

Efecto de la temperatura, tiempo de carbonización, concentración del activador y relación de impregnación en el rendimiento de carbón activado obtenido a partir de residuos de mango (*Mangifera indica*)

Regalado Ruíz Rubén Zamir¹, Martínez Delgadillo Sergio Alejandro², May Lozano Marcos², Bautista Barrera Jesús Manuel¹, Yáñez Bringas Francisco Xavier³, Rivadeneyra Romero Gabriela^{1*}

¹Universidad del Istmo, Departamento de Ingeniería de Petróleos. Cd. Universitaria S/N, Barrio Santa Cruz, 4a. Sección, Sto. Domingo Tehuantepec, Oax., C.P. 70760. México

²Universidad Autónoma Metropolitana, Departamento de Ciencias Básicas. Av. San Pablo No. 180, Azcapotzalco, Ciudad de México, C.P. 02200. México.

³Instituto Tecnológico Superior de Martínez de la Torre, Academia de Ciencias Básicas. Camino a Cartago S/N, Col. Vega Redonda, Martínez de la Torre, Ver., C.P. 93610. México.

*Autor para correspondencia: profesora.gaby.rivadeneyra@gmail.com

Recibido:

05/junio/2022

Aceptado:

10/diciembre/2022

Palabras clave:

Carbón activado (CA), factores significativos, rendimiento

Keywords:

Activated carbon (AC), significant factors, yield

RESUMEN

El carbón activado (CA) es un adsorbente con amplia gama de aplicaciones en la industria, empleándose para la adsorción de diversos contaminantes en las aguas residuales, tanto de naturaleza inorgánica como orgánica. En esta investigación se determinaron los efectos de los factores: tiempo de carbonización, temperatura de carbonización, concentración del activador (ácido fosfórico) y relación de impregnación sobre el rendimiento del CA empleando como precursor semillas de mango (*Mangifera indica*), mediante un diseño experimental factorial completo 2⁴. Las condiciones mediante las cuales se obtuvo un mayor rendimiento de CA, fueron: Temperatura, 400°C; Tiempo, 90 minutos; concentración, 60% y relación de impregnación, 1:1. Por otra parte, el CA preparado, adsorbió el 95% de azul de metileno durante los primeros 5 minutos, mientras que después de este tiempo la velocidad de adsorción decreció, alcanzando el equilibrio a los 150 minutos.

ABSTRACT

Activated carbon (AC) is an adsorbent with a wide range of applications in industry, being used for the adsorption of various pollutants in wastewater, both inorganic and organic. In this research, the effects of factors: carbonization time, carbonization temperature, activator concentration (phosphoric acid), and impregnation ratio on AC yield were determined using mango seeds (*Mangifera indica*) as a precursor, using a 2⁴ complete factorial design. The conditions by which a higher AC yield was obtained were: Temperature, 400°C; Time, 90 minutes; concentration, 60% and impregnation ratio, 1:1. On the other hand, the prepared AC adsorbed 95% of methylene blue during the first 5 minutes, after this time the adsorption rate decreased, reaching equilibrium at 150 minutes.

Introducción

El carbón activado (CA) es un adsorbente ampliamente utilizado tanto para la adsorción de gases como de líquidos (Kirubakaran et al., 1991), debido a su alta área superficial (alrededor de $800 \pm 1500 \text{ m}^2/\text{g}$), lo cual permite la adsorción de contaminantes tanto inorgánicos como orgánicos (Kyzas et al., 2016). En este sentido, el CA se ha empleado para la adsorción de metales pesados, colorantes tales como azul de metileno, verde de malaquita, etc., y fármacos, tales como antidepresivos, hormonas, diuréticos, y estimulantes (Ho et al., 2009; Akar et al., 2013; Ouyang et al., 2020). El carbón activado puede producirse a partir de diversas fuentes, tales como minerales, vegetales o animales; gran parte de los carbones activados comerciales se obtienen a partir de carbón, turba, residuos de petróleo, madera y fuentes no renovables (Ozdemir et al., 2014), lo cual ha llevado a desarrollar investigación referente a la producción de CA proveniente de residuos agroindustriales por ser económicos, renovables y abundantes (Kalderis et al., 2008). La preparación del CA tiene un papel sumamente importante, puesto que las propiedades del mismo están en función del tipo de activador empleado, siendo el ácido fosfórico el que presenta menos efectos adversos al ambiente en comparación con el cloruro de zinc y también requiere el empleo de menores temperaturas de carbonización que las necesarias con hidróxido de potasio (Heidarinejad et al., 2020). Otras variables tales como la temperatura y tiempo de carbonización y la concentración del activador o la relación de impregnación también han sido estudiadas referentes a la preparación del CA mediante metodología de superficie de respuesta (Iwar et al., 2021), sin embargo, son pocos los estudios que reportan el empleo de algún diseño experimental, además de que el CA puede producirse de diversas fuentes, por lo cual se requiere utilizar un enfoque de preparación en donde se identifiquen los efectos de las variables que intervienen en la misma para el precursor empleado en particular.

