

# REMOCIÓN DE CONTAMINANTES EMERGENTES EN AGUAS RESIDUALES UTILIZANDO REACTORES ANÓXICO Y AEROBIO CON MEMBRANA SUMERGIDA

Quiñones Rodríguez Italivi<sup>1\*</sup>, Mijaylova Nacheva Petia<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Universidad Nacional Autónoma de México

<sup>2</sup>Instituto Mexicano de Tecnología del Agua

\*Autor correspondiente: Programa de Maestría y Doctorado en Ingeniería Ambiental UNAM-IMTA, Blvd. Paseo Cuauhnáhuac 8532, Progreso, Jiutepec, Morelos 62550, México. Email: ita\_qr@hotmail.com, italivi@comunidad.unam.mx

## Resumen

Las aguas residuales representan uno de los principales problemas para el medio ambiente y la salud humana, causando contaminación de cuerpos de agua. El tratamiento de aguas residuales permite obtener efluentes de calidad adecuada que no provocan efectos negativos en los cuerpos receptores, permitiendo implementar sistemas de reúso del agua. El objetivo del presente trabajo fue evaluar la remoción de contaminantes emergentes (ácido mefenámico, fluoxetina y metoprolol) presentes en aguas residuales utilizando un sistema conformado por dos reactores con biomasa suspendida: anóxico y biorreactor con membrana sumergida (BRM) aerobio, operados en serie. El sistema experimental se operó durante 294 días, evaluando tres condiciones de operación. Durante la primera fase se operó con un caudal de 2 L·h<sup>-1</sup>, tiempos de residencia hidráulica (TRH) de 4.5 y 8.5 h en el reactor anóxico y BRM, respectivamente y un tiempo de retención de sólidos (TRS) de 30 d. Durante la segunda fase, el caudal fue de 3.3 L·h<sup>-1</sup>, se evaluaron TRH menores, (3.0 y 5.1 h en el reactor anóxico y aerobio, respectivamente) con un TRS de 20 d. En la tercera fase se operó con un caudal de 5.6 L·h<sup>-1</sup>, TRH de 1.6 h en el reactor anóxico y 2.7 h en el BRM y un TRS de 10 d. La concentración de biomasa fue 1,400-1,800 mgSST·L<sup>-1</sup> en el reactor anóxico y 2,800-3,600 mgSST·L<sup>-1</sup> en el BRM. Las remociones globales de los compuestos emergentes fueron de 98.3±1.9% para el ácido mefenámico, 99.5±0.6% para la fluoxetina y 97.4±3.1% para el metoprolol. Se obtuvieron efluentes con concentraciones menores de 2.3 µg·L<sup>-1</sup> para ácido mefenámico, 0.056 µg·L<sup>-1</sup> para fluoxetina y 1.9 µg·L<sup>-1</sup> para metoprolol. Las remociones globales de DQO<sub>soluble</sub>, N-NH<sub>4</sub>, NT y P-PO<sub>4</sub> fueron de 95.4±5.6%, 93.6±7.8%, 82.7±8.1% y 30.9±6.1%, respectivamente. Las concentraciones de N-NH<sub>4</sub> y P-PO<sub>4</sub> en el efluente fueron menores de 2 y 7 mg·L<sup>-1</sup>, respectivamente, mientras para DQO<sub>soluble</sub> y NT menores de 6 mg·L<sup>-1</sup>. De acuerdo con los resultados obtenidos, el sistema de tratamiento propuesto permite lograr simultáneamente altas remociones de materia orgánica, nitrógeno total y compuestos emergentes.

**Palabras clave:** Ácido mefenámico, BRM aerobio, Contaminantes emergentes, DQO<sub>soluble</sub>, Fluoxetina, Metoprolol, Nitrógeno, Reactor anóxico.

## Introducción

Las instalaciones de tratamiento de aguas residuales con procesos biológicos convencionales fueron diseñadas para remover materia orgánica biodegradable y no para la remoción de compuestos químicos con estructuras complejas (Daughton, 2004). Recientemente una nueva problemática ha surgido en relación al tratamiento de las aguas residuales: la presencia de microcontaminantes o contaminantes emergentes (CE). Estos son compuestos de diverso origen y naturaleza química, están presentes en bajas concentraciones (ng·L<sup>-1</sup> a µg·L<sup>-1</sup>) y son considerados muy perjudiciales para la salud humana y el medio ambiente, ya que pueden causar diversos efectos en los organismos (toxicidad crónica, disrupción endocrina y bioacumulación) (Patiño et al., 2014). Los CE incluyen una gran variedad de compuestos químicos, productos farmacéuticos, de cuidado personal (EPA, 2010), agentes tensoactivos, plastificantes, aditivos industriales, etc. (Gil et al., 2012). Posiblemente los fármacos y los productos de cuidado personal sean los contaminantes emergentes más importantes (Alegre Galván, 2008), debido a que son ampliamente usados en la medicina veterinaria, la práctica agrícola, la salud humana y el cuidado cosmético (Daughton, 2004). Las técnicas analíticas, como la cromatografía de gases y líquidos y espectrometría de masas han hecho posible la detección de compuestos polares, tales como la mayoría de los productos farmacéuticos, metabolitos y productos de transformación (Kümmerer, 2011).

