

DETERMINACIÓN DE LA DOSIS ÓPTIMA DE REACTIVO FENTON EN UN TRATAMIENTO DE LIXIVIADOS POR FENTON-ADSORCIÓN

Roger Iván MÉNDEZ NOVELO, José Alfredo PIETROGIOVANNA BRONCA,
Beatriz SANTOS OCAMPO, María Rosa SAURI RIANCHO, Germán GIÁCOMAN VALLEJOS,
y Elba René CASTILLO BORGES

Universidad Autónoma de Yucatán, Facultad de Ingeniería. Av. Industrias No Contaminantes por Periférico Norte, s/n. Tablaje Catastral 12685. Mérida, Yucatán, México. Correo electrónico: mnovelo@uady.mx

(Recibido octubre 2009, aceptado enero 2010)

Palabras clave: Oxidación avanzada, relleno sanitario, adsorción, carbón activado granular, índice de biodegradabilidad

RESUMEN

Los lixiviados son el resultado de la percolación de líquidos a través de los desechos sólidos en proceso de estabilización. La complejidad de su tratamiento se debe a que su composición es altamente tóxica y variable. Lo anterior y el suelo altamente permeable de la península de Yucatán, representan un alto peligro a la salud. Se ensayó un tratamiento de oxidación tipo Fenton-adsorción con el que se obtuvieron mejores resultados que con otros tratamientos fisicoquímicos o biológicos reportados en la literatura. El proceso Fenton consiste en tratar la carga contaminante con una combinación de H_2O_2 y $FeSO_4$ en condiciones ácidas. Se evaluó si la filtración de los lodos producidos durante el proceso Fenton es un proceso más eficiente que la sedimentación. Se determinó el tiempo de contacto óptimo de la oxidación Fenton, así como la dosis óptima de los reactivos usados en función de la DQO del lixiviado, mediante la determinación de las mejores relaciones $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ y $[DQO]/[H_2O_2]$. Después de optimizar el proceso, se filtraron las muestras oxidadas y se ensayó la adsorción mediante columnas empacadas con carbón activado granular. Se concluyó que el lodo generado por el proceso Fenton se remueve más eficientemente mediante filtración que por sedimentación. Los tiempos de contacto óptimos fueron de 5 min para la remoción de la DQO y una hora para la remoción de color, tiempo elegido para proteger el carbón activado. Las mejores relaciones para $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ y $[DQO]/[H_2O_2]$ fueron 0.6 y 9, respectivamente. La eficiencia máxima de remoción después del proceso de adsorción fue de 98.9 % para la DQO y 100 % para el color. El índice de biodegradabilidad final alcanzado después de las pruebas de Fenton-adsorción fue de 0.24.

Key words: Advanced oxidation, landfill, adsorption, granular activated carbon, biodegradability index

ABSTRACT

Leachates are formed as a result of the percolation of liquids, through the solid wastes in stabilization process. Their composition is variable and highly toxic; therefore, leachates treatment is a complex task. Due to the high permeability of the soil of the Yucatán Peninsula leachates represent a high risk to health. Fenton type oxidation and adsorption

treatment have been tested, and they have showed better results than other types of biological or physicochemical treatment. Fenton process consists in treating the contaminant load with a combination of H_2O_2 and FeSO_4 under acidic conditions. Experiments were conducted in order to determine if filtration was better than the sedimentation of the sludges. The optimum contact time and the best relations $[\text{Fe}^{2+}]/[\text{H}_2\text{O}_2]$ and $[\text{COD}]/[\text{H}_2\text{O}_2]$ were determined. Subsequently, the oxidized samples were filtered and the adsorption process was tested using two columns in series packed with activated carbon. It was concluded that the sludge generated by the Fenton process was removed more efficiently through filtration than sedimentation. Optimal contact times were 5 min for COD removal, and 1 hour for colour removal; process time was set to one hour in order to protect the activated carbon. The best relations for $[\text{Fe}^{2+}]/[\text{H}_2\text{O}_2]$ and $[\text{COD}]/[\text{H}_2\text{O}_2]$ were 0.6 and 9 respectively. The maximum removal efficiency after the adsorption process was 98.9% for COD and 100% for colour at zero time of the column. A final biodegradability index of 0.24 was reached after the Fenton-adsorption tests.

INTRODUCCIÓN

Los lixiviados son el resultado de la percolación de líquidos a través de los desechos en proceso de estabilización: líquidos que afloran a la superficie o se infiltran hacia el terreno donde esté instalado un relleno sanitario o un vertedero de basura. Los lixiviados presentan altas cargas de carbono orgánico total (COT) y demanda química de oxígeno (DQO), por lo que contienen cantidades considerables de materia y compuestos orgánicos, sustancias inorgánicas como metales pesados, gran variabilidad de pH, alto contenido de sólidos totales y disueltos, presencia de nitrógeno como N-NH_3 , alta concentración de cloruros, etc. Dicha composición depende de la naturaleza de los desechos (pH, edad, temperatura, tipo de material de cubierta) y de la fase de estabilización en que se encuentren (Borzacconi *et al.* 1996, El-Fadel *et al.* 2002).

