

Informe final publicable de proyecto

Síntesis de nuevos materiales nanoestructurados para la remoción de contaminantes emergentes en agua.

Código de proyecto ANII: FCE_3_2022_1_172649

Fecha de cierre de proyecto: 01/10/2025

DE LEÓN CHOCHO, María Andrea (Responsable Técnico - Científico)

BUSSI LASA, Juan Alberto (Investigador)

MÉNDEZ, Noelia (Investigador)

UNIVERSIDAD DE LA REPÚBLICA. FACULTAD DE QUÍMICA (Institución Proponente) \

FACULTAD DE QUÍMICA. FUNDACIÓN PARA EL PROGRESO DE LA QUÍMICA

Resumen del proyecto

Los contaminantes emergentes presentes en el agua, como los antibióticos, representan un desafío para los sistemas convencionales de tratamiento, ya que no se eliminan completamente. En este proyecto se abordó esta problemática mediante el desarrollo de materiales capaces de degradar estos compuestos utilizando procesos de oxidación química. Se sintetizaron nuevos materiales con estructura porosa muy desarrollada a partir de una arcilla natural de origen nacional, proveniente del Departamento de Cerro Largo, un recurso abundante y de bajo costo. Sobre estos materiales se incorporaron hierro y cobre, obteniéndose catalizadores activos en la degradación de contaminantes.

Los resultados mostraron que los catalizadores desarrollados presentan una elevada actividad, alcanzando altos niveles de eliminación del contaminante. Se observó que el desempeño depende tanto del contenido de metal como del método de incorporación. En particular, los catalizadores con hierro mostraron mayor actividad en condiciones ácidas, mientras que los materiales con cobre presentaron un mejor comportamiento en condiciones más cercanas a las del agua real.

Además, se analizó la influencia de distintos parámetros del proceso, así como la estabilidad y reutilización de los catalizadores, obteniéndose resultados que evidencian su potencial aplicación en el tratamiento de aguas. Si bien la eliminación del contaminante fue elevada, se identificó la necesidad de profundizar en la eliminación completa de los subproductos generados.

Este trabajo contribuye al desarrollo de materiales basados en recursos nacionales para la remediación de contaminantes emergentes, aportando conocimiento relevante para el diseño de tecnologías más eficientes y sostenibles.

Ciencias Naturales y Exactas / Ciencias Químicas / Físico-Química, Ciencia de los Polímeros, Electroquímica / Procesos Avanzados de Oxidación

Palabras clave: procesos avanzados de oxidación / arcilla natural / amoxicilina /

Antecedentes, problema de investigación, objetivos y justificación.

En los últimos años, los contaminantes emergentes (o microcontaminantes) han despertado gran interés. Se trata de compuestos presentes en aguas en muy bajas concentraciones que pueden resultar perjudiciales para la salud humana y el ecosistema, al provocar efectos como toxicidad crónica, disrupción endocrina y bioacumulación [1]. Entre ellos se incluyen parafinas cloradas, pesticidas polares, compuestos perfluorados, fármacos, productos de cuidado personal y esteroides [2].

Dentro de este grupo, los antibióticos han cobrado especial relevancia debido a su uso extendido en medicina y veterinaria, lo que ha contribuido a su presencia en ecosistemas acuáticos [3]. En particular, la amoxicilina, un antibiótico semisintético de amplio espectro, representa una preocupación relevante, ya que una fracción elevada de la dosis administrada se excreta sin metabolizar. Esta característica, junto con su alta solubilidad en agua, favorece su dispersión en el ambiente acuático y contribuye al desarrollo de resistencia bacteriana [4, 5].

Uno de los principales problemas asociados a estos compuestos es que las tecnologías convencionales de tratamiento de aguas residuales no logran eliminarlos completamente, dado que están diseñadas para remover materia orgánica y nutrientes en concentraciones mucho mayores. Como consecuencia, los contaminantes emergentes se detectan en aguas superficiales, subterráneas e incluso de consumo humano [6].

Los Procesos Avanzados de Oxidación (PAO) constituyen una alternativa de tratamiento para la remediación de contaminantes emergentes en agua. Estos procesos se basan en la generación de especies transitorias de alto poder oxidante, principalmente el radical hidroxilo ($\text{HO}\cdot$), capaz de reaccionar con una amplia variedad de compuestos orgánicos [7]. A diferencia de los métodos convencionales, los PAO transforman químicamente al contaminante y pueden conducir a su mineralización, siendo además adecuados para el tratamiento de compuestos presentes en bajas concentraciones.

