

# Memorias del Congreso Internacional de Investigación Academia Journals Celaya 2020

El libro online con ISSN  
1946-5351, Volumen 12, No. 8, 2020

Celaya, Guanajuato, México  
Noviembre 4, 5, y 6 de 2020  
[www.AcademiaJournals.com](http://www.AcademiaJournals.com)



ACADEMIA JOURNALS

OPUS PRO SCIENTIA ET STUDIUM



# CUARZO NATURAL Y NANOTUBOS DE CARBONO COMO MATERIALES ADSORBENTES DE OXITETRACICLINA

Denisse Morales-Serrato<sup>1</sup>, Jonatan Torres-Pérez<sup>2</sup>, Yobanny Reyes-López<sup>3</sup>

**Resumen**—Uno de los grupos más importantes de contaminantes del agua son los compuestos farmacéuticos, uno de ellos es la oxitetraciclina (OTC). La OTC es un antibiótico que no se elimina mediante el tratamiento convencional de aguas residuales, es altamente estable y se considera un contaminante persistente y bioacumulativo. La OTC desarrolla efectos tóxicos en la vida silvestre por la exposición a dosis bajas. Un método eficaz para reducir la contaminación del agua por compuestos farmacéuticos es la adsorción. En este estudio se utilizaron dos tipos de adsorbentes, nanotubos de carbono y cuarzo natural. La capacidad de sorción de los adsorbentes se evaluó ajustando los datos experimentales a modelos cinéticos. La información obtenida se utilizó para proponer el mecanismo de adsorción de OTC en los materiales alternativos como un método alternativo y sostenible para la eliminación de antibióticos del agua.

**Palabras clave**— cuarzo, nanotubos de carbono, compuestos farmacéuticos, sorción.

## Introducción

La contaminación de los cuerpos de agua es una de las mayores preocupaciones de la humanidad, es causada en su mayoría por las actividades industriales y de la vida cotidiana. Uno de los principales contaminantes encontrados en los cuerpos acuáticos son los compuestos farmacéuticos. Los compuestos farmacéuticos son compuestos químicos estables creados para mejorar la salud humana y animal. El aumento en el consumo de productos farmacéuticos tanto por los humanos como por animales conduce a un aumento en la presencia en los ecosistemas y llegan a los cuerpos acuáticos por medio de la excreción humana, la eliminación indebida, el lixiviado de la tierra, el drenaje de agua o las industrias (Archer, Petrie, Kasprzyk-Hordern y Wolfaardt, 2017). Como resultado, han sido detectados en efluentes de aguas residuales urbanas, aguas superficiales, subterráneas y efluentes hospitalarios (Fatta-Kassinos, Meric y Nikolaou, 2011). Los métodos de tratamiento convencionales actuales no los eliminan totalmente debido a sus bajas concentraciones en el rango de  $\mu\text{g/L}$  o  $\text{ng/L}$  (Luján-Facundo, Iborra-Clar, Mendoza-Roca y Alcaina-Miranda, 2019). Por su toxicidad y resistencia bacteriana los productos farmacéuticos representan un peligro para las especies acuáticas y para la salud humana (Segura, François, Gagnon y Sauve, 2009).

La oxitetraciclina es un antibiótico que ha sido detectado comúnmente en cuerpos acuáticos y aguas residuales. Se ha reportado como microcontaminantes del ambiente en concentraciones de 0.13-0.51  $\mu\text{g/L}$  en aguas superficiales, 86-199  $\mu\text{g/kg}$  en suelos y 4.58  $\text{mg/kg}$  en muestras de estiércol animal (Ye *et al.*, 2017; Wang *et al.*, 2009). Los principales efectos que la OTC tiene en el ambiente y en los organismos se generaliza principalmente en el daño a las funciones y la productividad del ecosistema, en la inducción de genes de resistencia a los antibióticos y el aumento en la transferencia de dichos genes de resistencia al cuerpo humano a través de la cadena alimentaria (Yuan *et al.*, 2019). Los efectos adversos de la exposición a la oxitetraciclina incluyen también, trastornos gastrointestinales, disfunción renal, hepatotoxicidad, presión intracraneal elevada e infecciones de la piel.