Para el tratamiento de los lixiviados se han ensayado diferentes procesos, tanto biológicos (aerobios o anaerobios) como fisicoquímicos (Coulter *et al.* 1997; Waritch *et al.* 1998; Tatsi *et al.* 2003; Rivas *et al.* 2003; Rivas *et al.* 2004; entre otros). En la literatura se encuentra que la concentración de contaminantes de los lixiviados varía con el tiempo, por lo que difícilmente puede emplearse con éxito un único tratamiento a estos líquidos. De manera general, se puede decir que lixiviados de rellenos jóvenes poseen elevadas concentraciones de materia orgánica e índices de biodegradabilidad (DBO_5/DQO) superiores a 0.4, lo que hace posible que sean tratados eficientemente por procesos biológicos; pero en lixiviados de rellenos viejos, con índices de biodegradabilidad inferiores a 0.02, estos tratamientos no son eficientes (Waritch *et al.* 1998; Robles 2005). Mientras la edad del relleno sanitario aumenta, la fracción orgánica

biodegradable en el lixiviado disminuye, lo que resulta en una relación DBO_5/DQO muy baja debido a que los ácidos grasos y otras sustancias fácilmente biodegradables han sido convertidos en metano dentro del relleno (Lau *et al.* 2001). La mayoría de los compuestos orgánicos de rellenos estabilizados son compuestos refractarios y por lo tanto los procesos biológicos para el tratamiento de sus lixiviados tienen una muy limitada efectividad (Lau *et al.* 2001, Yoo *et al.* 2001). Su naturaleza refractaria involucra la necesidad de utilizar métodos alternativos a los procesos de biodegradación para reducir las cargas contaminantes de estos efluentes.

El proceso Fenton trata la carga contaminante con una combinación de peróxido de hidrógeno y sulfato ferroso (reactivo Fenton), a presión atmosférica, temperatura entre 20 y 40 °C y en condiciones ácidas (Martínez y López 2001). El agente responsable de la oxidación es el radical hidroxilo $\bullet\text{OH}$, el cual es en extremo reactivo (potencial estándar de 2.80 V) (Tchobanoglous *et al.* 2004); se forma por la descomposición catalítica del peróxido de hidrógeno en un medio ácido.



La mayor ventaja del reactivo Fenton es que sus componentes son fáciles de manipular, ambientalmente benignos y económicos (Kavitha y Palanivelu 2003), por lo que el proceso Fenton ha sido considerado más viable que otros métodos de tratamiento (Solmaz *et al.* 2006). Por otra parte, ha mostrado mejores resultados que otros procesos fisicoquímicos en lixiviados de un mismo relleno sanitario (Méndez *et al.* 2005).

Nawghare *et al.* (2001) mencionan que la oxidación de materia orgánica biodegradable es menor

que la de no biodegradable o la inorgánica. Un lixiviado tratado por el proceso Fenton aún posee altas concentraciones de materia orgánica y sustancias recalcitrantes a procesos biológicos, por lo que requiere de otro tratamiento antes de su disposición en cuerpos de agua o de otro tipo. Si se somete un lixiviado a la oxidación Fenton, se incrementa su IB; si éste es superior a 0.4, puede ensayarse con éxito un proceso biológico; de otro modo, deberá aplicarse un proceso fisicoquímico, distinto al tipo coagulación-floculación, por lo que un tratamiento como la adsorción podría complementar la remoción de las sustancias remanentes.

La concentración y composición inicial de la carga orgánica que puede oxidarse se relaciona con la dosis y con la relación másica $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ del reactivo Fenton. De lo anterior se desprende la necesidad de determinar las relaciones másicas $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ y $[DQO]/[H_2O_2]$ con las que se alcanza un mayor grado de oxidación y, por tanto, optimizan el proceso en lixiviados. Las proporciones de Fe^{2+}/H_2O_2 y DQO/H_2O_2 usadas en investigaciones anteriores han presentado gran variabilidad, por lo cual es importante determinar los valores óptimos para estas relaciones.

En el **cuadro I** se observa que la relación Fenton $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ varía de 0.016 a 1.67, con valor medio de 0.63, y la relación $[DQO]/[H_2O_2]$ varía de 0.24 a 38.33, con valor medio de 10.83. El pH oscila en el rango de 2.5 a 4. García (2006), trabajando con los lixiviados del relleno sanitario de la ciudad de Mérida, Yucatán, determinó que el valor óptimo de pH es 4, valor utilizado en el presente estudio dado que se trabajó con el mismo lixiviado.

Como producto del proceso Fenton a lixiviados se obtienen elevados volúmenes de lodos poco densos y, por consiguiente, difíciles de remover por acción de la gravedad. Los volúmenes de lodos que se obtienen representan entre 50 y 90 % del lixiviado tratado, por lo que es necesario determinar si resulta más económico remover los lodos generados mediante un proceso de filtración.

En la presente investigación se determinaron las mejores relaciones $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ y $[DQO]/[H_2O_2]$ para el proceso Fenton-adsorción con carbón activado granular, lo cual presenta la particularidad de que son dos tratamientos fisicoquímicos secuenciados con los que se pueden tratar todo tipo de lixiviados, independientemente de la edad de los rellenos de

CUADRO I. COMPARACIÓN DE RESULTADOS DEL PROCESO FENTON A LIXIVIADOS

| Parámetro | Unidad | Mérida a | Italia b | Delaware c | Hong kong d | España 1 e | Estambul f | España 2 g |
|--|----------------|-------------|-------------|---------------|----------------|---------------|---------------|---------------|
| pH | Unidades de pH | 8.57 | 8.2 | 6.67 | 8.5 | - | 7.3 | 7.1 |
| Conductividad | mS/cm | 21.83 | 45.35 | - | - | - | - | 47.1 |
| Alcalinidad | mg/L | 6115.96 | 21470 | 4050 | - | - | 9850 | - |
| DBO ₅ | mg/L | 647 | 2300 | - | 75 | 475 | 12200 | 7100 |
| DQO | mg/L | 9080 | 10540 | 8596 | 1500 | 8100 | 20700 | 6500 |
| COT | mg/L | 2266 | 3900 | 2124 | 470 | - | - | - |
| DBO ₅ /DQO | --- | 0.071 | 0.218 | - | 0.050 | 0.059 | 0.589 | 0.54 |
| Valores óptimos | | | | | | | | |
| Tiempo de reacción | minutos | 20 | 120 | 120 | 30 | 40 | 5 | 60 |
| pH | Unidad de pH | 4 | 3 | 3 | 2.5 | 6 | 3.5 | 3.5 - 4.0 |
| H ₂ O ₂ | mg/L | 600 | 3300 | 10000 | 2550 | 200 | 34000 | 2000 |
| Fe ²⁺ | mg/L | 1000 | 275 | 830 | 2792 | 300 | 558 | 1000 |
| DQO/H ₂ O ₂ | Adimensional | 15.1 | 3.19 | 1.045 | 3.37 | 7.5 | 0.24 | 10.35 |
| Fe ²⁺ / H ₂ O ₂ | Adimensional | 1.67 | 0.083 | 0.083 | 1.09 | 1.5 | 0.016 | 0.5 |
| Eficiencia alcanzada | | | | | | | | |
| DQO | % | 77 | 60 | 61 | 49 | 38 | 70 | 80 |
| COT | % | 71 | - | - | - | - | - | - |
| DBO ₅ | % | 44 | - | - | - | - | - | 98 |
| DBO ₅ /DQO | - | 0.100 | 0.5 | - | - | - | - | - |