La eliminación incompleta de estos compuestos resulta en su presencia en los efluentes de las plantas de tratamiento y, finalmente, en las aguas superficiales (Kwon y Rodriguez, 2013). La remoción efectiva de los CE en las plantas de tratamiento es importante para evitar los efectos nocivos en los cuerpos de agua receptores (Secondes et al., 2014). Una estrategia para la remoción de los CE que ha sido más ampliamente debatida en los últimos años es el tratamiento avanzado de los efluentes; se ha investigado el uso de procesos de oxidación avanzada, de filtración, la aplicación de carbón activado y la tecnología de membranas (Kümmerer, 2010). Algunos sistemas, como por ejemplo los reactores biológicos con membrana (BRM), son considerados una mejora al tratamiento biológico de aguas

residuales que permite mejorar la calidad del agua tratada (Cote et al., 1997). Esta tecnología combina un proceso de degradación biológico usando biomasa suspendida, con una separación sólido-líquido a través de un proceso de ultra filtración. Una característica importante de esta tecnología es que debido a la alta concentración de la biomasa en el reactor se puede trabajar con bajas cargas orgánicas y altos tiempos de retención de la biomasa (Judd, 2010) logrando una remoción de materia orgánica mayor de 90%, remociones de NT mayores de 60% (Stephenson, 2000) y ausencia de sólidos suspendidos en el efluente, así como la remoción de compuestos difíciles de degradar (Gil et al., 2012). Otras ventajas de los BRM son la baja producción de lodos y uso de menores espacios para su instalación. Actualmente se han estudiado diferentes modificaciones del BRM que permiten realizar los procesos de nitrificación y desnitrificación y así aumentar la remoción del NT, sin embargo no se conoce su capacidad para la remoción de compuestos emergentes. El objetivo del presente estudio fue evaluar la remoción de los contaminantes emergentes ácido mefenámico, fluoxetina y metoprolol, presentes en aguas residuales, así como de materia orgánica y nutrientes utilizando un sistema conformado por dos reactores con biomasa suspendida, uno anóxico y un biorreactor con membrana sumergida (BRM) aerobio, operados en serie.

## Metodología

Para el presente estudio fueron seleccionados tres fármacos: el ácido mefenámico, la fluoxetina y el metoprolol. Los compuestos modelo fueron seleccionados con base en su uso generalizado, sus efectos toxicológicos en organismos acuáticos y su concentración en los efluentes de las plantas de tratamiento de aguas residuales y en el medio acuático (Flores y Mijaylova, 2017). El agua residual utilizada como modelo para realizar el estudio provenía de una unidad habitacional, la cual se transportaba al laboratorio y se acumulaba en un tanque de 150 L de volumen en el cual se llevaba a cabo una sedimentación de los sólidos suspendidos. El sistema experimental (Figura 1) estuvo conformado por dos reactores con biomasa suspendida, uno anóxico y otro BRM aerobio operados en serie. El reactor anóxico tenía forma de un prisma rectangular elaborado de acrílico y contó con dos agitadores tipo propela para mantener la biomasa en estado suspendido. Las dimensiones de este reactor fueron 0.33 m de largo, 0.18 m de ancho y 0.22 m de altura; el volumen efectivo fue de 9 L. El agua residual se alimentó de forma continua al reactor anóxico mediante una bomba peristáltica, posteriormente el licor mezclado fue transferido mediante otra bomba peristáltica al reactor aerobio. El reactor aerobio tenía una forma cilíndrica, fue elaborado de acrílico, con un diámetro de 0.215 m y una altura de 0.593 m; su volumen efectivo fue de 17 L. En el interior del reactor aerobio fue sumergido un módulo de membrana de ultrafiltración de tipo fibra hueca elaborada de polisulfona (General Electric). En la parte inferior del módulo se instalaron cuatro difusores de piedra porosa que suministraban aire con el objetivo de proveer oxígeno a los microorganismos, permitir un mezclado homogéneo en el reactor y minimizar el ensuciamiento de las membranas. La aireación fue controlada por medio de un rotámetro (Gilmont)

garantizando una concentración de oxígeno disuelto (OD) mayor de 2 mg·L<sup>-1</sup>. Para la obtención del permeado se utilizó una bomba de diafragma y para el retrolavado una bomba peristáltica. El control de los ciclos de succión y de retrolavado se realizaba mediante dos válvulas solenoides conectadas a un temporizador. El ciclo de succión fue de 10 minutos y el de retrolavado fue de 1 minuto. Los dos reactores se inocularon con biomasa proveniente de un reactor de lodos activados (aeración extendida) de una planta de tratamiento de aguas residuales con una concentración de SST de 3,000 mg·L<sup>-1</sup> y después empezó la alimentación con el agua residual sedimentada. La biomasa del reactor aerobio se recirculaba al reactor anóxico mediante una bomba peristáltica aplicando una relación de recirculación (caudal de recirculación/caudal del influente) de 1.0. El sistema experimental fue operado por 294 días. Los parámetros de operación durante cada fase experimental se muestran en la tabla 1. Para lograr los TRS deseados se realizaban extracciones periódicas de biomasa desde el reactor aerobio.