Un proceso fisicoquímico efectivo y de bajo costo para la remoción de compuestos farmacéuticos es la adsorción, la cual implica la acumulación de sustancias en la superficie o interface de un material adsorbente. Entre los adsorbentes más utilizados para la eliminación de contaminantes se encuentran los nanotubos de carbono (CNTs); son nanomateriales que poseen alta estabilidad térmica y química, una gran relación superficie-volumen, sitios de adsorción bien definidos, fácil fijación de grupos funcionales y poseen la capacidad de ser modificados. Los nanotubos de carbono son uno de los nanomateriales más estudiados como adsorbentes debido a su estructura hueca y en capas y a su gran área de superficie específica ( $150 - 1500 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ) (Yu *et al.*, 2014).

Por otro lado, existen materiales adsorbentes naturales como el cuarzo (Q), el cual posee una alta capacidad de intercambio catiónico, cavidades definidas, alta área de superficie y características de reutilización (Amodu, Ojumu,

<sup>1</sup> La Lic. en Química Denisse Morales-Serrato es egresada del programa de Química del Instituto de Ciencias Biomédicas de la Universidad Autónoma de Ciudad Juárez, Chihuahua, México. [al194565@alumnos.uacj.mx](mailto:al194565@alumnos.uacj.mx) (autor correspondiente)

<sup>2</sup> El Dr. Jonatan Torres Pérez es profesor-investigador del Instituto de Ciencias Biomédicas de la Universidad Autónoma de Ciudad Juárez, Chihuahua, México. [jonatan.torres@uacj.mx](mailto:jonatan.torres@uacj.mx)

<sup>3</sup> El Dr. Simón Yobanny Reyes López es Profesor-Investigador de Tiempo completo en el Departamento de Ciencias Químico-Biológicas de la Universidad Autónoma de Ciudad Juárez. [simon.reyes@uacj.mx](mailto:simon.reyes@uacj.mx)

Ntwampe y Ayanda, 2015). El objetivo de la presente investigación fue evaluar el proceso de sorción de oxitetraciclina utilizando como adsorbentes nanotubos de carbono y cuarzo natural.

### Descripción del Método

El presente estudio se llevó a cabo en el Instituto de Ciencias Biomédicas en la Universidad Autónoma de Ciudad Juárez, en el Laboratorio de Materiales Híbridos Nanoestructurados y en el Laboratorio de transferencia y degradación de contaminantes.

#### *Obtención de los materiales adsorbentes*

Se utilizaron Nanotubos de carbono de pared múltiple grado reactivo marca Sigma-Aldrich®. El mineral de cuarzo fue obtenido de un yacimiento local, ubicado en el municipio de Santa Isabel, Chihuahua. El cuarzo fue triturado y tamizado obteniendo un tamaño de partícula de entre 0.5-1.0 mm, una vez obtenido el cuarzo fue tratado con una solución de NaCl, la mezcla fue calentada a reflujo durante 8 horas. Posteriormente, las fases se separaron y se repitió el proceso hasta lograr 4 lavados. Finalmente, fue lavado con agua desionizada y secado a 60 °C durante 2 h.

#### *Determinación del equilibrio de sorción de oxitetraciclina (OTC) en medio acuoso*

Se preparó una solución de oxitetraciclina con una concentración inicial (Co) de 50 mg/L, de la cual fueron tomados 250 mL. Se tomó 1 mL con una micropipeta (Labmate pro®, mod. 121958), y otro mililitro de agua destilada analizando el máximo de absorción (barrido) en un equipo espectrofotométrico UV/ Visible (Jenway®, mod. 7315). Por triplicado fueron tomados 250 mL de la solución a 50 mg/L y se agregaron los materiales adsorbentes (CNTs y Q) y se mantuvieron en agitación constante sobre un orbital de placa (Barnstead Lab-Line® mod. MaxQ 2000 Shaker) a 150 rpm. Se analizó la absorbancia de cada una de las muestras a partir de la hora 0 (cero) hasta la 8va hora, tomando alícuotas de 2 mL. Pasadas las 8 horas de análisis, las muestras se tomaron cada 24 h, durante un periodo de 8 días (Torres-Pérez, 2015). Los datos experimentales se ajustaron a ecuaciones de modelos cinéticos utilizando un programa estadístico. El análisis de datos se realizó mediante la aplicación de modelos no lineales. Los modelos que se realizaron corresponden a las cinéticas de pseudo-primer orden, pseudo-segundo orden, difusión intrapartícula y Elovich.

### Resultados y discusión

La adsorción es una de las técnicas aplicadas para la eliminación de contaminantes de medios acuosos. Involucra aspectos termodinámicos y cinéticos para conocer detalles sobre su funcionamiento y mecanismo. A partir del análisis cinético, se puede establecer la tasa de adsorción de soluto que determina el tiempo requerido para completar la reacción de adsorción (Qiu *et al.*, 2009).