a García 2006

b López *et al.* 2003

c Zhang *et al.* 2005

d Lau *et al.* 2001

e Rivas *et al.* 2005

f Calli *et al.* 2005

g Trujillo *et al.* 2006

donde provengan. Para tal efecto se obtuvieron las mayores eficiencias de remoción de parámetros como DBO₅ total, DQO total y color de los lixiviados del relleno sanitario de la ciudad de Mérida.

MATERIALES Y MÉTODOS

Muestreo. Se tomaron muestras compuestas de las cuatro lagunas de evaporación a las que llegan los lixiviados procedentes de los cárcamos de las ocho celdas que conforman el relleno sanitario de Mérida. La primera celda comenzó a operar en noviembre de 1997. El muestreo se realizó dos veces por semana durante el periodo comprendido entre septiembre de 2008 y mayo de 2009.

Sistema experimental. El proceso estudiado consistió en el siguiente tren de tratamiento: Proceso Fenton, remoción de sólidos suspendidos y adsorción.

El ajuste de pH se realizó mediante un medidor de parámetros múltiples con doble entrada marca Hach, modelo HQ40d. La determinación de la DQO se llevó a cabo con el método de reflujos cerrado por espectrofotometría (Castillo *et al.* 2001, APHA 2005) con una modificación: se utilizaron tubos con reactivos preparados por la compañía Hach en lugar de prepararlos como lo dicta la técnica. El color fue determinado mediante el método estándar platino-cobalto 8025 (APHA 2005). La lectura de la DQO y color se llevó a cabo en un espectrofotómetro portátil Hach, modelo DR 2800. La determinación de la DBO₅ se realizó mediante el método de incubación y electrodo de membrana 5210 B (APHA 2005).

Oxidación Fenton. En los lixiviados de la ciudad de Mérida hay una alta presencia de carbonatos y bicarbonatos, la cual disminuye la eficiencia de la reacción Fenton (Beltrán *et al.* 1998). La concentración de carbonatos y bicarbonatos en lixiviados con un pH de 4 o inferior es nula (Giacoman y Quintal 2006), lo cual explica que sea el valor óptimo para la realización del proceso Fenton. Se ajustó el pH del lixiviado usando H₂SO₄ concentrado (97 % w/w). Las dosis de peróxido de hidrógeno (H₂O₂ a 30 % w/w, grado reactivo) y de hierro (Fe²⁺, a partir de Fe₂SO₄•7H₂O grado analítico de Baker) se mezclaron durante un minuto a 300 rpm en equipos para pruebas de jarras marca Phillips & Bird.

Prueba de sedimentabilidad. Se realizó el proceso Fenton a tres lixiviados de lagunas diferentes con 600 mg/L de H₂O₂ y 1000 mg/L de Fe²⁺ (valores óptimos,

García 2006), previo ajuste del pH a 4. Posteriormente se realizaron pruebas de sedimentación en un cono Imhoff; los datos de sedimentabilidad se obtuvieron durante 1, 2, 3, 4, 18, 24, 36 y 48 h.

Comparación entre sedimentación y filtración de los lodos. Los valores de DQO y color del sobrenadante se determinaron después de una hora de sedimentación contra el obtenido con el proceso de filtración. La filtración se llevó a cabo con filtros GF/C marca Whatman No. 41 (20-25 µm de diámetro de poro).

Determinación del tiempo de contacto óptimo. A los 5, 10, 20, 40, 60, 80, 100 y 120 minutos de iniciada la oxidación Fenton, se filtró el lodo, del cual se determinaron por triplicado la DQO y color. El valor óptimo corresponde al tiempo mínimo requerido para obtener el mayor porcentaje de remoción tanto de DQO como de color.

Determinación de las mejores relaciones [Fe²⁺]/[H₂O₂] y [DQO]/[H₂O₂]. Se ensayó un análisis de varianza de dos vías (Montgomery 1983) en el que las fuentes fueron cada una de las relaciones estudiadas a los siguientes niveles: [Fe²⁺]/[H₂O₂] con valores de 0.2, 0.6, 1.0, 1.4 y 1.8; la relación [DQO]/[H₂O₂] con valores de 1, 5, 9, 13 y 17. Los ensayos se realizaron por triplicado y de manera aleatoria; se midió el color y la DQO total al principio y después de la filtración. En todos los casos de análisis estadísticos se utilizó el programa Statgraphics, versión 5.1 para Windows, para elegir el ensayo óptimo, así como análisis de varianza factorial y el método de diferencia mínima significativa (DMS) de Fischer para contrastar las medias de cada tratamiento.

Adsorción con carbón activado granular. La adsorción se llevó a cabo en columnas de 5.7 cm de diámetro y 58.8 cm de longitud, operadas en serie y con flujo ascendente y continuo. Se hizo pasar el lixiviado filtrado por la columna empacada con carbón activado granular de la marca Merck (tamaño aproximado de grano 1.24 mm, residuos de calcinación ≤ 5 %, densidad aparente 40 g/100 mL, densidad real 1.53 g/cm³). Se usó una bomba peristáltica con un gasto de 6 mL/min, flujo que corresponde a un tiempo de contacto de cuatro horas. El efluente se vigiló desde su primera salida cada hora, durante las primeras 24 horas.