Tabla 1. Parámetros de operación del sistema.

Fase	Anóxico			Aerobio		
	Q [L·h <sup>-1</sup> ]	SST [mg·L <sup>-1</sup> ]	TRH [h]	SST [mg·L <sup>-1</sup> ]	TRH [h]	TRS [d]
Aclimatación	2.0	2,000	4.9	4,000	8.5	30
Fase 1	2.0	2,000	4.9	4,000	8.5	30
Fase 2	3.3	1,500	3.0	3,000	5.1	20
Fase 3	5.6	1,000	1.6	3,000	2.7	10

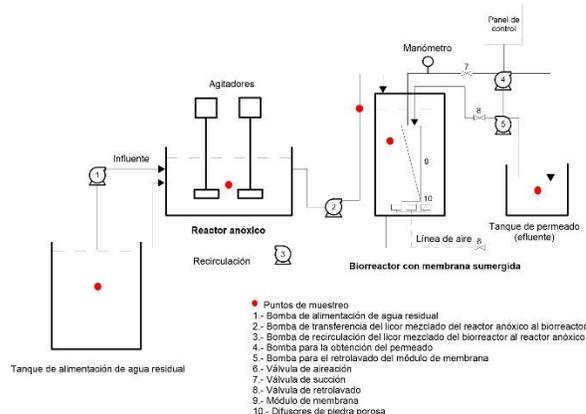


Figura 1. Diagrama del sistema experimental

Unas semanas después del arranque del sistema experimental comenzó el muestreo para realizar el seguimiento de los parámetros de calidad del agua y de la concentración de la biomasa en los reactores. Se dio seguimiento al proceso de tratamiento mediante la determinación de los siguientes parámetros de calidad del agua: Demanda Química de Oxígeno soluble (DQO<sub>soluble</sub>), N-NH<sub>4</sub>, N-NO<sub>2</sub>, N-NO<sub>3</sub>, Nitrógeno Total (NT). Los parámetros se determinaron en los siguientes puntos de muestreo: agua del tanque de alimentación (agua residual cruda o influente al reactor anóxico), efluente del reactor anóxico y efluente del reactor aerobio (permeado). La frecuencia de muestreo fue de 2 veces por semana. Los análisis se realizaron de acuerdo al Standard Methods for

Examination of Water and Wastewater (APHA, 2005). En los dos reactores se midieron diariamente: oxígeno disuelto (OD), pH, temperatura (T) y potencial óxido-reducción (ORP). Una vez por semana se determinaban Sólidos Suspendedos Totales (SST) y Sólidos Suspendedos Volátiles (SSV) en el licor mezclado de los dos reactores.

La evaluación de la remoción de los compuestos emergentes (CE) se realizó mediante la adición de los compuestos seleccionados para este estudio al agua residual modelo (fluoxetina, ácido mefenámico y metoprolol) ajustando su concentración en el agua a las reportadas en la literatura para aguas residuales:  $2 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  para la fluoxetina y  $5 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  para el ácido mefenámico y el metoprolol. Los CE se adquirieron de Sigma-Aldrich y tuvieron un grado de pureza  $>98\%$ . Se prepararon soluciones concentradas de los compuestos, de las cuales se adicionaban cantidades previamente calculadas al agua residual. Para la detección de los CE en estudio se utilizó el método de cromatografía de gases por espectrometría de masas para la detección simultánea de los tres compuestos en fase líquida, este método fue desarrollado y validado por Flores y Mijaylova 2017, obteniendo recuperaciones de los compuestos farmacéuticos mayores de  $98\%$ . Los límites de cuantificación de los tres compuestos en estudio fueron menores de  $0.017 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  y los límites de detección menores de  $0.002 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ .

## Resultados

Los resultados obtenidos en relación a los valores de  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$  en el influente y en los efluentes de cada reactor se muestran en la figura 2. Los valores de  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$  en el influente presentan variaciones significativas, desde  $30$  hasta  $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , el promedio de la  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$  para todo el período de evaluación fue de  $140\pm 41 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ . Los valores de  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$  en el efluente (permeado) fueron hasta  $27 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , con un promedio de  $6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ . Las remociones promedio de  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$  por fase experimental se muestran en tabla 2. El efluente del reactor BRM no contenía sólidos suspendidos durante todo el período experimental.

Al mismo tiempo se dio seguimiento de la concentración de SST y SSV en los dos reactores para posteriormente realizar la determinación de la relación sustrato/microorganismo (A/M) en cada reactor y en cada fase experimental evaluada la cual se presenta en la tabla 3. El seguimiento de la concentración de SST en los dos reactores indicó que durante los primeros 30 días (fase de aclimatación), la cantidad de biomasa determinada como SST fue de  $1,576\pm 245 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en el reactor anóxico y de  $3,106\pm 484 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en el reactor aerobio.