Dado lo anterior, el objetivo principal de esta investigación fue determinar el efecto del tiempo de carbonización, temperatura de carbonización, concentración del activador (ácido fosfórico) y relación de impregnación del mismo sobre el rendimiento del carbón activado empleando como precursor semillas de mango (*Mangifera indica*), así como la realización de cinéticas de adsorción del carbón obtenido empleando una solución de 100 mg/L de azul de metileno, debido a que se ha empleado como compuesto modelo para la evaluación de la eliminación de contaminantes orgánicos (Ho et al., 2009).

Metodología

Diseño experimental

Con el objetivo de determinar las condiciones en las cuales se obtuviera en mayor rendimiento en la producción de CA y siendo ésta la variable de respuesta, se utilizó un diseño factorial completo 2^4 , el cual contó con dos niveles (alto y bajo) para cada factor. Se efectuaron dos réplicas, teniendo un total de 32 experimentos. Los factores y sus respectivos niveles se observan en la Tabla 1. El análisis de datos se realizó mediante el empleo del software Minitab® 19. Se empleó un nivel de significancia (α) de 0.05.

Tabla 1. Niveles altos y bajos de diseño experimental factorial completo 2^4 .

Factor	Código del factor	Nivel del factor	
		-1	+1
Temperatura de carbonización (°C)	A	400	450
Tiempo de carbonización (min)	B	90	120
Concentración del activador (%)	C	50	60
Relación de impregnación	D	1:1	1:2

Preparación del adsorbente

Se colectaron los residuos de mango (*Mangifera indica*) provenientes del mercado municipal de Santo Domingo, Tehuantepec, Oax., en donde se tiene una gran tradición del consumo del mismo, como dulce de mango o *Chiña' de mango*, como se le conoce en Zapoteco. Debido a lo anterior, se tiene una fuente constante de residuos de esta fruta, de donde se tomaron 10 Kg de hueso y se retiró el material fibroso hasta obtener únicamente la semilla, las cuales se secaron en una estufa Thermo Scientific®, tipo Heratherm OGH100-S, a una temperatura de 110 °C durante 12 horas, posteriormente se molieron en un mortero y se pasaron por un tamiz con tamaño de partícula de 6 mm.

Se pesaron muestras de 10 g de semilla tamizada como precursor y se realizó la impregnaron con H_3PO_4 como activador a concentraciones de 50 y 60 % (v/v), con relaciones de impregnación de 1:1 y 1:2 (g/mL) con un tiempo de contacto de 5 horas a 25 °C, posteriormente, las muestras se colocaron en la estufa a 110 °C durante

12 horas. La carbonización de las muestras se efectuó a temperaturas de 400 y 450 °C, en un horno horizontal programable Thermo Scientific®, Linderberg Blue M, con una velocidad de calentamiento de 10 °C/min, durante tiempos de 90 y 180 minutos según el diseño experimental propuesto.

