción fue mayor en un rango de 84% a 89%. Los valores intermedios de pH y voltaje proporcionan remociones en un rango de 54% a 59%. Por tanto, se puede apreciar que las mayores remociones se pueden dar a pH 5 y en el rango de 9 a 11V.

Parámetros del Proceso

Los valores de pH y voltaje correspondientes al mayor porcentaje de remoción de amoxicilina (%DQO_e) son: pH = 5 y un voltaje = 9V para un %DQO_e = 84.56%, los cuales vendrían a constituir los parámetros del proceso.

En la formación de hidróxidos de hierro, los coloides se aglomeran, junto con algunos grupos funcionales de la amoxicilina; por otro lado, los iones de aluminio se combinan con los OH⁻ y reaccionan para formar especies monómeros.

Conclusiones

El tratamiento de agua sintética mediante el método de electrocoagulación permite eliminar a condiciones de pH = 5 y V = 9V, el 84.56% de la amoxicilina medida como %DQO_e.

Para el %DQO_e la variable independiente de mayor efecto es el pH seguido del voltaje, esto concuerda con el análisis de varianza (ANOVA) que indica que ambas variables son significativas. Se ha establecido el modelo matemático del proceso de electrocoagulación que permite hacer predicciones en el proceso; por tanto, es posible aplicar esta tecnología para recuperar aguas contaminadas con amoxicilina.

(Aguilar, 2015)

Referencias

- Aguilar, E. (2015). Evaluación de la eficiencia de una celda de electrocoagulación a escala. *Revista Del Instituto de Investigación de La, 18*(35), 69-73. Obtenido de doi: <https://revistasinvestigacion.unmsm.edu.pe/index.php/iigeo/article/view/11843/10>
- Appia Foffie, T. A., Gnamba corneli, Q. M., Kambire Ollo, Berte Mohamed, Sahi Placide, S., Sanogo Ibrahima, & Quattara Lassine. (2016). Electrochemical Oxidation of Amoxicillin in Its Commercial Formulation on Thermally Prepared RuO₂/Ti. *JOURNAL of ELECTROCHEMICAL SCIENCE and TECHNOLOGY*. doi: <https://doi.org/10.5229/JECST.2016.7.1.82>
- Arango Ruiz, A. (2011). Uso de electrocoagulación para la remoción de tartrazina en soluciones acuosas. *Produccion mas limpia, 6*(2), 58. Obtenido de http://www.scielo.org.co/scielo.php?script=sci_arttext&pid=S1909-04552011000200006
- Burnes, K., & Martinez, M. (2019). *Reducción de la concentración de Ibuprofeno en agua por electrocoagulación, a nivel de laboratorio, Lima-2019 [Universidad César Vallejo]*. In Universidad Cesar Vallejo. Lima. doi: <https://repositorio.ucv.edu.pe/handle/20.500.12692/36654>
- Castro, J. A. (2022). *Remocion electroquimicas de farmacos empleando un reactor continuo con electrodos modificados con óxidos de metales de transición*. Santiago de Querétaro, México. Obtenido de <https://cideteq.repositorioinstitucional.mx/jspui/bitstream/1021/478/1/Tesis%20JORG>
- Gil, M. J., Soto, A. M., Usma, J. I., & Gutierrez, O. D. (2012). Contaminantes emergentes en aguas, efectos y posibles tratamientos. *Producción mas limpia, 7*(2), 52. Obtenido de <http://www.scielo.org.co/pdf/pml/v7n2/v7n2a05.pdf>
- GreenFacts. (2022). *GreenFacts. Facts on Health and the Environment*. Obtenido de Riesgos medioambientales de los productos farmacéuticos y medicinales: <https://www.greenfacts.org/es/medio-ambiente-productos-farmaceuticos/index.htm#1>
- Kaur, R., Kushwaha, J. P., & Singh, N. (2019). Amoxicillin electro-catalytic oxidation using Ti/RuO₂ anode: Mechanism, oxidation products and degradation pathway. *Electrochimica Acta, 296*, 856-866. Obtenido de <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0013468618325970?via%3Dihub>
- Padilla, B. (2014). *Evaluación del desempeño de reactores electroquímicos asistidos con ultrasonido para la remoción de amoxicilina en fase acuosa*. Obtenido de <http://zaloamati.azc.uam.mx/handle/11191/7550?show=full>

- Ramírez-Franco, J. H., Galeano, L. A., & Vicente, M. A. (2019). Fly ash as photo-Fenton catalyst for the degradation of amoxicillin. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 7(5). [doi:https://doi.org/10.1016/j.jece.2019.103274](https://doi.org/10.1016/j.jece.2019.103274)
- Rojas, A., Santiago, C., Miranda, G., González, J., Martínez, S., Díaz, S., & García, C. (23 de Julio de 2018). Tratamiento por Electrocoagulación para la remoción de índigo carmín presente en agua. *Tecnológico Nacional de México*, 40 - 41. Obtenido de <https://dialnet.unirioja.es/servlet/articulo?codigo=7119398>
- Xinze Bian, Yi Xia, Tingting Zhan, Lin Wang, Wan Zhou, Qizhou Dai, & Jianmeng Chen. (2019). Electrochemical removal of amoxicillin using a Cu doped PbO₂ electrode: Electrode characterization, operational parameters optimization and degradation mechanism. *National Library of Medicine National Center for Biotechnology Information*. [doi:10.1016/j.chemosphere.2019.05.226](https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.05.226)
- Yañez, J. A., Viguera, S. E., Montes, M. M., & Martínez, S. A. (2021). Electrocoagulación de aguas residuales de la industria farmacéutica. *Journal CIM*, 9(1). Obtenido de https://www.researchgate.net/publication/360010711_Electrocoagulacion_de_aguas_residuales_de_la_industria_farmaceutica