Evaluación del tren de tratamiento. Se tomaron muestras por triplicado en cada punto del tren de tratamiento: al lixiviado crudo, después del proce-

so Fenton, después de la filtración y la última del efluente de las columnas de adsorción. A todas se les determinaron los siguientes parámetros: DBO₅ total, DQO total y color.

RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En los procesos de Fenton y adsorción se pueden remover no sólo partículas suspendidas, sino también sólidos disueltos. Por esta razón, existen reportes de experiencias exitosas de remoción de materia orgánica en muchos tipos de aguas residuales, incluso de tratamiento de lixiviados (Lau *et al.* 2001, Yoo *et al.* 2001, Xiao *et al.* 2002, Kargi y Pamukoglu 2004a, b, Lopes y Peralta 2005, Rivas *et al.* 2005). No obstante, los efluentes obtenidos poseen elevadas cargas orgánicas e inorgánicas que deben ser eliminadas para cumplir con las condiciones de descarga. Por este motivo se utilizaron ambos procesos en secuencia, primero el proceso Fenton para optimizar la remoción de DQO y color, y posteriormente el de adsorción. La optimización de la remoción de color permitirá un uso más prolongado del carbón activado del segundo proceso, por ser el más caro.

Prueba de sedimentabilidad. Los resultados se muestran en la **figura 1**, donde se aprecia que la sedimentación sucede en las primeras 18 horas. Se obtuvieron volúmenes de lodo de 480 a 630 mL/L, lo cual significa condiciones muy pobres para una sedimentación eficiente. Por tal motivo, resulta poco práctico eliminar con un decantador los lodos generados en el proceso Fenton.

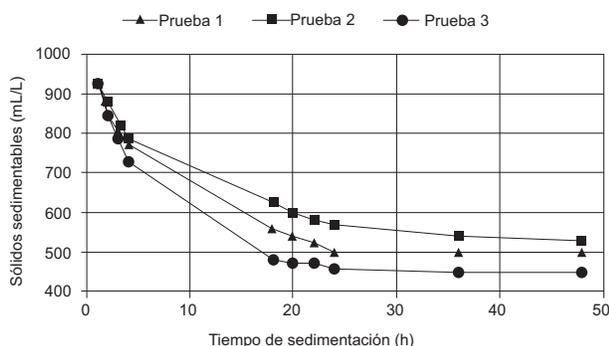


Fig. 1. Prueba de sedimentabilidad de lixiviados tratados con Fenton

Comparación entre sedimentación y filtración de los lodos. En el **cuadro II** se muestran los valores de DQO y color del sobrenadante de los lixiviados tratados con el proceso Fenton, seguido de la sedi-

CUADRO II. RESULTADOS DE LA COMPARACIÓN DE FILTRACIÓN Y SEDIMENTACIÓN

| Muestra | Parámetros | | |
|-----------------|------------|-----------------|-------------------------------|
| | DQO (mg/L) | Color (U Pt-Co) | Sedimentabilidad (mL/L) (1 h) |
| Lixiviado crudo | 8510 | 10,600 | N/A |
| Sedimentación | 1 | 2390 | 1780 |
| | 2 | 2250 | 1920 |
| | 3 | 2320 | 1680 |
| | 4 | 2300 | 1470 |
| | 5 | 2230 | 1680 |
| | Promedio | 2298 | 1706 |
| | Desv. est. | 63.0 | 164.6 |
| Filtración | 1 | 1950 | 1120 |
| | 2 | 2090 | 970 |
| | 3 | 2050 | 900 |
| | 4 | 1880 | 1220 |
| | 5 | 1720 | 1390 |
| | Promedio | 1938 | 1392 |
| | Desv. est. | 147.2 | 196.1 |

N/A: No aplica

mentación y de la filtración, así como la sedimentabilidad después de una hora.

El promedio de la DQO del sobrenadante fue de 2298 mg/L, con una desviación estándar de 63; en la filtración de los lodos se presenta un promedio de 1938 mg/L, con una desviación estándar de 164.56.

De forma similar, con la filtración se produce una mayor reducción de color que con la sedimentación; el valor promedio fue de 1392 U Pt-Co, con una desviación estándar de 147.2. En cambio, con la sedimentación se logró un promedio de 1706 U Pt-Co, con una desviación estándar de 196.1. Otra ventaja de la filtración sobre la sedimentación es la rapidez con la que se realiza.

Determinación del tiempo de contacto óptimo.

En los estudios presentados en el **cuadro I** se puede observar que los tiempos de reacción del proceso Fenton para la remoción de la DQO varían de 5 a 120 minutos. Como se observa en la **figura 2**, el tiempo de oxidación óptimo del proceso Fenton para la remoción de DQO fue de 5 minutos; a tiempos mayores no se obtiene remoción adicional. García (2006) obtuvo 20 minutos como tiempo óptimo para el proceso Fenton, siendo éste el menor que experimentó. Cabe destacar que en su investigación sólo

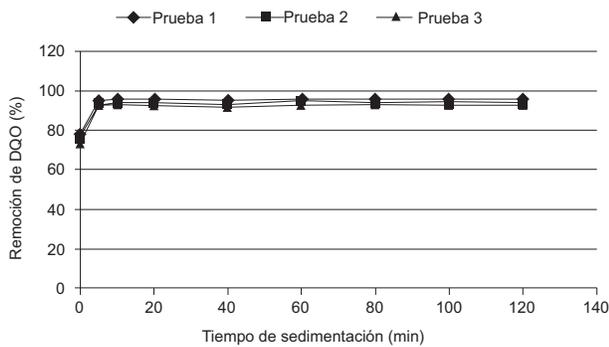


Fig. 2. Eficiencia de remoción de DQO de lixiviados en función del tiempo de oxidación Fenton

se probó el tratamiento de lixiviados con el proceso Fenton, mientras que ahora se propone un tren de tratamiento Fenton-adsorción, por lo que era relevante determinar conjuntamente los tiempos óptimos para la remoción de DQO y color. La remoción óptima para el color se alcanzó después de una hora (**fig. 3**), por lo tanto se estableció como el tiempo de contacto óptimo, debido a que una reducción en el color podría proteger el carbón activado que será usado en el proceso de adsorción.