Tabla 2. Remociones promedio de  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$  en el sistema.

Remoción de $\text{DQO}_{\text{soluble}}$ , [%]			
Fase experimental	Reactor anóxico	Reactor aerobio	Global
Aclimatación	$51.5\pm 16.6$	$75.2\pm 17.3$	$89.5\pm 6.6$
Fase 1	$55.1\pm 19.4$	$90.5\pm 11.6$	$95.2\pm 5.8$
Fase 2	$57.9\pm 8.9$	$95.8\pm 4.3$	$98.1\pm 1.9$
Fase 3	$67.5\pm 5.7$	$94.4\pm 5.1$	$98.2\pm 1.6$

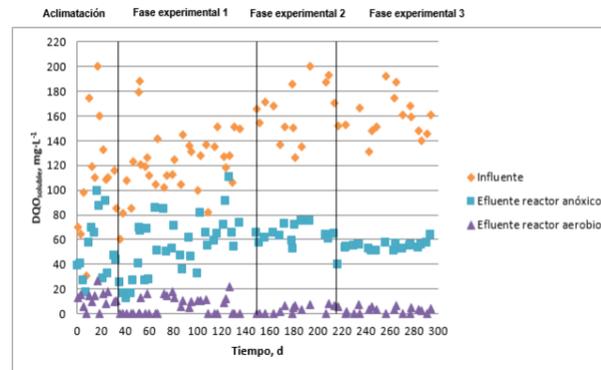


Figura 2. Valores de  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$  en el influente y efluente.

Tabla 3. Relación A/M máscica promedio en el sistema.

A/M, [ $\text{mgDQO}\cdot\text{mgSSV}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ ]		
Fase experimental	Reactor anóxico	Reactor aerobio
Aclimatación	0.67	0.09
Fase 1	0.73	0.09
Fase 2	1.31	0.13
Fase 3	3.55	0.34

Posteriormente para la primera fase experimental los SST fueron de  $1,657\pm 722 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en el reactor anóxico y de  $2,996\pm 866 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en reactor aerobio. En la segunda fase experimental la cantidad de biomasa en los reactores fue mayor, de  $1,858\pm 178 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  y  $3,668\pm 652 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en el anóxico y aerobio, respectivamente. Para la tercera fase experimental el promedio fue de  $1,482\pm 299 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en el reactor anóxico y de  $2,849\pm 511 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en el aerobio.

Los resultados del nitrógeno amoniacal ( $\text{N-NH}_4$ ) en el sistema experimental se muestran en la figura 3, las concentraciones en el influente varían desde  $9.5$  hasta  $38.0 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ , con un promedio de  $22.9\pm 5.3 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ . Las remociones promedio se observan en la tabla 4. Durante la etapa de aclimatación se obtuvo una remoción global promedio de  $89.1\pm 11.5\%$ , con  $2.4 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en el efluente, por lo tanto, el proceso biológico se consideró estable y se comenzó con la evaluación de las diferentes fases del sistema experimental.

Los resultados obtenidos en la tercera fase experimental indican que una vez estabilizado el proceso y desarrollado adecuadamente el consorcio de microorganismos nitrificantes en el reactor aerobio, se pueden lograr altas remociones de  $\text{N-NH}_4$  aplicando en el reactor aerobio un TRH de  $2.7 \text{ h}$  y TRS de  $10 \text{ d}$ . Las remociones promedio de  $\text{N-NH}_4$  en cada uno de los reactores en las diferentes fases experimentales se muestran en la tabla 4.

En el agua residual utilizada como modelo para este estudio se encontró presencia de nitratos en pequeñas concentraciones, de  $1.3\pm 0.7 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  en promedio durante todo el período experimental. Las concentraciones de los nitritos en los efluentes fueron bajas, valores menores de  $0.30 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  durante todo el período experimental.

Las concentraciones de nitrógeno total (NT) en el agua residual variaron desde 14.1 hasta 51.6 mg·L<sup>-1</sup>, la mayor concentración de NT se presentó en la segunda fase, lo cual fue atribuido a una mayor cantidad de N-orgánico en el agua ya que las concentraciones del N-NH<sub>4</sub> en las fases experimentales fueron similares. La remoción de NT durante la evaluación del sistema se muestra en la tabla 5.

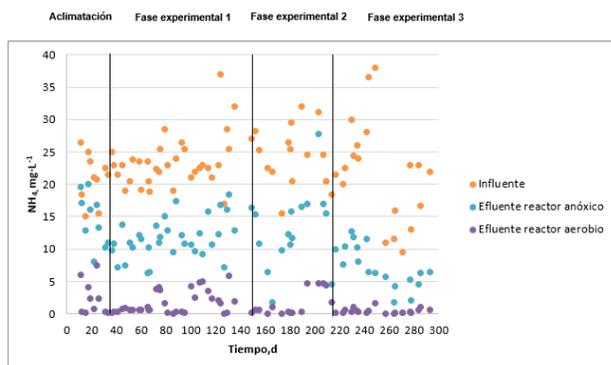


Figura 3. Valores de N-NH<sub>4</sub> en el influente y efluente.