Las cinéticas de adsorción se llevaron a cabo a una concentración inicial de oxitetraciclina de 50 mg/L. En las Figuras 1 y 2 se muestran las cinéticas de adsorción sobre los materiales (nanotubos de carbono y cuarzo), también se pueden observar los tiempos máximos de adsorción, se observa una disminución de la concentración inicial de oxitetraciclina conforme aumenta el tiempo de contacto entre los adsorbentes y el adsorbato.

La Figura 1 muestra la cinética de adsorción de OTC con una concentración de 50 mg/L sobre el cuarzo. Se observa que el adsorbente alcanza un 42 % de remoción de OTC del medio, y el tiempo de equilibrio se da a las 200 h.

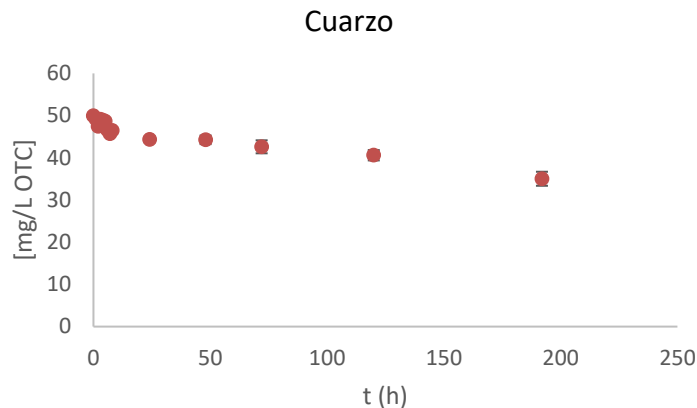


Figura 1. Cinética de sorción de oxitetraciclina sobre el cuarzo

La Figura 2 muestra la cinética de adsorción de OTC  $C_0=50$  mg/L sobre los nanotubos de carbono, se observa que los CNTs alcanzan un porcentaje de remoción del 99 %, es decir removieron toda la OTC disponible en el medio. Se puede observar que la adsorción de OTC fue extremadamente rápida en la etapa inicial, en las primeras 8 horas de contacto, el porcentaje de remoción fue del 51 %. Esto se atribuye al gradiente de alta concentración inicial, exhibe una fuerza impulsora para la migración de las moléculas de OTC de la solución a la superficie de los materiales, favoreciendo el contacto entre el adsorbato y el adsorbente reflejándose en la capacidad de adsorción (Sun *et al.*, 2012). El equilibrio se logró a las 72 h.

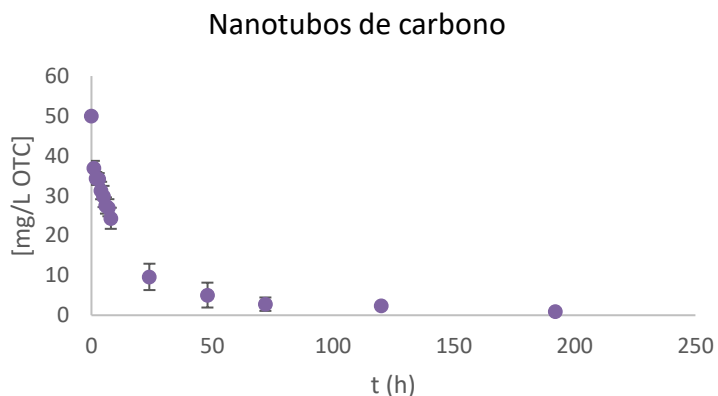


Figura 2. Cinética de adsorción de oxitetraciclina sobre los nanotubos de carbono

Las cinéticas de adsorción son utilizadas para comprender el mecanismo involucrado en el proceso de adsorción. Numerosos modelos teóricos proporcionan información sobre el mecanismo por el cual el adsorbato se acumula en la superficie de un adsorbente (Sen Gupta y Bhattacharyya, 2011). Con el fin de evaluar las cinéticas de adsorción de OTC sobre los adsorbentes, los datos experimentales se ajustaron al modelo de pseudo-primero orden, de pseudo-segundo orden, de difusión intrapartícula y Elovich.