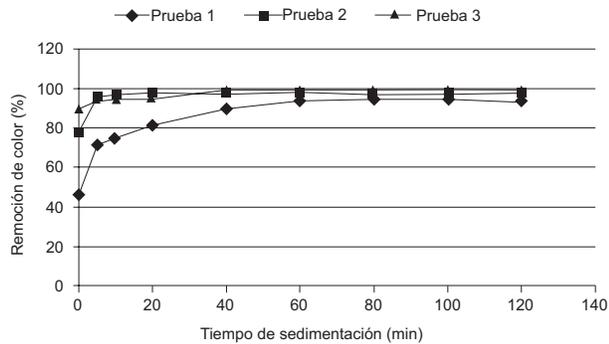


Fig. 3. Eficiencia de remoción de color de lixiviados en función del tiempo de oxidación Fenton

Determinación de las mejores relaciones $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ y $[DQO]/[H_2O_2]$. En el **cuadro I** puede observarse que la relación $[DQO]/[H_2O_2]$ varía de 0.24 a 15.1 y la relación $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ varía de 0.016 a 1.67 y en ninguno de los estudios citados se hace referencia a una relación óptima.

En el **cuadro III** se presentan los resultados promedio de la optimización de la dosis del reactivo Fenton en función de la DQO y del color del lixiviado. De los 75 ensayos de pruebas de jarras a lixiviados, las relaciones que resultaban en una adición de una gran cantidad de iones Fe^{2+} ocasionaban eficiencias relativamente bajas de DQO y color. De acuerdo a Neyens y Baeyens (2003) cuando la cantidad de io-

CUADRO III. REMOCIÓN DE DQO Y COLOR DE LIXIVIADOS SOMETIDOS AL PROCESO FENTON EN FUNCIÓN DE LAS RELACIONES $[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ y $[DQO]/[H_2O_2]$

| $[Fe]/[H_2O_2]$ | $[DQO]/[H_2O_2]$ | Remoción de DQO (%) | Remoción de color (%) |
|-----------------|------------------|---------------------|-----------------------|
| 0.2 | 1 | 79.15 | 88.13 |
| 0.2 | 5 | 58.74 | 94.18 |
| 0.2 | 9 | 50.69 | 88.05 |
| 0.2 | 13 | 38.36 | 57.19 |
| 0.2 | 17 | 31.25 | 37.30 |
| 0.6 | 1 | 76.42 | 17.95 |
| 0.6 | 5 | 78.13 | 91.04 |
| 0.6 | 9 | 72.69 | 95.65 |
| 0.6 | 13 | 60.22 | 95.25 |
| 0.6 | 17 | 63.50 | 94.33 |
| 1.0 | 1 | 72.30 | 0.00 |
| 1.0 | 5 | 77.23 | 64.74 |
| 1.0 | 9 | 76.27 | 90.84 |
| 1.0 | 13 | 75.85 | 93.85 |
| 1.0 | 17 | 68.83 | 93.84 |
| 1.4 | 1 | 69.10 | 0.00 |
| 1.4 | 5 | 76.96 | 23.01 |
| 1.4 | 9 | 77.90 | 60.64 |
| 1.4 | 13 | 76.89 | 91.18 |
| 1.4 | 17 | 72.86 | 93.04 |
| 1.8 | 1 | 67.24 | 2.61 |
| 1.8 | 5 | 76.20 | 3.45 |
| 1.8 | 9 | 77.63 | 34.72 |
| 1.8 | 13 | 75.13 | 90.28 |
| 1.8 | 17 | 71.87 | 91.84 |

nes Fe^{2+} excede a la concentración de H_2O_2 , tiende a presentarse un efecto de coagulación química que interfiere con la remoción de contaminantes.

El ANOVA indica que ambas relaciones ($[Fe^{2+}]/[H_2O_2]$ y $[DQO]/[H_2O_2]$) fueron significativas a niveles de confianza superiores a 95 %, tanto para la remoción de DQO como de color. En las **figuras 4 y 5** se presentan la remoción promedio de DQO y color de lixiviados en función de la relación $[DQO]/[H_2O_2]$, con intervalos de confianza (DMS) cons-

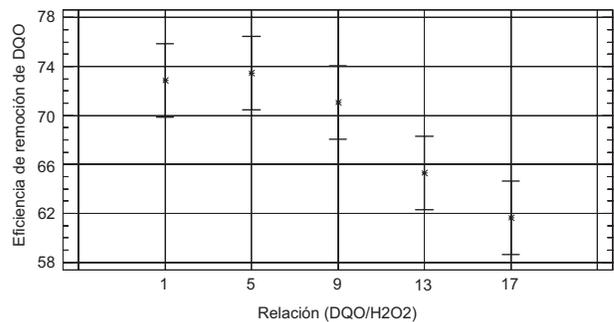


Fig. 4. Intervalos de confianza de la prueba de DSM para la remoción de DQO en función de la relación $[DQO]/[H_2O_2]$

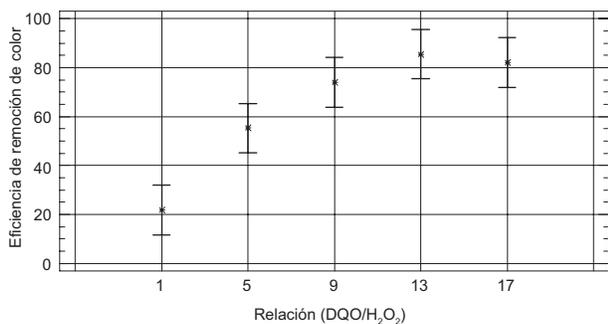


Fig. 5. Intervalos de confianza de la prueba de DSM para la remoción de color en función de la relación [DQO/H₂O₂]

truidos a 95 %. En la **figura 4** se aprecia que las relaciones 1, 5 y 9 presentaron eficiencias similares respecto a la DQO; se consideran estadísticamente iguales, con 95 % de confianza. En cambio, respecto al color (**Fig. 5**), las relaciones 9, 13 y 17 tuvieron la mejor eficiencia. Por tanto, la relación 9 es la única que optimiza ambos parámetros.