Tabla 4. Remociones promedio de N-NH<sub>4</sub>.

Remoción de N-NH <sub>4</sub> [%]			
Fase experimental	Reactor anóxico	Reactor aerobio	Global
Aclimatación	29.7±18.9	85.5±14.5	89.1±11.5
Fase 1	50.1±10.7	86.0±14.3	92.9±7.5
Fase 2	48.3±21.0	85.8±17.1	93.4±8.0
Fase 3	68.9±14.2	89.4±18.0	98.2±7.8

Tabla 5. Remociones promedio de NT en el sistema.

Remoción de NT [%]			
Fase experimental	Reactor anóxico	Reactor aerobio	Global
Aclimatación	25.1±18.2	70.3±11.4	77.9±10.7
Fase 1	46.0±11.0	65.0±12.5	81.5±6.9
Fase 2	39.4±21.5	68.6±16.5	81.9±9.9
Fase 3	57.6±16.2	64.4±19.6	87.4±4.1

De acuerdo a los resultados obtenidos respecto a la remoción de NT utilizando una configuración de un reactor anóxico acoplado a un BRM aerobio, se puede afirmar que una vez estabilizado el proceso biológico se pueden lograr remociones de NT mayores de 80%, aplicando TRH y TRS menores de los reportados en estudios previos realizados por Coté et al. (1997), Ueda and Hata (1999), Rosenberger et al. (2002), Teck y How (2007) y Naghizadeh et al. (2008).

Las concentraciones de P-PO<sub>4</sub> en el influente variaron entre 5.3 y 14.9 mg·L<sup>-1</sup>, con un promedio de 10.1±0.6 mg·L<sup>-1</sup> valor típico para aguas residuales municipales. En la tabla 6 se muestran las remociones obtenidas de P-PO<sub>4</sub> durante todo el periodo experimental, en cada reactor y la remoción global para el sistema de tratamiento.

Tabla 6. Remociones promedio de P-PO<sub>4</sub>.

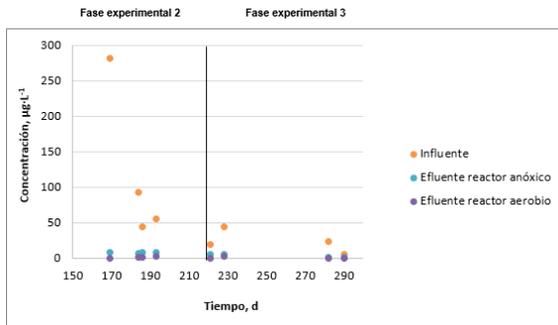
Fase experimental	Remoción de P-PO <sub>4</sub> [%]		
	Reactor anóxico	Reactor aerobio	Global
Fase 1	16.1±7.8	14.4±8.6	28.2±9.2
Fase 2	19.6±9.0	18.4±9.6	34.3±10.3
Fase 3	17.6±8.1	21.2±7.2	35.4±6.8

Los parámetros de campo como temperatura, pH y oxígeno disuelto fueron monitoreados en las diferentes fases experimentales. El valor promedio del pH fue de 7.65±0.19 y de 7.52±0.34 en los reactores anóxico y aerobio, respectivamente. La temperatura promedio en los reactores fue de 23.41±2.20°C en el reactor anóxico y de 23.16±2.14°C en el reactor aerobio, valores adecuados para el desarrollo y las actividades metabólicas de las bacterias. Las concentraciones de OD en el reactor anóxico fueron de 0.22±0.08 mg·L<sup>-1</sup>, mientras que en el reactor aerobio fueron de 4.09±1.56 mg·L<sup>-1</sup>.

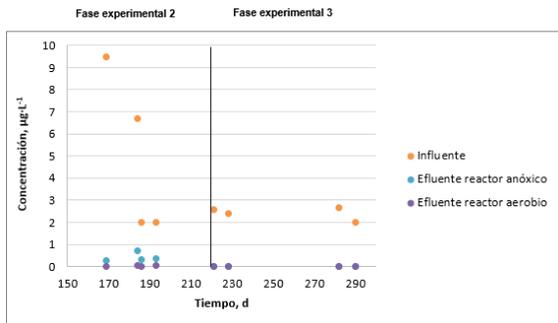
La evaluación de la remoción de los CE comenzó una vez estabilizado el proceso biológico, durante las fases experimentales 2 y 3. La adición de los compuestos emergentes al agua residual modelo empezó a partir del día 152 y el muestreo para determinar las concentraciones de los compuestos emergentes el día 170. Al analizar las concentraciones de los CE en el agua residual influente al sistema experimental, se observó que estas fueron mayores a las que se pretendía obtener adicionando los compuestos en estudio y suponiendo que el agua residual modelo no los contiene. La concentración del ácido mefenámico en el influente varió entre 5 y 280 µg·L<sup>-1</sup> (figura 4a), es decir el agua residual cruda que se usaba en el estudio contenía ácido mefenámico en concentraciones desde 13 hasta 276 µg·L<sup>-1</sup> y en una sola ocasión no hubo presencia de este compuesto en el agua residual cruda. La concentración de la fluoxetina en el influente varió de 2 a 9 µg·L<sup>-1</sup> (figura 4b), lo cual indica que en el agua residual cruda no había fluoxetina en seis de los muestreos y solo en dos ocasiones la fluoxetina estaba presente en concentraciones de 5 y 7 µg·L<sup>-1</sup>. La concentración del metoprolol en el influente al sistema experimental varió de 14 a 56 µg·L<sup>-1</sup> (figura 4c), lo cual indica que este compuesto estuvo presente en el agua residual cruda en concentraciones entre 9 y 51 µg·L<sup>-1</sup>.