El proceso Fenton, uno de los PAO más estudiados, se basa en la generación de radicales hidroxilos ($\text{HO}\cdot$) a partir de la reacción entre peróxido de hidrógeno y iones ferrosos en solución acuosa. Sin embargo, el método convencional presenta algunas limitaciones, como la necesidad de operar a pH ácido y la posterior eliminación del hierro disuelto,

que suele precipitarse como hidróxido férrico generando lodos que deben gestionarse [8]. Para superar estos inconvenientes se han desarrollado los procesos tipo Fenton heterogéneos, en los cuales el hierro se encuentra incorporado en catalizadores sólidos, lo que facilita la separación y recuperación del catalizador, permitiendo además su reutilización. Entre los materiales estudiados para este fin se encuentran las arcillas [8].

Estas se encuentran ampliamente distribuidas en la superficie terrestre y constituyen un recurso accesible, abundante y de bajo costo. Debido a su pequeño tamaño de partícula y, particularmente en el caso de las esmectitas, a su elevada capacidad de intercambio catiónico, han sido empleadas en la preparación de catalizadores.

Entre las estrategias de modificación de arcillas para la obtención de materiales catalíticos se destaca el pilareado, que conduce a la formación de sólidos microporosos denominados PILCs (Pillared Interlayer Clays). Estos materiales presentan elevada área específica, volumen de microporos y estabilidad térmica [9]. En particular, arcillas pilareadas con hierro (Fe-PILCs) han sido utilizadas con éxito en procesos tipo Fenton y foto-Fenton para la degradación de contaminantes orgánicos [10-12].

En nuestro país existen antecedentes de modificación de una arcilla natural, una montmorillonita cálcica de origen nacional, para obtener Fe-PILCs activos en procesos Fenton heterogéneos aplicados a la degradación de colorantes y compuestos fenólicos [13-15]. Sin embargo, la estructura microporosa de estos materiales, caracterizada por poros con tamaño inferior a 2 nm, puede restringir la adsorción de ciertos contaminantes y su acceso a los sitios activos de hierro ubicados en el interior del sólido, especialmente en el caso de moléculas de mayor tamaño. En este contexto, la incorporación de mesoporos (poros con tamaño entre 2 y 50 nm) resulta relevante, ya que favorecería la difusión hacia los sitios activos y ampliaría el rango de compuestos susceptibles de ser tratados mediante procesos tipo Fenton.

Las nanoestructuras híbridas derivadas de arcillas han despertado creciente interés debido a sus características estructurales y sus posibles aplicaciones funcionales. En particular, se ha reportado la obtención de materiales con estructura mesoporosa mediante la incorporación de sílice entre las láminas de la arcilla, lo que permite generar sistemas con mesoporosidad controlada y elevada área específica. Estos materiales han sido estudiados como catalizadores selectivos, adsorbentes y matrices porosas para el encapsulado de moléculas funcionales, así como en aplicaciones vinculadas a procesos catalíticos y liberación controlada de fármacos [16-18].

En este contexto, surgió el interés por desarrollar materiales mesoporosos derivados de arcillas que permitan mejorar la accesibilidad de las moléculas a los sitios activos y ampliar la aplicabilidad de estos catalizadores en procesos tipo Fenton. En particular, la utilización de la montmorillonita cálcica existente en el yacimiento de Bañado de Medina (Cerro Largo, Uruguay) representó una oportunidad para valorizar un recurso mineral nacional mediante la obtención de materiales mesoestructurados funcionalizados con especies catalíticamente activas. El desarrollo de este tipo de materiales podría contribuir a mejorar la eficiencia de los procesos Fenton heterogéneos aplicados a la degradación de contaminantes emergentes como la amoxicilina.