El carbón activado (CA) obtenido se lavó con agua destilada a 90 °C, ajustando el pH con solución de NaOH 0.1 N, mediante el empleo de un potenciómetro Fisher Scientific® AP 115, hasta que el agua de lavado se encontró en un rango de pH de entre 6.5 y 7; posteriormente, el carbón activado se secó a 110 °C durante 12 horas, se molió y se tamizó mediante un tamiz de malla 60. Los carbones activados se pesaron y se evaluó su rendimiento, el cual se define como la cantidad de carbón activado obtenido a partir del precursor seco, se obtuvo mediante la ecuación (1):

$$\text{Rendimiento CA (\%)} = \frac{W_f}{W_o} \times 100 \quad \text{Ec. 1}$$

Donde W_f (g) es el peso del CA obtenido y W_o (g) es el peso del precursor seco.

Prueba de adsorción de carbón activado

Se realizaron pruebas de adsorción al CA que presentó mayor rendimiento según el diseño experimental, mediante cinéticas con azul de metileno. El experimento de desarrolló por triplicado. Para realizar lo antes descrito se llevó a cabo un barrido espectral, en el rango de 400 a 750 nm, empleando soluciones de azul de metileno con concentraciones de entre 1 y 10 mg/L, para lo cual se utilizó un espectrofotómetro UV-visible marca DLAB modelo N4S. Se pesó una muestra de 300 mg de CA y se emplearon 200 mL de una solución de 100 mg/L de azul de metileno (AM) para determinar el porcentaje adsorbido durante un tiempo total de 300 minutos, con agitación a 60 rpm a un pH=7.0.

Resultados y discusión

Análisis de varianza para el rendimiento de carbón activado

En la Tabla 2 se muestra el análisis de varianza para el rendimiento de CA, en donde GL corresponde a los grados de libertad, $SC_{Ajust.}$ corresponde a la suma de cuadrados ajustada, $MC_{Ajust.}$ corresponde a la suma de cuadrados, Valor F corresponde al estadístico de prueba y el Valor p corresponde a la probabilidad. Se puede observar, de manera general, que los efectos de los factores principales, así como también las interacciones de dos y tres términos tienen efectos significativos en el rendimiento, no así la interacción de los cuatro factores,

esto último representa que no existe interacción de la temperatura de carbonización, el tiempo de carbonización, la concentración del activador y la relación de impregnación sobre el rendimiento del CA.

Efecto de los factores principales

Los resultados presentados en la Tabla 2 y en la Figura 1, muestran que la temperatura de carbonización (A) no presenta un efecto significativo en el rendimiento ($p=0.182$), mientras que el efecto del tiempo de carbonización (B) es significativo ($p = 0.000$) con un coeficiente negativo, lo que indica que el rendimiento del CA, disminuye con el incremento del tiempo de carbonización.

Tabla 2. ANOVA para el Rendimiento de carbón activado.

Fuente	GL	SC _{Ajust.}	MC _{Ajust.}	Valor F	Valor p
Modelo	15	175.408	11.6939	13.64	0.000
Lineal	4	65.568	16.3920	19.11	0.000
A	1	1.672	1.6722	1.95	0.182
B	1	22.103	22.1029	25.77	0.000
C	1	7.337	7.3373	8.56	0.010
D	1	34.455	34.4554	40.18	0.000
Interacciones de 2 términos	6	91.131	15.1884	17.71	0.000
AB	1	20.395	20.3953	23.78	0.000
AC	1	1.883	1.8833	2.20	0.158
AD	1	0.014	0.0142	0.02	0.899
BC	1	9.272	9.2719	10.81	0.005
BD	1	41.194	41.1937	48.03	0.000
CD	1	18.372	18.3724	21.42	0.000
Interacciones de 3 términos	4	17.433	4.3581	5.08	0.008
ABC	1	3.422	3.4224	3.99	0.063
ABD	1	11.838	11.8378	13.80	0.002
ACD	1	2.166	2.1658	2.53	0.132
BCD	1	0.007	0.0066	0.01	0.931
Interacciones de 4 términos	1	1.277	1.2772	1.49	0.240
ABCD	1	1.277	1.2772	1.49	0.240
Error	16	13.721	0.8576		
Total	31	189.130			

Con respecto la concentración del activador (C), se puede observar que tiene un efecto significativo en el rendimiento ($p = 0.010$) con un coeficiente positivo, por lo cual, al incrementar la concentración del activador incrementará el rendimiento del CA. La relación de impregnación (D) también presenta un efecto significativo en el rendimiento con un efecto positivo, por lo cual el rendimiento incrementará en cuanto incremente la relación de impregnación.