Las concentraciones en los efluentes de los reactores anóxico y aerobio del sistema experimental, determinadas durante la segunda y tercera fase experimental se presentan en la Figura 4 (a, b y c) y las remociones promedio de CE determinados para las dos fases experimentales se ilustran en la Figura 4d. Las concentraciones del ácido mefenámico en el efluente del reactor anóxico disminuyeron a 6.3-8.2 µg·L<sup>-1</sup> durante la segunda fase experimental y a 0.4-5.7 µg·L<sup>-1</sup> durante la tercera fase experimental. Las remociones del ácido mefenámico en el reactor anóxico variaron en los intervalos de 83-97% durante la fase 2 y de 71-98% durante la fase 3. Las concentraciones del ácido mefenámico en el efluente del reactor aerobio disminuyeron a 0.1-1.9 µg·L<sup>-1</sup> durante la segunda fase experimental y a 0.01-2.3 µg·L<sup>-1</sup> durante la tercera fase experimental.

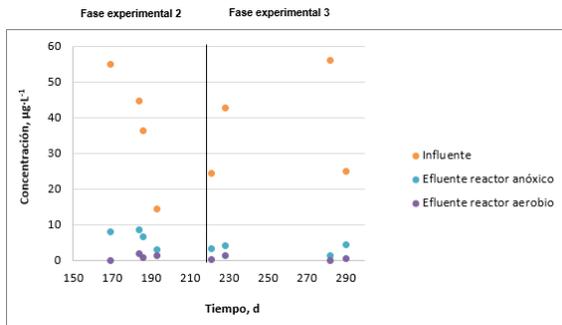
a) **Ácido mefenámico**



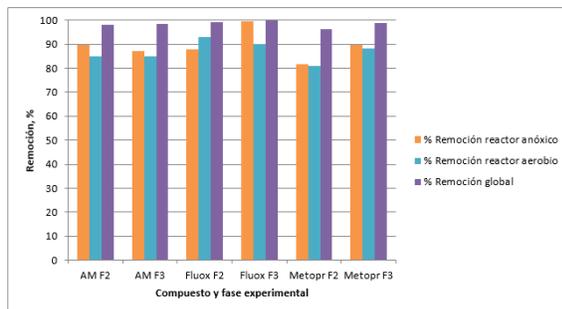
b) **Fluoxetina**



c) **Metoprolol**



d)



**Figura 4. Valores de los CE en el influente y efluente del sistema experimental: a) Ácido mefenámico (AM), b) Fluoxetina (Fluox) y c) Metoprolol (Metopr); d) Remoción de los fármacos en cada uno de los reactores en las diferentes fases experimentales.**

Las remociones del ácido mefenámico en el reactor anóxico fueron de 85% en promedio en ambas fases experimentales. Sin embargo, una gran parte de la remoción calculada en el reactor anóxico (alrededor de 50%) se puede atribuir a un efecto de dilución con el agua de recirculación del reactor aerobio al anóxico ya que esta fue de 100% del caudal influente al sistema experimental y alrededor de 35% se atribuye a biodegradación y sorción en la biomasa. Las remociones del ácido mefenámico en el reactor aerobio variaron en los intervalos de 76-99% durante la fase 2 y de 59-98% durante la fase 3. Estas remociones fueron mayores a las reportadas por Radjenovic et al. (2009) (de 35-45%) en BRM. Las remociones globales del ácido mefenámico en el sistema experimental fueron de  $98.23 \pm 1.38\%$  y  $98.42 \pm 2.48\%$  durante las fases 2 y 3 respectivamente.

Las concentraciones de fluoxetina en el efluente del reactor anóxico disminuyeron a  $0.31-0.73 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  durante la segunda fase experimental y a  $0.01 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  durante la tercera fase experimental. Las remociones de fluoxetina en el reactor anóxico fueron de  $87.97 \pm 6.95\%$  durante la fase 2 y de  $99.58 \pm 0.06\%$  durante la fase 3. Como ya se mencionó un 50% de la remoción calculada se puede atribuir a un efecto de dilución con el agua de recirculación del reactor aerobio al anóxico y el resto se atribuye a biodegradación y sorción en la biomasa. Las concentraciones de fluoxetina en el efluente del reactor aerobio disminuyeron a  $0.01-0.06 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  durante la segunda fase experimental y a  $0.001 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  durante la tercera fase experimental. Las remociones de fluoxetina en el reactor aerobio fueron de  $92.99 \pm 2.24\%$  durante la fase 2 y de  $90.00 \pm 0.00\%$  durante la fase 3. Remociones ligeramente mayores (de  $98 \pm 1.9\%$ ) fueron reportados por Suárez et al. (2010) para reactores BRM. Las remociones globales de fluoxetina en el sistema experimental fueron de  $99.1 \pm 0.6\%$  y  $99.9 \pm 0.01\%$  durante las fases 2 y 3 respectivamente.

