

RESUMEN

En la presente Tesis Doctoral se estudió la reactividad de un conjunto de contaminantes emergentes (CE) presentes en aguas naturales de salida de depuradoras urbanas y la posibilidad de implementar un proceso foto-Fenton en condiciones de pH ligeramente ácidas empleando sustancias solubles bio-orgánicas (SBO) como auxiliares químicos.

En primer lugar se realizó un estudio mecanístico para indagar sobre el papel desarrollado por diversas especies reactivas, generadas fotoquímicamente mediante procesos de oxidación avanzada, en la oxidación de una mezcla de contaminantes emergentes. Entre estas especies oxidantes se encuentra el radical hidroxilo ($\text{OH}\cdot$), el oxígeno singlete ($^1\text{O}_2$), y los estados excitados de los fotocatalizadores capaces de actuar en procesos de transferencia electrónica.

Los resultados obtenidos muestran que el proceso de degradación de los CE mediante foto-Fenton es demasiado complejo para poder ser explicado únicamente mediante la reacción directa del radical $\text{OH}\cdot$. Posiblemente, tras ser generado, el radical $\text{OH}\cdot$ reacciona con las especies presentes en el medio de forma que se generan radicales de vida larga que contribuyen a la degradación de los CE o bien inicia procesos en cadena.

El rosa de bengala, conocido generador de $^1\text{O}_2$, mostró muy baja reactividad con los CE en condiciones fotoquímicas. Este hecho unido a los bajos valores obtenidos para las constantes de reacción del $^1\text{O}_2$ con los CE, nos indica que la degradación mediante reacción con oxígeno singlete a estas concentraciones es muy ineficiente.

Los estudios de los procesos de transferencia electrónica empleando trifenilpirilio (TPP^+) y trifeniltiopirilio (TPTP^+) muestran que la degradación de los CE se produce desde los estados excitados singlete y triplete de los fotocatalizadores, obteniéndose unos resultados ligeramente superiores mediante el empleo del TPTP^+ .

Los SBO son materiales extraídos de la fracción húmeda de los residuos urbanos. Estas sustancias están constituidas por una mezcla de macromoléculas con un amplio rango de tamaños que oscila de 67 a 463 $\text{kg}\cdot\text{mol}^{-1}$. Además su composición química presenta similitudes estructurales con algunas sustancias que se encuentran en la materia orgánica natural y que han sido empleadas en procesos fotoquímicos solares para el tratamiento de aguas residuales.

La caracterización de los SBO ha demostrado que estas sustancias son biocompatibles, estables tras 24 horas de irradiación y capaces de mejorar la eficiencia del foto-Fenton en condiciones de pH ligeramente ácidas.

Los resultados obtenidos en la optimización de las variables operacionales en el proceso foto-Fenton en presencia de SBO sugieren que se ha producido una modificación en el mecanismo del proceso foto-Fenton de forma que se ha desplazado el valor óptimo de pH desde 2,8 a valores cercanos a 4. Por tanto el radical hidroxilo puede no ser la especie principal y entrar en juego otras especies que no han podido ser identificadas con certeza debido a la complejidad del proceso.

Los SBO son capaces de generar especies reactivas, sin embargo se ha de llegar a un equilibrio entre la generación de especies reactivas y el efecto filtro producido por su acusada coloración, así como por la competencia de los propios SBO por las especies reactivas generadas.