En este marco, el proyecto tuvo como objetivo sintetizar nuevos materiales nanoestructurados mesoporosos a partir de un recurso mineral nacional disponible, con el fin de obtener catalizadores activos en procesos Fenton aplicados a la remoción de contaminantes emergentes en agua. Para alcanzar este objetivo, se planteó la síntesis de materiales mesoporosos a partir de la arcilla montmorillonítica nacional y la incorporación en ellos de especies catalíticamente activas de hierro y cobre, realizar la caracterización fisicoquímica de los materiales obtenidos mediante diversas técnicas y evaluar su actividad catalítica en procesos Fenton aplicados a la degradación de amoxicilina en solución acuosa.

Metodología/Diseño del estudio

1. Material de partida

La síntesis de materiales se llevó a cabo a partir de una arcilla natural, una montmorillonita cálcica de origen nacional, caracterizada por presentar escasas impurezas. El material fue obtenido en la localidad de Bañado de Medina (Departamento de Cerro Largo) y acondicionado previamente mediante secado y molienda.

2. Síntesis de materiales mesoporosos

Los materiales se prepararon siguiendo una estrategia de síntesis orientada a la formación de estructuras tipo porous clay heterostructure (PCH). El procedimiento se basó en el intercambio iónico de la arcilla con un surfactante catiónico, la posterior incorporación de una fuente de sílice (tetraetil ortosilicato, TEOS) y un tratamiento térmico destinado a

generar la porosidad del material. Asimismo, se evaluó la inclusión de una amina como co-surfactante durante la preparación.

De manera general, la síntesis comprendió la dispersión de la arcilla en la solución del surfactante para su intercalación, la separación del sólido y su suspensión en una solución del co-surfactante. A continuación, se incorporó TEOS a la suspensión y se realizó la separación, lavado y secado del sólido obtenido. Estas etapas se realizaron bajo agitación magnética y temperatura controlada. Finalmente, los materiales fueron sometidos a un tratamiento térmico para eliminar las especies orgánicas y generar la estructura porosa.

Durante la síntesis se evaluó la influencia de distintos parámetros asociados al desarrollo de mesoporosidad: la naturaleza del surfactante empleado, cloruro de cetiltrimetilamonio (CTAC) o bromuro de cetiltrimetilamonio (CTAB), la relación molar arcilla/co-surfactante/TEOS y la concentración del surfactante en la solución acuosa intercalante. Estas variables se modificaron de manera independiente con el fin de analizar su efecto sobre la estructura y las propiedades texturales del material. Por otro lado, se ajustaron las condiciones del tratamiento térmico, particularmente la temperatura de calcinación y la masa de sólido tratada, considerando su influencia en la homogeneidad del tratamiento.

3. Síntesis de catalizadores

El análisis de los resultados de caracterización textural de los materiales sintetizados permitió seleccionar uno de estos como soporte para la preparación de catalizadores. Sobre este material se incorporaron especies catalíticamente activas de hierro y/o cobre. Por un lado, se recurrió a la técnica de impregnación por humedad incipiente, utilizando soluciones acuosas de sales de hierro y cobre, seguido de tratamiento térmico. De esta forma se obtuvieron catalizadores con diferentes contenidos de hierro o cobre, y un catalizador con ambos metales.

Por otro lado, las especies activas fueron incluidas en los materiales porosos mediante la técnica Template Ion Exchange (TIE) con soluciones de hierro y cobre de diferente concentración, incorporado como etapa final de la síntesis del material mesoporoso, previo al tratamiento térmico.

4. Caracterización de materiales

Para determinar las propiedades fisicoquímicas de los materiales sintetizados, incluyendo la arcilla de partida, los soportes mesoporosos y los catalizadores modificados con hierro y cobre, se recurrió a diferentes técnicas complementarias. Se empleó análisis termogravimétrico (TGA), isotermas de adsorción-desorción de nitrógeno, difracción de rayos X (DRX), fluorescencia de rayos X (FRX), microscopía electrónica de barrido (SEM) con análisis por espectrometría de energía dispersiva (EDS) y, en casos seleccionados, microscopía electrónica de transmisión (TEM).