De igual manera se puede observar que los factores B y D, al presentar un mayor Valor F, como se observa en la Tabla 2, tienen un efecto mayor en la variable de respuesta, teniendo un coeficiente negativo y positivo, respectivamente (Figura 1).

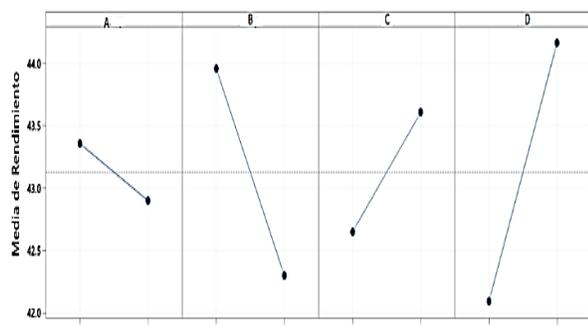


Figura 1. Gráfica de efectos principales en el rendimiento de CA.

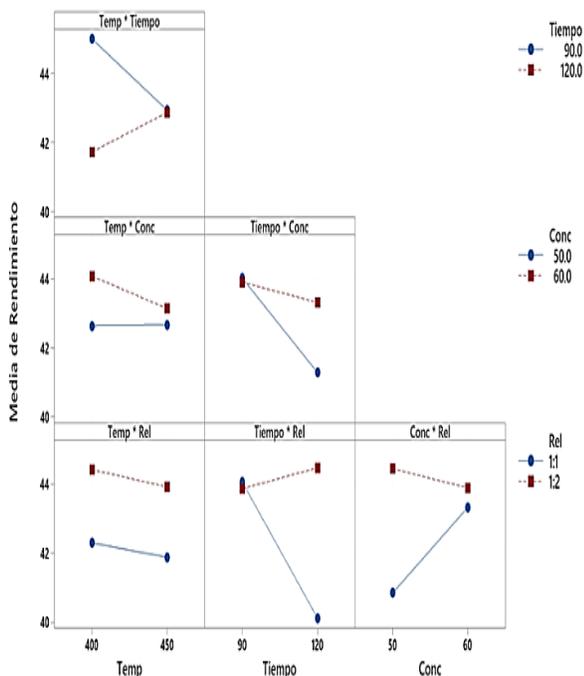


Figura 2. Gráfica de interacción para el rendimiento de CA.

La Figura 2 muestra las interacciones entre los factores estudiados (AB, AC, AD, BC, BD, CD). La gráfica muestra que la interacción entre los factores tiempo de carbonización y relación de impregnación (BD) es la más fuerte, seguida de las interacciones entre la temperatura de carbonización y el tiempo de carbonización (AB), concentración del precursor y relación de impregnación (CD) y tiempo de carbonización y concentración de activador (BC) debido a que estas interacciones tienen líneas menos paralelas.

Diagrama de Pareto de efectos estandarizados para rendimiento de carbón activado

En la Figura 3 se observa el diagrama de Pareto de efectos estandarizados, donde se observa que la línea vertical punteada en color rojo representa la referencia, con un valor de 2.12, para un nivel de confianza de 95 %. Se muestran los efectos principales y sus interacciones que se extienden más allá del valor de referencia y que por lo tanto son significativos, siendo los siguientes: BD, D, B, AB, CD, ABD, BC y C, en orden de mayor a menor efecto en el rendimiento, es decir, el efecto del tiempo de carbonización y la relación de impregnación (BD), es el más significativo en el rendimiento de CA; por otra parte, la concentración del activador (C), si bien es significativa, tiene menor efecto en el rendimiento del CA.

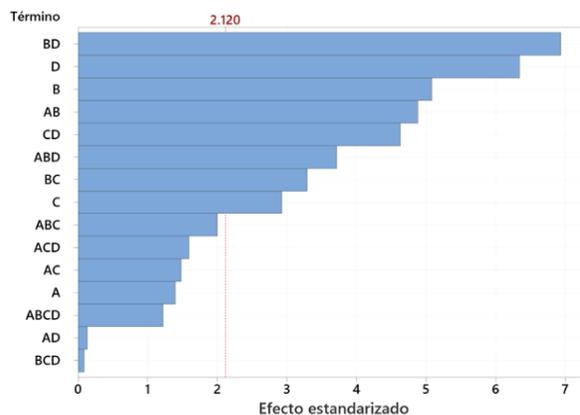


Figura 3. Diagrama de Pareto de efectos estandarizados para rendimiento de CA.