Las concentraciones del metoprolol en el efluente del reactor anóxico disminuyeron a  $3.04-8.63 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  durante la segunda fase experimental y a  $1.23-4.23 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  durante la tercera fase experimental. Las remociones del metoprolol en el reactor anóxico variaron en los intervalos de 78-85% durante la fase 2 y de 83-97% durante la fase 3. Las concentraciones del metoprolol en el efluente disminuyeron a  $0.02-1.33 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  durante la segunda fase experimental y a  $0.01-1.35 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  durante la tercera fase experimental. Las remociones del metoprolol en el reactor aerobio variaron en los intervalos de 56-99.7% durante la fase 2 y de 67-99.2% durante la fase 3. La remoción obtenida en el BRM para ambas fases es mayor a la remoción de 58% reportada en el trabajo realizado por Radjenovic et al. (2009) para BRM. La remoción global del metoprolol calculada para la fase 2 fue de  $96.2 \pm 4.0\%$  y la determinada para fase 3 fue de 2.5% mayor, de  $98.7 \pm 1.5\%$ .

Las remociones promedio de ácido mefenámico, fluoxetina y metoprolol en cada reactor y la global, calculadas para cada fase experimental, se muestran en la tabla 7. Se observa que el sistema experimental constituido por un reactor anóxico y uno aerobio con membrana sumergida permitió obtener altas remociones de los tres

microcontaminantes emergentes, ácido mefenámico, fluoxetina y metoprolol. Las mayores remociones, más del 99%, se obtuvieron para la fluoxetina aplicando las condiciones de operación de la fase 2 (un caudal de alimentación de  $3.3 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ , TRH de 3.0 y 5.1 h en los reactores anóxico y aerobio respectivamente y TRS de 20 d y de la fase 3 (un caudal de alimentación de  $5.6 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ , TRH de 1.6 h en el reactor anóxico y 2.7 h en el BRM y TRS de 10 d).

**Tabla 7. Remociones promedio de contaminantes emergentes en el sistema experimental.**

Fase experimental	Remoción de contaminantes emergentes, [%]		
	Reactor anóxico	Reactor aerobio	Global
	<b>Ácido mefenámico</b>		
Fase 2	89.74±6.51	84.95±10.80	98.23±1.38
Fase 3	87.09±11.53	85.02±18.32	98.42±2.48
	<b>Fluoxetina</b>		
Fase 2	87.97±6.95	92.99±2.24	99.05±0.63
Fase 3	99.58±0.06	90.00±0.00	99.96±0.01
	<b>Metoprolol</b>		
Fase 2	81.59±2.78	81.08±18.71	96.15±4.03
Fase 3	89.58±6.26	88.16±14.91	98.67±1.45

## Conclusiones

El sistema de tratamiento de aguas residuales conformado por reactores anóxico y aerobio con membrana sumergida, operados en serie, permitió lograr simultáneamente altas remociones de los contaminantes emergentes ácido mefenámico, fluoxetina y metoprolol, así como de materia orgánica y nitrógeno total.

Las remociones globales de los fármacos en estudio, obtenidas en el sistema de tratamiento durante la segunda y tercera fases experimentales, fueron en promedio de: 98.3%, 99.5% y 97.4% para el ácido mefenámico, fluoxetina y metoprolol, respectivamente. Se obtuvieron efluentes con concentraciones promedio de ácido mefenámico, fluoxetina y metoprolol de  $0.86 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ,  $0.016 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  y  $0.723 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  respectivamente.

Las condiciones de operación correspondientes a la segunda y tercera fases experimentales permitieron obtener una remoción mayor para el ácido mefenámico en el reactor anóxico, siendo de 89.7 y 87.1%, respectivamente. La remoción del ácido mefenámico obtenida en el BRM fue mayor de 80%.

La fluoxetina fue el compuesto que presentó la mayor remoción comparado con el resto de los fármacos en estudio, de  $99.96\pm 0.01\%$ . Las condiciones de operación de la segunda fase experimental favorecieron su remoción en el reactor aerobio (promedio de 93%), obteniéndose 88% de remoción en el reactor anóxico. Sin embargo, durante la tercera fase experimental, la remoción de fluoxetina en el

reactor anóxico fue de 99%, es decir mayor que el determinado en el BRM (de 90%)

Las condiciones de la tercera fase experimental (TRH de 1.6 y 2.7 h en el reactor anóxico y aerobio, respectivamente y un TRS de 10 d) permitieron obtener las mejores remociones del metoprolol en ambos reactores, de 89.6% en el reactor anóxico y de 88.2% en el reactor aerobio.