5. Evaluación catalítica

La actividad catalítica de los materiales sintetizados se evaluó en procesos tipo Fenton heterogéneo aplicados a la degradación de amoxicilina en solución acuosa. Los ensayos se realizaron en un reactor batch encamisado, con control de temperatura mediante recirculación de agua proveniente de un baño termostatzado. Durante las experiencias, los catalizadores se mantuvieron en suspensión mediante agitación magnética. En una etapa inicial se llevaron a cabo ensayos exploratorios con el fin de definir las condiciones experimentales de trabajo que resultaron: concentración de amoxicilina 50 mg/L, concentración de H₂O₂ 10 mM, carga de catalizador 1g/L, temperatura 25 °C y pH 3. Posteriormente, se evaluó la actividad catalítica de los distintos catalizadores preparados, determinándose la evolución de la concentración de amoxicilina a lo largo del tiempo mediante cromatografía líquida de alta resolución (HPLC). Asimismo, al finalizar los ensayos se determinó el contenido de carbono orgánico total (TOC).

Con el fin de evaluar la posible remoción de amoxicilina por adsorción sobre los catalizadores y la degradación en ausencia de catalizador, se realizaron ensayos complementarios de adsorción y ensayos blanco (en ausencia de catalizador).

6. Estudio de la influencia de parámetros del proceso

En una etapa posterior, se realizó el estudio de la influencia de diferentes parámetros del proceso catalítico en la degradación de amoxicilina, considerando la carga de catalizador, la concentración de peróxido de hidrógeno y el pH del medio de reacción. Para este análisis se seleccionaron dos de los materiales sintetizados, correspondientes a catalizadores impregnados con diferente contenido de hierro. El estudio se realizó mediante ensayos en los que se

varió un parámetro por vez, manteniendo constantes las restantes condiciones experimentales definidas previamente en la etapa de evaluación catalítica.

Dado que el pH del medio de reacción es una variable relevante en los procesos tipo Fenton, se evaluó su influencia en sistemas que contienen cobre. Para ello se seleccionó un catalizador impregnado con cobre. Los resultados obtenidos indicaron una marcada dependencia del comportamiento catalítico con el pH, por lo que se decidió extender el estudio a otros catalizadores con cobre, evaluándolos a pH 3 y a pH 6.

7. Estudio de reutilización del catalizador

La reutilización de los catalizadores se evaluó mediante cinco ensayos consecutivos de degradación de amoxicilina en condiciones tipo Fenton, empleando en cada ciclo las condiciones experimentales definidas para la evaluación catalítica. Finalizado cada ensayo, el sólido fue recuperado del medio de reacción mediante centrifugación y reutilizado en un nuevo ensayo.

En cada ciclo se monitoreó la evolución de la concentración de amoxicilina a lo largo del tiempo y, al final del ensayo, se determinó el TOC como indicador del grado de mineralización alcanzado, con el fin de evaluar la estabilidad del material durante los sucesivos ciclos de reutilización. Los catalizadores seleccionados para este estudio fueron uno intercambiado con hierro y otro impregnado con Cu.

Resultados, análisis y discusión

Síntesis y propiedades de los materiales mesoporosos

Los resultados de DRX y FRX correspondientes a la arcilla de partida y a los materiales tipo PCH preparados permitieron confirmar la incorporación de sílice durante la síntesis. En particular, el aumento del espaciado basal observado por DRX, junto con el incremento en el contenido de silicio determinado por FRX, evidencian la formación de heteroestructuras.

Los materiales obtenidos presentaron propiedades texturales significativamente superiores a las de la arcilla original. Mientras que la arcilla de partida presenta un área específica BET del orden de 30 m²/g y un volumen de poros de aproximadamente 0,049 cm³/g, los PCH sintetizados alcanzaron valores considerablemente mayores, con áreas específicas que, en algunos casos, superaron los 450 m²/g y un incremento marcado del volumen de mesoporos, evidenciando el desarrollo de mesoporosidad.

Las propiedades texturales de los PCH resultaron dependientes de las condiciones de síntesis. En particular, la naturaleza del surfactante empleado influyó en los valores obtenidos, observándose que los materiales preparados con CTAC presentaron áreas específicas y volúmenes de microporos superiores a los obtenidos con CTAB en iguales condiciones. Asimismo, la concentración de surfactante mostró un efecto significativo. Al incrementar la concentración de CTAC de 0,1 a 0,2 mol/L se observó un aumento del área específica BET (de 427 a 479 m²/g) y del volumen de microporos y mesoporos (de 0,13 y 0,19 cm³/g a 0,16 y 0,21 cm³/g, respectivamente). Sin embargo, un incremento adicional hasta 0,3 mol/L resultó en una disminución de estos parámetros.