Probabilidad normal de efectos estandarizados

En la Figura 4 se observa la gráfica de probabilidad de efectos estandarizados verificando que los datos muestran una distribución normal. Se observa, además, que los factores B, C y D junto con las interacciones de AB, BC, BD, CD y ABD son significativas ya que se encuentran alejados de la línea recta.

Los factores principales y sus interacciones (B, CD, ABD) que se encuentran del lado izquierdo de la línea, tienen

un efecto negativo en el rendimiento. Por otra parte, los factores e interacciones (C, D, AB, BC, BD) que se encuentran del lado derecho de la línea tienen un efecto positivo en el rendimiento. También se observó que la interacción BD tiene el mayor efecto debido a que su punto se encuentra más alejado de la línea de referencia. También se encontró que los efectos de los factores principales y sus interacciones disminuyen en el siguiente orden: BD > D > B > AB > CD > ABD > BC > C. Estos resultados concuerdan con lo observado en la Figura 3 y los datos presentados en la Tabla 2.

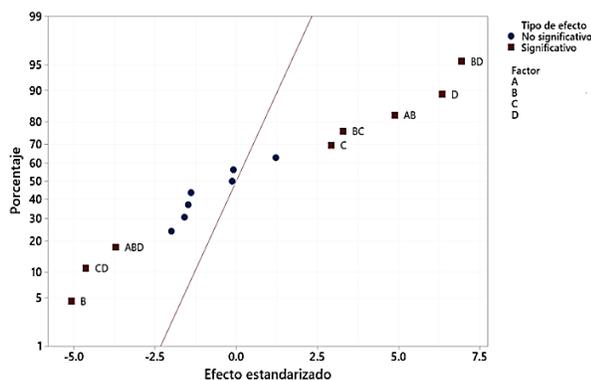


Figura 4. Gráfica de probabilidad normal de efectos estandarizados.

Gráfica de cubo

En la Figura 5 se muestra la gráfica de cubo de medias ajustadas de rendimiento, a las dos relaciones de impregnación, en donde se identifica con mayor facilidad qué combinación de factores promueven un mayor rendimiento en el CA, tanto en su nivel bajo como alto. Se puede observar que el mayor rendimiento de CA se alcanzó con los siguientes factores: Temperatura de carbonización, 400 °C; Tiempo de carbonización, 90 minutos; Concentración del activador, 60% y con una Relación de impregnación, 1:1.

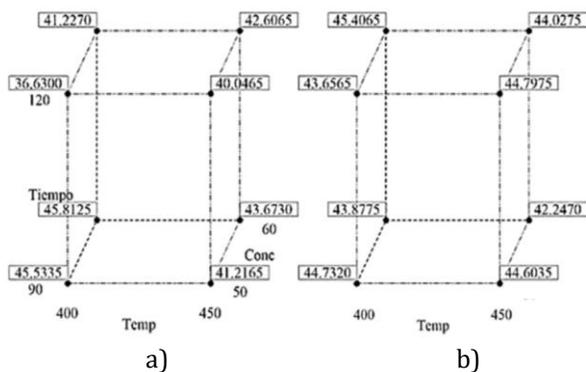


Figura 5. Gráfica del cubo de medias ajustadas para rendimiento de CA con Relación de impregnación: (a) 1.1 y (b) 1.2.

Pruebas de adsorción de azul de metileno en el carbón activado

En la Figura 6 se observan los valores promedio de los tres experimentos realizados para la cinética de adsorción de CA, realizadas con el carbón activado en cuyas condiciones se obtuvo el mayor rendimiento, se monitoreó la adsorción durante un tiempo de 200 minutos. Se puede observar que durante los primeros cinco minutos se lleva a cabo el 95 % de adsorción del AM, mientras que después de este tiempo la velocidad de adsorción decrece, alcanzando el equilibrio a los 150 minutos.