En el Cuadro 1 se muestran los parámetros cinéticos obtenidos después de la aplicación de los modelos de pseudo-primero orden, pseudo-segundo orden, difusión intrapartícula y Elovich a los datos experimentales del proceso de sorción de oxitetraciclina sobre los materiales adsorbentes. Los datos obtenidos para el modelo cinético de pseudo-primero orden muestran que la capacidad de sorción máxima ( $q_e$ ) para una concentración inicial de 50 mg/L de OTC es de 14.96536 y 49.08313 mg/g para el cuarzo y los nanotubos de carbono, respectivamente, siendo los nanotubos de carbono el material con mayor capacidad de remoción de OTC. El cuarzo mostró un buen ajuste al modelo cinético de pseudo-primero orden, obteniendo un coeficiente de correlación (R) alto.

Los parámetros cinéticos obtenidos para el modelo de pseudo-segundo orden, muestran que los CNTs tuvieron una constante de velocidad ( $k_L$ ) más grande que la del Q. Los CNTs presentan un mejor coeficiente de correlación para dicho modelo, obteniendo un  $R=0.998$ , indicando que el proceso de sorción se llevó a cabo sobre una superficie heterogénea (Ho y McKay, 1998).

El modelo de difusión intrapartícula muestra las constantes de velocidad y el coeficiente de correlación para cada material, se obtuvo que la constante de velocidad de adsorción de los CNTs es superior a la de Q, ambos materiales muestran un buen ajuste al modelo cinético como se muestra en el Cuadro 1 ( $R > 0.96$ ).

Se muestran las constantes de sorción (a) y desorción (b) del modelo cinético de Elovich, así como el coeficiente de correlación obtenidos de cada material. Los CNTs obtuvieron un valor superior en la constante de sorción de 46.298 como se puede observar en el Cuadro 1. Los nanotubos de carbono presentan una constante de desorción con un valor bajo y un coeficiente de correlación alto ( $R = 0.98$ ). Ambos materiales obtuvieron valores bajos de la constante de desorción en comparación a los valores obtenidos de la constante de sorción, por lo que son materiales que adhieren a su superficie la molécula de OTC y difícilmente pueden desorberla en condiciones normales. Los coeficientes de correlación obtenidos para los materiales fueron altos y al ajustarse al modelo de Elovich se sugiere que el proceso de sorción se lleva a cabo por adsorción química (Wu, Tseng y Juang, 2009).

Cuadro 1. Parámetros cinéticos de los modelos experimentales

<i>Co = 50 mg/L</i>			
<b>Modelos cinéticos</b>	<b>Parámetros</b>	<b>Q</b>	<b>CNTs</b>
	<b>Pseudo-primero orden</b>	$q_e$ (mg/g)	14.96536
$k_L$ ( $h^{-1}$ )		0.01203	0.10530
R		0.91195	0.97211
<b>Pseudo-segundo orden</b>	$k$ (g/mgh)	92.3465	25350.6
	R	0.91096	0.99890
<b>Difusión intrapartícula</b>	$k$ (mg/g/min)	0.97685	9.27722
	R	0.96708	0.97293
<b>Elovich</b>	a	1.1977	46.298
	b	0.11739	0.04968
	R	0.94696	0.98559

### Comentarios Finales

#### Resumen de resultados

Los dos materiales (Q y CNTs) presentan capacidad de adsorción de OTC, siendo más eficiente los nanotubos de carbono. El cuarzo presentó una capacidad máxima de 14.96 mg/g, mientras que los nanotubos de carbono presentaron una capacidad de 49.0 mg/g. Ambos materiales se ajustaron a diferentes modelos cinéticos y presentaron a un ajuste significativo al modelo de pseudo-primero orden ( $R=0.9115$ ) y pseudo-segundo orden ( $R=0.9998$ ) para el Q y CNTs, respectivamente. Lo que indica que presentan una distribución en su superficie homogénea para el Q y heterogénea para los CNTs. Al ajustarse al modelo cinético de Elovich indica que la sorción que se produce en la superficie de los materiales con el adsorbato es química.

#### Conclusiones

El uso de nanotubos de carbono y cuarzo natural es una alternativa promisoría para la adsorción de moléculas orgánicas como la oxitetraciclina, muestra un potencial importante en el tratamiento avanzado de agua.

### Recomendaciones

Algunas sugerencias para futuras investigaciones en el presente estudio son utilizar moléculas de diferente naturaleza a remover del agua, como plomo, cadmio o mercurio. Además de utilizar modelos cinéticos diferentes a los empleados en el presente estudio para conocer mejor el mecanismo de sorción del fármaco sobre los materiales utilizados en la presente investigación.