Por otra parte, la incorporación del co-surfactante HDA desempeñó un rol clave tanto en la incorporación efectiva de sílice como en el desarrollo de la estructura porosa. En ausencia de HDA, los materiales obtenidos presentaron propiedades texturales similares a las de la arcilla, mientras que su presencia permitió el desarrollo de estructuras mesoporosas bien definidas, en concordancia con el mayor contenido de silicio determinado por FRX. Asimismo, al aumentar la concentración de HDA de 0,1 mol/L a 0,2 mol/L, se observó un incremento en la fracción de volumen de mesoporos respecto al volumen total de poros.

En conjunto, estos resultados evidencian que es posible obtener materiales tipo PCH con elevada área específica y mesoporosidad a partir de la montmorillonita natural uruguaya, siendo las condiciones de síntesis un factor determinante en las propiedades finales de los materiales.

Incorporación de especies activas y propiedades de los catalizadores

Para la preparación de los catalizadores se seleccionó como soporte la PCH que presentó las mejores propiedades texturales, obtenida empleando CTAC 0,2 mol/L y una relación molar arcilla:amina:TEOS de 1:1:7,5. Sobre este material se incorporaron especies activas de hierro y cobre obteniéndose catalizadores con diferentes contenidos metálicos.

La incorporación de las especies activas fue confirmada mediante FRX. En los materiales con hierro obtenidos por intercambio se alcanzaron contenidos del orden de 1,8%, sin observarse variaciones significativas al modificar la concentración de la solución de hierro, lo que sugiere una capacidad limitada de incorporación en este caso. En cambio, los catalizadores preparados por impregnación presentaron contenidos de hierro en un rango más amplio, aproximadamente entre 2 y 8,5%, evidenciando la mayor versatilidad de este método para el control de la carga metálica. De manera análoga, los materiales funcionalizados con cobre mediante impregnación mostraron un incremento en el contenido de este metal respecto al soporte, confirmando su incorporación efectiva. Sin embargo, se observó dificultad para incorporar cobre mediante intercambio, resultando en contenidos relativamente bajos (menores a 1%). Esto se atribuye a la menor carga del catión cobre (Cu^{2+}) en comparación con el hierro (Fe^{3+}), lo que reduce su afinidad por los sitios de intercambio de la estructura.

Los resultados de DRX no evidenciaron la presencia de fases cristalinas de óxidos metálicos, lo que indica que las especies activas se encuentran altamente dispersas o en forma amorfa. Asimismo, las imágenes de SEM mostraron que la incorporación de los metales no altera significativamente la morfología de los materiales, conservándose la estructura característica de las PCH.

La incorporación de las especies activas produjo una disminución en las propiedades texturales respecto al soporte mesoporoso. En los materiales con menor contenido metálico, esta disminución fue moderada, manteniéndose valores elevados de área específica y volumen de poros (419 m^2/g y 0,29 cm^3/g para un contenido de hierro de 1,6%). En cambio, a mayores contenidos metálicos se observó una reducción más marcada de estos parámetros (219 m^2/g y 0,21 cm^3/g para un contenido de hierro de 8,5%) atribuida al bloqueo parcial de poros, principalmente microporos. No obstante, los materiales conservaron una estructura mesoporosa, lo que resulta favorable para la difusión de las moléculas reactantes. En el caso de los catalizadores con cobre, se observó un comportamiento similar, manteniéndose la estructura mesoporosa del material.

En conjunto, los resultados evidencian que la incorporación de especies activas se logró de manera efectiva, generando materiales con adecuada dispersión metálica y propiedades texturales compatibles con su aplicación en procesos catalíticos.

Actividad catalítica

Los materiales sintetizados mostraron actividad catalítica en la degradación de amoxicilina en solución acuosa en las condiciones tipo Fenton definidas. En todos los casos se observó una disminución progresiva de la concentración del contaminante con el tiempo de reacción, alcanzándose valores de degradación próximos al 100% luego de 180 min para los catalizadores más activos.

Con el fin de evaluar la contribución de procesos no catalíticos a la remoción de amoxicilina, se realizaron ensayos en ausencia de catalizador, en los cuales la remoción de amoxicilina resultó despreciable, y ensayos de adsorción, que mostraron una remoción limitada del contaminante (menor a 3%). Esto indica que la disminución de la concentración observada en presencia de catalizador se debe principalmente al proceso de oxidación tipo Fenton.