En las **figuras 6 y 7** se presenta la remoción promedio de DQO y color en función de la relación [Fe²⁺]/[H₂O₂], con intervalos de confianza (DMS) construidos a 95 %. En la **figura 6** se aprecia que las relaciones 0.6, 1, 1.4 y 1.8 presentaron eficiencias similares respecto a la DQO y se consideran estadísticamente iguales con 95 % de confianza. En cambio, respecto al color (**Fig. 7**), las relaciones 0.2, 0.6 y 1 tuvieron la mejor eficiencia. Por tanto, se observa que las relaciones de 1 y 0.6 optimizan ambos parámetros; aunque no hay diferencia significativa entre ellas, la relación de 0.6 es preferida puesto que requiere menor cantidad de reactivos.

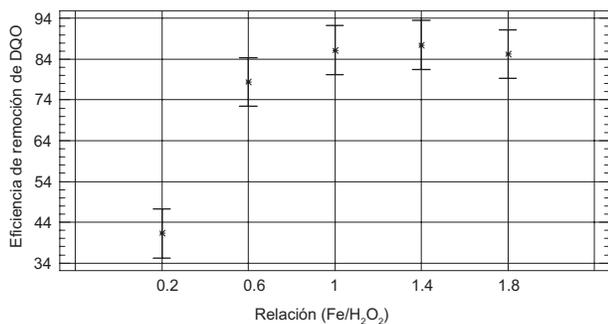


Fig. 6. Intervalos de confianza de la prueba de DSM para la remoción de DQO en función de la relación [Fe²⁺]/[H₂O₂]

Con los resultados obtenidos pueden establecerse las concentraciones de Fe²⁺ y de H₂O₂ óptimas según la concentración de DQO del lixiviado.

Adsorción con carbón activado granular. Para la adsorción con carbón activado se realizó nuevamen-

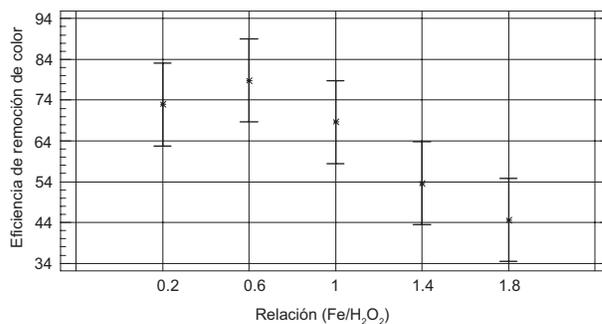


Fig. 7. Intervalos de confianza de la prueba de DSM para la remoción de color en función de la relación [Fe²⁺]/[H₂O₂]

te el proceso Fenton, con tiempo y dosis óptimos, al lixiviado crudo; éste presentaba las siguientes características: DQO = 17 450 mg/L, color = 26 160 U Pt-Co. El efluente se vigiló desde su primera salida cada hora, durante las primeras 24 horas para ambas columnas. Luego se muestreó a las 28, 36, 42 y 48 horas.

En las **figuras 8 y 9** se muestran los gráficos obtenidos –en términos de DQO y color– durante las 48 horas de adsorción en las columnas. En la **figura 8** se observa que se removió totalmente el color a las 14 horas en la primera columna, y a las 16 horas en la segunda columna. En la **figura 9** no se observa una remoción constante de DQO, lo que indica que se requieren mayores volúmenes de carbón activado para construir la zona de transición. Se concluye que se pueden obtener concentraciones de DQO inferiores a 200 mg/L. No obstante en los reportes de remoción de materia orgánica en aguas residuales (Lau *et al.* 2001, Yoo *et al.* 2001, Xiao *et al.* 2002, Kargi y Pamukoglu 2004a, b, Lopes y Peralta 2005, Rivas *et al.* 2005), no se encontraron experiencias cuyas concentraciones fueran menores a las obtenidas en el presente estudio.

En el **cuadro IV** se muestra un concentrado de los resultados obtenidos en cada etapa del tren de

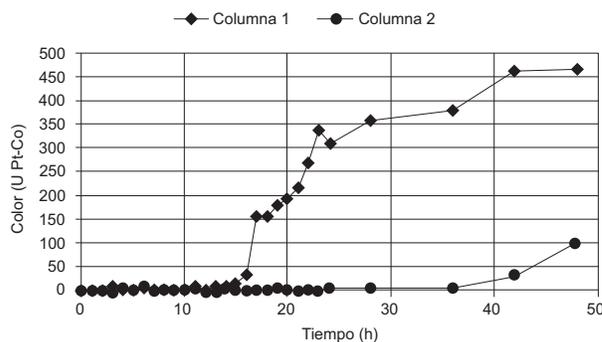


Fig. 8. Curva de avance de la prueba de adsorción para la remoción de color

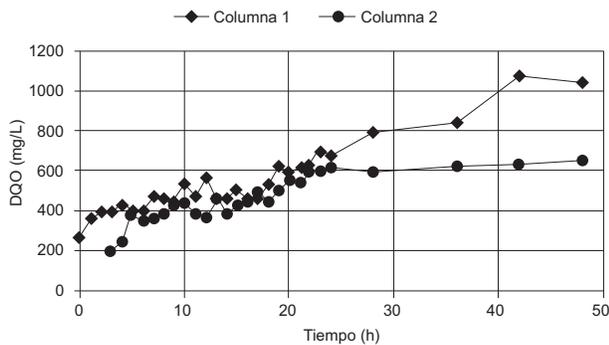


Fig. 9. Curva de avance de la prueba de adsorción para la remoción de DQO

tratamiento y los valores de remoción respecto al valor del lixiviado crudo (mostrados entre paréntesis).