### Referencias

- Archer, E., Petrie, B., Kasprzyk-Hordern, B., y Wolfaardt, G. (2017). The fate of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs), endocrine disrupting contaminants (EDCs), metabolites and illicit drugs in a WWTW and environmental waters, *Chemosphere*, 174, 437-446.
- Fatta-Kassinos, D., Meric, S., y Nikolaou, A. (2011). Pharmaceutical residues in environmental waters and wastewater: current state of knowledge and future research, *Anal. Bioanal. Chem.* 399, 251-275.
- Ho, Y.S., McKay, G. Pseudo-second order for sorption process. *Process biochemistry*. Vol. 34, pp. 451-465, 1998.
- Luján-Facundo, M. J., Iborra-Clar, M. I., Mendoza-Roca, J. A., y Alcaina-Miranda, M. I. (2019). Pharmaceutical compounds removal by adsorption with commercial and reused carbon coming from a drinking water treatment plant. *Journal of Cleaner Production*, 238, 117866.
- Qiu, H., Lv, L., Pan, B. C., Zhang, Q. J., Zhang, W. M., & Zhang, Q. X. (2009). Critical review in adsorption kinetic models. *Journal of Zhejiang University: Science A*, 10(5), 716-724. <https://doi.org/10.1631/jzus.A0820524>
- Segura, P.A. François, M., Gagnon, C., y Sauve, S. (2009). Review of the occurrence of anti- infectives in contaminated wastewaters and natural and drinking waters, *Environ. Health Perspect.* 117, 675-684.
- Sen Gupta, S., Bhattacharyya, K.G. (2011) *Adv. Colloid Interface Sci.* 162, 39.
- Sun, Y., Yue, Q., Gao, B., Li, Q., Huang, L., Yao, F., & Xu, X. (2012). Preparation of activated carbon derived from cotton linter fibers by fused NaOH activation and its application for oxytetracycline (OTC) adsorption. *Journal of Colloid and Interface Science*, 368(1), 521-527. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2011.10.067>
- Torres-Pérez, J.; Soria-Serna, L.A., Solache-Ríos, M.; G. McKay. One Step Carbonization/Activation Process for Carbonaceous Material Preparation from Pecan Shells for Tartrazine Removal and Regeneration after Saturation. *Adsorption Science & Technology* Vol. 33 No. 10, 2015.
- Wang, Y., Jiang, J., Xu, R-K., y Tiwari, D. (2009). Phosphate adsorption at variable charge soil/water interfaces as influenced by ionic strength. *Aust. J. Soil Res.* 47, 529-536.
- Wu, F. C., Tseng, R. L., & Juang, R. S. (2009). Characteristics of Elovich equation used for the analysis of adsorption kinetics in dye-chitosan systems. *Chemical Engineering Journal*, 150(2-3), 366-373. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2009.01.014>
- Yu, J. G., Zhao, X. H., Yang, H., Chen, X. H., Yang, Q., Yu, L. Y., Chen, X. Q. (2014). Aqueous adsorption and removal of organic contaminants by carbon nanotubes. *Science of the Total Environment*, 482-483(1), 241-251. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.02.129>
- Yuan, L., Yan, M., Huang, Z., He, K., Zeng, G., Chen, A., Chen, G. (2019). Influences of pH and metal ions on the interactions of oxytetracycline onto nano-hydroxyapatite and their co-adsorption behavior in aqueous solution. *Journal of Colloid and Interface Science*, 541, 101-113. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2019.01.078>

### Notas Biográficas

La **Lic. en Química Denisse Morales-Serrato** es egresada del programa de Química del Instituto de Ciencias Biomédicas de la *Universidad Autónoma de Ciudad Juárez, Chihuahua, México*.

El **Dr. Jonatan Torres Pérez** es profesor-investigador del Instituto de Ciencias Biomédicas de la Universidad Autónoma de Ciudad Juárez, Chihuahua, México. Terminó sus estudios de doctorado en la *Université de Nantes, Francia*. Ha publicado artículos en revistas internacionales indizadas y varios capítulos de libro; así como múltiples presentaciones en congresos nacionales e internacionales.

El **Dr. Simón Yobanny Reyes López** es Profesor-Investigador de Tiempo completo en el Departamento de Ciencias Químico-Biológicas de la Universidad Autónoma de Ciudad Juárez. Terminó sus estudios de doctorado en la *Universidad Michoacana de San Nicolás de Hidalgo, Morelia, Michoacán, México*. Ha publicado artículos en revistas internacionales indizadas y varios capítulos de libro; así como múltiples presentaciones en congresos nacionales e internacionales.