El desempeño catalítico de los materiales funcionalizados con hierro se vio influenciado tanto por el método de incorporación del metal como por su contenido. En el caso de los catalizadores obtenidos por TIE, que presentan contenidos de hierro similares, se alcanzaron porcentajes de degradación en el entorno del 70%.

En cambio, los catalizadores preparados por impregnación mostraron un desempeño superior, incluso para contenidos de hierro similares. Asimismo, se observó que la conversión aumenta con el contenido de hierro, alcanzándose valores cercanos al 97% para el catalizador con mayor carga metálica (8,5%). Este comportamiento podría asociarse a la mayor cantidad de especies activas incorporadas mediante impregnación y a su mayor accesibilidad dentro de la estructura mesoporosa.

El estudio de la variación de los parámetros del proceso catalítico para los catalizadores impregnados con hierro mostró que el incremento de la carga de catalizador (en el rango de 0,25 a 1,0 g/L) y de la concentración de peróxido de hidrógeno (en el rango de 1 a 10 mM), resultaron favorables para la degradación del contaminante. En cuanto al pH, el mejor desempeño se observó a pH 3, comportamiento característico de los procesos tipo Fenton con hierro, en los que el medio ácido favorece la generación de las especies oxidantes responsables de la degradación.

Los catalizadores de cobre impregnados mostraron que el pH del medio influye significativamente en su desempeño, por encima del contenido metálico. A diferencia de los catalizadores de hierro, su mejor actividad se observó a pH 6–7,

alcanzando degradaciones superiores al 90%, lo que representa una ventaja desde el punto de vista de su potencial aplicación en condiciones cercanas a las de efluentes reales. Por su parte, los catalizadores obtenidos por intercambio con cobre presentaron un rendimiento significativamente menor, no superando el 50% de degradación, lo que se atribuye al bajo contenido de metal incorporado en su estructura.

Respecto al grado de mineralización, en todos los casos se observó una disminución del TOC, aunque en un porcentaje significativamente menor que la conversión del contaminante. Esto indica que, si bien la amoxicilina se degrada en gran medida, su mineralización completa es limitada bajo las condiciones evaluadas. Este comportamiento es consistente con la formación de productos intermedios de degradación generados a través de múltiples rutas de reacción, que incluyen la apertura del anillo β -lactámico y la oxidación sucesiva de los grupos funcionales de la molécula, dando lugar a compuestos orgánicos de menor tamaño que se acumulan en solución. La identificación y caracterización de estos productos intermedios constituye una línea de trabajo relevante para evaluar el impacto ambiental real del proceso y orientar su optimización futura.

La reutilización de los catalizadores, intercambiado con Fe e impregnado con Cu, se evaluó mediante cinco ciclos consecutivos de degradación de amoxicilina. Ambos materiales, mostraron una disminución gradual de su actividad catalítica que no superó el 5% entre ciclos consecutivos, evidenciando una adecuada estabilidad. El catalizador impregnado con de cobre mostró una pérdida de actividad algo menor que el catalizador intercambiado con hierro, lo que sugiere una mayor estabilidad del primero frente a los ciclos de reutilización. Este resultado representa una característica favorable de cara a su potencial aplicación.

Conclusiones y recomendaciones

El proyecto permitió sintetizar materiales mesoporosos tipo PCH a partir de una montmorillonita cálcica de origen nacional sin necesidad de purificación previa, valorizando un recurso mineral abundante y de bajo costo. Los materiales obtenidos presentaron propiedades texturales significativamente superiores a las de la arcilla de partida, con elevadas áreas específicas y volúmenes de microporos y mesoporos. Las condiciones de síntesis resultaron determinantes en las propiedades finales: una concentración de CTAC de 0,2 mol/L permitió alcanzar los mejores valores texturales, mientras que la incorporación del co-surfactante HDA favoreció la incorporación de sílice y el desarrollo de la estructura porosa.