El lixiviado tratado mostró un pH muy alto comparado con otros lixiviados. Słomczyńska y Słomczyński (2004) reportan valores de pH de entre 5.4 y 7 en seis rellenos polacos y dos estadounidenses. Los valores altos de pH obtenidos en el relleno sanitario de la ciudad de Mérida se deben al material de cubierta utilizado (Sahcab), de naturaleza caliza y estructura frágil, por lo que se comprime al ser sometido a la compactación durante la etapa de construcción del relleno. Lo anterior reduce su porosidad y produce un doble efecto: actúa como filtro reteniendo las partículas de mayor tamaño y propicia una disolución de sus carbonatos. Por otra parte, el lixiviado crudo mostró valores altos de color y DQO, dando un IB muy bajo (0.033). Después de realizado el proceso Fenton, el pH bajó de 4 a 2.7. La filtración de los lodos no produjo un cambio en el pH, ni una mejoría notable del IB. Se obtuvieron eficiencias de remoción de 77 % de DQO y 95.7 % de color, que concuerdan con los resultados obtenidos por García (2006) en la etapa de optimización de las relaciones del proceso Fenton; en su caso, los lixiviados fueron obtenidos en épocas de lluvias y nortes, contrario a esta prueba, que fueron obtenidos en época de secas.

CUADRO IV. RESULTADOS FINALES DEL PROCESO FENTON - ADSORCIÓN

| Muestra | pH | DQO (mg/L) | Color (U Pt-Co) | DBO ₅ (mg/L) | IB |
|-------------------|------|----------------|------------------|-------------------------|-------|
| Lixiviado crudo | 9.0 | 17450 | 26160 | 580 | 0.033 |
| Fenton-filtración | 2.7 | 4000 (77 %) | 1120 (95.7 %) | 335 (42 %) | 0.083 |
| Adsorción | 10.0 | 190 (99 %) | 0 (100 %) | 45 (92 %) | 0.24 |

Los porcentajes de remoción aparecen entre paréntesis

En el **cuadro I** se observa que las eficiencias de remoción de DQO obtenidas con el proceso Fenton en otros estudios se encuentran entre 60 y 85 %, semejantes a las obtenidas en el presente trabajo (77 %), no obstante los valores absolutos de los parámetros de contaminación continúan siendo elevados, por lo que los lixiviados tratados no pueden ser dispuestos directamente. Por tal motivo resultaba necesario ensayar un tratamiento complementario, pero no del tipo biológico pues el valor del IB obtenido fue de 0.083. Tampoco resultaría ensayar un tratamiento fisicoquímico del tipo coagulación-floculación por ser un proceso semejante al Fenton. Con el proceso de adsorción se pueden remover sólidos suspendidos y disueltos, por lo que resulta complementario al proceso Fenton. Posterior a la adsorción se obtuvo un efluente altamente básico y una mejora notable del IB (0.24); sin embargo, no es suficientemente elevado para tratarlo mediante un proceso biológico, para lo cual se recomienda un IB de 0.4-0.5 (Millot 1986, Warith y Sharma 1998). Por lo tanto, optimizando el proceso de adsorción, se pueden obtener remociones de materia orgánica que permitan cumplir con las condiciones de descarga mexicanas.

CONCLUSIONES

- La dosis óptima del reactivo Fenton para el tratamiento de lixiviados en un proceso Fenton-adsorción se obtuvo con las relaciones $[Fe^{2+}]/[H_2O_2] = 0.6$ y $[DQO]/[H_2O_2] = 9$.
- Los tiempos de contacto óptimos fueron 5 min para remoción de DQO y una hora para remoción de color, tiempo óptimo de elección del proceso Fenton-adsorción a fin de proteger lo más posible el carbón activado.
- La eficiencia máxima de remoción después del proceso de adsorción fue 99 % para DQO y 100 % para color.
- El proceso de filtración resultó más eficiente que el de sedimentación para la remoción de los lodos generados en el proceso Fenton, en términos de eficiencia de remoción de DQO y color.
- Las pruebas de sedimentabilidad de los lodos del proceso Fenton mostraron valores muy pobres (> 450 mL/L después de 48 horas).
- El índice de biodegradabilidad alcanzado después de las pruebas de Fenton-adsorción fue de 0.24.