La mayor remoción de  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$ , NT y  $\text{P-PO}_4$  se obtuvo en la tercera fase experimental obteniendo remociones promedio de 98.2%, 87.8% y 35.4% respectivamente. Se obtuvieron efluentes con concentraciones de  $\text{N-NH}_4$  y NT menores de 2 y de  $6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  respectivamente, valores de  $\text{DQO}_{\text{soluble}}$  menores de  $6 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$  y concentraciones de  $\text{P-PO}_4$  menores de  $7 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$ .

De acuerdo con los resultados obtenidos los sistemas BRM acoplados a un reactor anóxico tienen un gran potencial en el tratamiento de aguas residuales enfocado a la remoción de contaminantes emergentes como el ácido mefenámico, la fluoxetina y el metoprolol, así como para la remoción de materia orgánica ( $\text{DQO}_{\text{soluble}}$ ) y nitrógeno total, ofreciendo un efluente de alta calidad apto para reúso en servicios al público.

## Referencias

- APHA, AWWA y WEF (2005). Standard methods for the examination of water and wastewater, 21st ed., American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation, Washington, D.C., USA, 1325 pp.
- Alegre Galván E. (2008). Preparación y caracterización de fases estacionarias para la determinación de contaminantes quirales mediante cromatografía de líquidos de alta eficacia. Tesis de licenciatura. Universidad Rey Juan Carlos. Escuela Superior de Ciencias Experimentales y Tecnología, pp.1-74.
- Coté, P.; Buisson, H.; Pound, C.; Arakaki, G. (1997). Immersed membrane activated sludge for the reuse of municipal wastewater. Desalination, 113, pp. 189–196.
- Daughton G. Christian (2004). PPCPs in the Environment: Future Research-Beginning with the End Always in Mind.
- EPA (2010). Treating Contaminants of Emerging Concern. 1-27 pp.
- Flores, V. Y. y Mijaylova, N.P. (2017). Removal of pharmaceuticals from municipal wastewater by aerated submerged attached growth reactors. Journal of Environmental Management, 192, pp. 243-253.
- Gil, M. J.; Soto, A.M.; Usma, J.I.; Gutiérrez, D.O. (2012). Contaminantes emergentes en aguas, efectos y posibles tratamientos. Producción más limpia, 7 (2), pp. 52-73.
- Judd, S. (2010). The MBR Book: Principles and Applications of Membrane Bioreactors for Water and Wastewater Treatment. Butterworth-Heinemann, Oxford.
- Kwon, J.W. y Rodriguez, J.M. (2013). Occurrence and Removal of Selected Pharmaceuticals and Personal Care Products in Three Wastewater-Treatment Plants. Archive 66, pp. 538-638.



- Kümmerer, K. (2010). Pharmaceuticals in the Environment. Annual Review of Environment and Resources, 35(1), pp. 59-75.
- Kümmerer, K. (2011). Emerging Contaminant. Reference Module in Earth Systems and Environmental Sciences. Treatise on Water, Leuphana University, Lüneburg, Germany, pp. 69-87.
- Naghizadeh, A.; Mahvi, A. H.; Vaezi, F.; Naddafi, K. (2008). Evaluation of hollow fiber membrane bioreactor efficiency for municipal wastewater treatment. Iranian Journal of Environmental Health, Science and Engineering, 5(4), pp. 257-268.
- Patiño, Y.; Díaz, E.; Ordoñez, S. (2014). Microcontaminates emergentes en aguas: tipos y sistemas de tratamiento. Avances en Ciencias e Ingeniería, 5(2); pp. 1-20.
- Radjenovic, Y.; Petrovic M.; Barceló, D. (2009). Fate and distribution of pharmaceuticals in waste-water and sewage sludge of the conventional activated sludge (CAS) and advanced membrane bioreactor (MBR) treatment. Water Research, 43, pp. 831-41.
- Rosenberger, S.; Krüger, U.; Witzig, R.; Manz, W.; Szewzyk, U.; Kraume, M. (2002). Performance of a bioreactor with submerged membranes for aerobic treatment of municipal waste water. Water Research, 36, pp. 413-420.
- Secondes, M.; Naddeo, V.; Belgiorno, V. et al. (2014). Removal of emerging contaminants by simultaneous application of membrane ultrafiltration, activated carbon adsorption, and ultrasound irradiation. Journal of Hazardous Materials, 264, pp. 342-9.
- Stephenson T.; Judd S.; Jefferson B.; Brindle K. (2000). Membrane Bioreactors for Wastewater Treatment. IWA Publishing, London.
- Suarez, S.; Lema, J.M.; Omil, F. (2010). Removal of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) under nitrifying and denitrifying conditions. Water Research, 44, pp. 3214-3224.
- Teck Wee Tan; How Yong Ng. (2007). Influence of mixed liquor recycle ratio and dissolved oxygen on performance of pre-denitrification submerged membrane bioreactors. Water Research 42, pp. 1122- 1132.
- Ueda, T.; Hata, K., (1999). Domestic wastewater treatment by a submerged membrane bioreactor with gravitational filtration. Water Research, 33(12), pp. 2888-2892.