Los catalizadores sintetizados mostraron actividad en la degradación de amoxicilina en condiciones tipo Fenton heterogéneo, alcanzando conversiones cercanas al 100% para los materiales más activos. El pH del medio de reacción resultó una variable clave, observándose comportamientos diferenciados según la especie metálica incorporada: los catalizadores de hierro mostraron su mejor desempeño a pH 3, mientras que los de cobre fueron más eficientes en el rango de pH 6–7, condiciones más cercanas a efluentes reales. Asimismo, los ensayos de reutilización evidenciaron una adecuada estabilidad, con pérdidas de actividad inferiores al 5% entre ciclos consecutivos.

No obstante, la mineralización completa de la amoxicilina fue limitada bajo las condiciones evaluadas, lo que indica la formación y acumulación de productos intermedios orgánicos en solución. Este aspecto resulta relevante desde el punto de vista ambiental, ya que la eliminación del contaminante original no garantiza la remoción total de la carga orgánica ni de la posible actividad biológica de los subproductos generados.

Los resultados obtenidos representan un aporte en tres dimensiones complementarias. Desde el punto de vista económico, el uso de un recurso mineral local de bajo costo abre posibilidades para reducir la dependencia de insumos importados en tecnologías de tratamiento de agua. Desde el punto de vista científico, el trabajo aporta conocimiento sobre la síntesis y funcionalización de materiales mesoporosos derivados de arcillas y su aplicación en procesos catalíticos. Desde el punto de vista ambiental, los catalizadores desarrollados constituyen una alternativa prometedora para la degradación de antibióticos como la amoxicilina, cuya optimización futura orientada a mejorar la mineralización completa potenciaría su impacto ambiental.

Como líneas de trabajo futuro se recomienda, en primer lugar, la identificación y caracterización de los productos intermedios de degradación mediante técnicas analíticas avanzadas, complementada con la evaluación de la toxicidad del efluente tratado, con el fin de determinar el impacto ambiental real del tratamiento propuesto. Asimismo, resulta de interés explorar estrategias que permitan ampliar el rango de pH operativo de los catalizadores de hierro hacia condiciones menos ácidas, acercándose así a las características de los efluentes reales. Finalmente, se sugiere evaluar los catalizadores en aguas reales, ya que la materia orgánica y otros compuestos pueden interferir en el proceso. Esto permitirá valorar su potencial aplicación real en el tratamiento de aguas contaminadas con antibióticos.

Productos derivados del proyecto

Tipo de producto	Título	Autores	Identificadores	URI en repositorio de Silo	Estado
Resumen de conferencia publicado	Síntesis de materiales porosos heteroestructurados a partir de arcilla natural	Noelia Mendez, Mariano Romero, Juan Bussi, Andrea De León	ISBN 978-631-00-6301-0	https://hdl.handle.net/20.500.12008/53501	Finalizado
Resumen de conferencia publicado	Synthesis of iron-modified porous clay heterostructures (Fe-PCHs) from a raw Uruguayan montmorillonite	Noelia Méndez, Mariano Romero, Juan Bussi, Andrea De León	ISBN 978-85-63273-63-5	https://hdl.handle.net/20.500.12008/53500	Finalizado
Tesis de grado/monografías	Preparación de materiales porosos heteroestructurados a partir de una arcilla natural y su evaluación catalítica en la degradación de amoxicilina	Noelia Méndez		https://hdl.handle.net/20.500.12008/51158	Finalizado
Póster	DEGRADATION OF AMOXICILLIN THROUGH THE FENTON AND PHOTO-FENTON PROCESSES USING Fe-PCH OBTAINED FROM A RAW CLAY	Andrea De León, Noelia Méndez, Mariano Romero, Juan Bussi		https://hdl.handle.net/20.500.12008/55053	Finalizado
Resumen de conferencia publicado	Efecto del tipo de surfactante en la preparación de	Noelia Méndez, Andrea		https://hdl.handle.net/20.500.12008/55049	Finalizado

Tipo de producto	Título	Autores	Identificadores	URI en repositorio de Silo	Estado
	materiales porosos heteroestructurados a partir de una arcilla natural	De León			