REFERENCIAS

- APHA (2005). *Standards methods for the examination of water and wastewater*. 21^a ed. American Public Health Association. Washington, EUA. 1368 p.
- Beltrán F., González M., Rivas F. y Álvarez P. (1998). Fenton reagent advanced oxidation of polynuclear aromatic hydrocarbons in water. *Water Air Soil Poll.* 105, 685-700.
- Borzacconi L., López I. y Anido C. (1996). Metodología para la estimación de la producción y concentración de lixiviado de un relleno sanitario. XXV Congreso Interamericano de Ingeniería Sanitaria y Ambiental. México D.F. 31 de octubre a 3 de noviembre, 1996. Tomo III.
- Castillo E., Méndez R., Comas R. y Pat R. (2001). Selección del método más apropiado para la determinación de la DQO en lixiviados de un relleno sanitario. *Ingeniería* 5, 21-28.
- Coulter R. G. y Mahoney E. M. (1997). Selecting optimum technology mixes for landfill leachate treatment. *Air & Waste Management Association*, Canadá.
- Calli B., Mertoglu B. y Inanc I. (2005). Landfill leachate management in Istanbul: applications and alternatives. *Chemosphere* 59, 819-829.
- El-Fadel M., Bou-Zeid E., Chahine W. y Alayli B. (2002). Temporal variation of leachate quality from pre-sorted and baled municipal solid waste with high organic and moisture content. *Waste Manage.* 22, 269-282.
- García R.B. (2006). Remoción de materia orgánica en lixiviados usando el proceso de oxidación Fenton y coagulación-floculación. Tesis de Maestría. Universidad Autónoma de Yucatán, México.
- Giácoman V.G. y Quintal F.C. (2006). Influencia del cambio en el potencial de hidrógeno (pH) en la disminución de contaminantes y metales pesados del lixiviado de un relleno sanitario. XXX Congreso Interamericano de Ingeniería Sanitaria y Ambiental. Punta del Este, Uruguay. 26 al 30 de noviembre, 2006.
- Kargi K. y Pamukoglu Y.M. (2004a). Repeated fed-batch biological treatment of pre-treated landfill leachate by powdered activated carbon addition. *Enzyme Microb. Tech.* 34, 422-428.
- Kargi K. y Pamukoglu Y.M. (2004b). Powdered activated carbon added biological treatment of pre-treated landfill leachate in a fed-batch reactor. *Biotechnol. Lett.* 25, 695-699.
- Kavitha V. y Palanivelu K. (2003). Degradation of 2-chlorophenol by Fenton and photo-Fenton processes: a comparative study. *J. Environ. Sci. Heal.* A38, 1215-1231.
- Lau I., Wang P. y Fang H. (2001). Organic removal of anaerobically treated leachate by Fenton coagulation. *J. Environ. Eng.* 7, 666-669.
- Lopes J. y Peralta P. (2005). Use of advanced oxidation processes to improve the biodegradability of mature landfill leachates. *J. Hazard. Mater.* 123, 181-186.
- López A., Pagano M., Volpe A. y Di Pinto A. (2004). Fenton's pre-treatment of mature landfill leachate. *Chemosphere* 54, 1005-1010.
- Martínez E.C. y López G.D. (2001). Tratamiento químico de contaminantes orgánicos: el proceso Fenton. *Ingeniería Química* 375, 149-153.
- Méndez R., Castillo E., Sauri M., Quintal C., Giácoman V. y Jiménez B. (2005). Physico-chemical treatment of Merida landfill leachate for chemical oxygen demand reduction by coagulation. *Waste Manage. Res.* 23, 560-564.
- Millot N. (1986). Les lixiviats de décharges contrôlées: caractérisation analytique; étude des filières de traitement. Tesis Doctoral. Institut National des Science Appliquées de Lyon, Francia.
- Montgomery D.C. (1983). *Design and analysis of experiments*. 2^a ed. John Wiley & Sons, Nueva York, 538 p.
- Nawghare P., Rao N.N., Bejankiwar R., Szyprkiewicz L. y Kaul S.N. (2001). Treatment of phosphoric acid plant wastewater using Fenton's reagent and coagulants. *J. Environ. Sci. Heal.* A36, 2011-2026.
- Neyens E. y Baeyens N. (2003). A review of classic Fenton's peroxidation as an advanced oxidation technique. *J. Hazard. Mater.* 28, 33-50.
- Rivas F.J., Beltrán F., Carvalho F., Acedo B. y Gimeno O. (2004). Stabilized leachates: sequential coagulation-flocculation + chemical oxidation process. *J. Hazard. Mater.* B116, 95-102.
- Rivas F. J., Beltrán F., Gimeno O. y Carvalho F. (2003). Fenton like oxidation of landfill leachate. *J. Environ. Sci. Health.* A38, 371-379.
- Rivas F.J., Beltrán F., Carvalho F., Gimeno O. y Frades J. (2005). Study of different integrated physical-chemical + adsorption processes for landfill leachate remediation. *Ind. Eng. Chem. Res.* 44, 2871-2878.
- Robles M. F. (2005). *Generación de biogás y lixiviados en los rellenos sanitarios*. 1^a ed. Instituto Politécnico Nacional, México 108 p.
- Słomczyńska B. y Słomczyński T. (2004). Physico-chemical and toxicological characteristics of leachates from MSW landfills. *Pol. J. Environ. Stud.* 13, 627-637.
- Solmaz S.K. Seval, Birgül A., Gökhan E. y Yonar T. (2006). Colour and COD removal from textile effluent by coagulation and advanced oxidation processes. *Color Technol.* 122, 102-109.
- Tatsi A.A., Zouboulis A.I., Matis K.A. y Samaras P. (2003). Coagulation-flocculation pre-treatment of sanitary landfill leachates. *Chemosphere* 53, 737-744.
- Tchobanoglous G., Burton F.L. y Stensel H.D. (2004). *Wastewater engineering: treatment and reuse*. Metcalf

- y *Eddy*. 4^a ed. McGraw-Hill Professional, Nueva York. p. 1819 + XXVIII.
- Trujillo D., Font X. y Sánchez A. (2006). Use of Fenton reaction for the treatment of leachate from composting of different wastes. *J. Hazard. Mater.* 138, 201-204.
- Warith M. y Sharma R. (1998). Technical review of methods to enhance biological degradation in sanitary landfills. *Water Qual. Res. J. Can.* 3, 417-437.
- Xiao Y., Wang G., Liu H., Zhao H., Zhang J., Sun C. y Wu M. (2002). Treatment of H-acid wastewater by photo-Fenton reagent combined with a biotreatment processes: a study on optimum conditions of pretreatment by a photo-Fenton process. *Environ. Contam. Tox.* 69, 430-435.
- Yoo H.C., Cho S.H. y Ko S.O. (2001). Modification of coagulation and Fenton oxidation processes for cost-effective leachate treatment. *J. Environ. Sci. Heal.* A36, 39-48.
- Zhang K., Choi J.C. y Huang C.P. (2005). Optimization of Fenton process for the treatment of landfill leachate. *J. Hazard. Mater.* 125, 166-174.