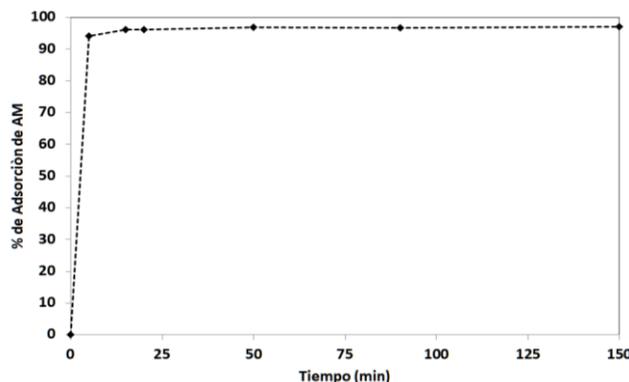


Figura 6. Variación de la concentración de Azul de Metileno adsorbida en el CA, en función del tiempo.

Conclusiones

Mediante el empleo de un diseño experimental factorial 2⁴ fue posible determinar que sí existe efecto en los factores que intervienen en la elaboración del CA a partir de semillas de mango como precursor. Con base en los resultados, se encontró que las condiciones mediante las cuales se obtuvo un mayor rendimiento de CA, son: Temperatura de carbonización, 400 °C; Tiempo de carbonización, 90 minutos; concentración del activador, 60% y relación de impregnación, 1:1. Adicionalmente, con el CA preparado en las condiciones mencionadas, se tuvo un porcentaje de adsorción de 95% de AM en un tiempo de 5 min y un tiempo de equilibrio de 150 minutos. Con base en lo anterior, las semillas de mango son un precursor potencial que requiere de mayor investigación para su futuro empleo en adsorción de contaminantes en agua y efluentes residuales.

Referencias

Akar, E., Altinisik, A., & Seki, Y. (2013). Usin Using of activated carbon produced from spent tea leaves for the removal of malachite green from aqueous solution. *Ecological Engineering*, 52, 19-27. doi:<https://doi.org/10.1016/j.ecoleng.2012.12.032>

- Heidarinejad, Z., Dehghani, M. H., Heidar, M., Javedan, G., Ali, I., & Sillanpää, M. (2020). Methods for preparation and activation of activated carbon: a review. *Environmental Chemistry Letters*, 18, 393–415.
- Ho, Y. S., Malarvizhi, R., & Sulochana, N. (2009). Equilibrium Isotherm Studies of Methylene Blue Adsorption onto Activated Carbon Prepared from *Delonix regia* Pods. *Journal of Environmental Protection Science*, 3, 111-116.
- Iwar, R. T., Ogedengbe, K., Katibi, K. K., & Oshido, L. E. (2021). Meso-microporous activated carbon derived from *Raffia* palm shells: optimization of synthesis conditions using response surface methodology. *Heliyon*(e07301).doi:<https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2021.e07301>
- Kalderis, D., Bethanis, S., Paraskeva, P., & Diamado, E. (2008). Production of activated carbon from bagasse and rice husk by a single stage chemical activation method at low retention times. *Bioresource Technology*, 6809-6816. doi:DOI: 10.1016/j.biortech.2008.01.041
- Kirubakaran, C. J., Krishnaiah, K., & Seshadri, S. K. (1991). Experimental study of the production of activated carbon from coconut shells in a fluidized bed reactor. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2411-2416. doi:<https://doi.org/10.1021/ie00059a008>
- Kyzas, G., Deliyanni, E., & Matis, K. (2016). Activated Carbons Produced by Pyrolysis of Waste Potato Peels: Cobalt Ions Removal by Adsorption. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 74-83. doi:<https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2015.11.038>
- Ouyang, J., Zhou, L., Liu, Z., Heng, J., & Chen, W. (2020). Biomass-derived activated carbons for the removal of pharmaceutical micropollutants from wastewater: A review. *Separation and Purification Technology*, 253(117536).
- Ozdemir, I., Sahin, M., Orhan, R., & Erdem, M. (2014). Preparation and characterization of activated carbon from grape stalk by zinc chloride activation. *Fuel Processing Technology*, 200-206. doi:<https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2014.04.002>