Referencias bibliográficas

- [1] Richardson S.D. y Ternes T.A. Water Analysis: Emerging Contaminants and Current Issues. Analytical Chemistry 2018, 90 (1), 398-428.
- [2] Lapworth D.J., Baran N., Stuart M.E., Ward R.S. Emerging organic contaminants in groundwater: A review of sources, fate and occurrence. Environmental Pollution, 2012, 163, 287-303.
- [3] Kümmerer K. Antibiotics in the aquatic environment – A review – Part I. Chemosphere, 2009, 75, 417-434.
- [4] Elizalde-Velázquez A., Gómez-Oliván L.M., Galar-Martínez M., Islas-Flores H., Dublán-García O., SanJuan-Reyes N. Amoxicillin in the Aquatic Environment, Its Fate and Environmental Risk. En: Environmental Health Risk – Hazardous Factors to Living Species; Larramendy M.L., Soloneski S., Eds. InTechOpen: London, UK, 2016, pp 247-267.
- [5] Gozlan I., Rotstein A., Avisar D. Amoxicillin-degradation products formed under controlled environmental conditions: Identification and determination in the aquatic environment. Chemosphere, 2013, 91(7), 985-992.
- [6] Yang W., Bu Q., Shi Q., Zhao R., Huang H., Yang L., Tang J., Ma Y. Emerging Contaminants in the Effluent of Wastewater Should Be Regulated: Which and to What Extent? Toxics, 2024, 12, 309.
- [7] Glaze W.H., Kang J.-W., Chapin D.H. The chemistry of water treatment processes involving ozone, hydrogen peroxide and ultraviolet radiation. Ozone: Science & Engineering, 1987, 9(4), 335-352.
- [8] Neyens E., Baeyens J. A review of classic Fenton's peroxidation as an advanced oxidation technique. Journal of Hazardous Materials, 2003, 98, 33-50.
- [9] Embaida B.P., Biomorgi J.G., Gonzalez-Jimenez F., Perez-Zurita M.J., Scott C.E. Using Fe-PILCs as catalyst. Applied Catalysis A: General, 2011, 400, 166-170.
- [10] Herney-Ramírez J., Vicente M.A., Madeira L.M. Heterogeneous photo-Fenton oxidation with pillared clay-based catalysts for wastewater treatment: A review. Applied Catalysis B: Environmental, 2010, 98, 10-26.
- [11] Hadjltaief H., Zina M., Galvez M., Da Costa P. Photo-Fenton oxidation of phenol over a Cu-doped Fe-pillared clay. Comptes Rendus Chimie, 2015, 18, 1161-1169.
- [12] Gao Y., Guo Y., Zhang H. Iron modified bentonite: Enhanced adsorption performance for organic pollutant and its regeneration by heterogeneous visible light photo-Fenton process at circumneutral pH. Journal of Hazardous Materials, 2016, 302, 105-113.
- [13] De León M.A., Sergio M., Bussi J. Iron-pillared clays as catalysts for dye removal by the heterogeneous photo-Fenton technique. Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis, 2013, 110, 101-117.
- [14] De León M.A., Rodríguez M., Marchetti S.G., Sapag K., Faccio R., Sergio M., Bussi J. Raw montmorillonite modified with iron for photo-Fenton processes: influence of iron content on textural, structural and catalytic properties. Journal of Environmental Chemical Engineering, 2017, 5, 4742-4750.
- [15] De León M.A., Sergio M., Bussi J., Ortiz de la Plata G., Alfano O. Heterogeneous photo-Fenton process using iron-modified regional clays as catalysts: photonic and quantum efficiencies. Environmental Science and Pollution Research, 2019, 26, 12720-12730.
- [16] Dincer B.Y., Balci S., Tomul F. In-situ mesoporous silica pillared clay synthesis and effect of titanium and iron incorporation to structural properties. Microporous and Mesoporous Materials, 2020, 305, 110342.
- [17] Lai F., Yan F., Wang Y., Li C., Cai J., Zhang Z. Tungstophosphoric acid supported on metal/Si-pillared montmorillonite for conversion of biomass-derived carbohydrates into methyl levulinate. Journal of Cleaner Production, 2021, 314, 128072.
- [18] Voicu A.I., Gârea S.A., Ghebaur A., Nistor C.L., Sârbu A., Vasile E., Mitran R., Iovu H. New nanocarriers based on

porous clay heterostructures (PCH) designed for methotrexate delivery. Microporous and Mesoporous Materials, 2021, 328, 111434.

Licenciamiento

Reconocimiento-NoComercial-SinObraDerivada 4.0 Internacional. (CC BY-NC-ND)