

**Tesista:** Paola Andrea Massa

Lic. en Química, Fac. Cs. Exactas y Naturales, Universidad Nacional de Mar del Plata (UNMdP)

**Título al que aspira:** Doctor en Ciencia de Materiales, UNMdP

**Tema:** “Alternativas para la degradación de contaminantes fenólicos en medio acuoso”

**Director de Tesis:** Dra. Patricia M. Haure

**Co-director de Tesis:** Dra. Rosa J. Fenoglio

**Lugar de Trabajo:** INTEMA, División Catalizadores y Superficies, Facultad de Ingeniería, UNMdP

**Fecha de Defensa:** 12 de abril de 2005

**Jurados:** Dr. Celso M. Aldao (INTEMA, UNMdP-CONICET)

Dr. Jorge F. González (FI, UNMdP)

Dr. Daniel E. Damiani (PLAPIQUI – Universidad Nac. del Sur – CONICET)

#### **Resumen de Tesis:**

La oxidación catalítica por aire húmedo (CWAO) es uno de los métodos más promisorios para el tratamiento de efluentes que poseen una alta carga contaminante o que contienen especies biotóxicas, como los compuestos fenólicos. La clave para la implementación de esta técnica radica en el desarrollo de un catalizador activo, selectivo, estable y económico. El mayor problema de los catalizadores estudiados hasta el momento es su baja estabilidad frente a la desactivación.

En este trabajo se estudió la oxidación catalítica de soluciones acuosas de fenol, sobre catalizadores de cobre, en condiciones moderadas de presión y temperatura.

Se prepararon catalizadores de  $\text{CuO}/\gamma\text{Al}_2\text{O}_3$  (26% Cu) mediante una técnica de sales fundidas, y se calcinaron a 400 y 900°C (C400 y C900). Las muestras se caracterizaron mediante ensayos de reducción a temperatura programada (TPR), difracción de rayos X (DRX), área superficial (método BET), microscopía electrónica de barrido (SEM) y absorción atómica (AA). El comportamiento de estos catalizadores se comparó con la performance obtenida por dos catalizadores comerciales:  $\text{CuO}+\text{ZnO}$  (Topsoe) y  $\text{CuO}+\text{NiO}$  (Engelhard). Los catalizadores se probaron en un reactor de canasta rotatoria (RCBR), a 140°, 7 atm de presión de oxígeno y una concentración inicial de fenol de 5 g/L. Se evaluó la conversión de fenol, la producción de  $\text{CO}_2$  y la estabilidad de las muestras. Todos los sistemas estudiados presentaron una alta conversión de fenol, y una formación parcial de  $\text{CO}_2$ . Los catalizadores C400 y C900 presentaron la mejor performance en términos de conversión y selectividad. En ellos se identificó la fase CuO como la principal fase activa. En los ensayos de estabilidad se observó desactivación de los catalizadores debido a la formación de depósitos carbonosos superficiales y la solubilización de la fase activa.

Para reducir la formación de depósitos carbonosos, se realizaron experimentos en un reactor *Trickle Bed* (TBR). Se utilizó el catalizador de  $\text{CuO}/\gamma\text{Al}_2\text{O}_3$  calcinado a 400°C molido y en *pellets*, a 140°C, 7 atm de presión de oxígeno y 5 g/L de concentración inicial de fenol. Se efectuaron ensayos de estado estacionario y con modulación del flujo líquido. En el rango de condiciones de *cycling* estudiadas se observó un leve efecto de la modulación del flujo de líquido sobre la conversión de fenol. Sin embargo, el efecto sobre

la selectividad de la reacción fue mayor. El catalizador se desactivó con el uso, debido a la pérdida de fase activa.

Para reducir este efecto, se prepararon muestras de  $\text{CuO}/\gamma\text{Al}_2\text{O}_3$  hidrofobizadas mediante un método de impregnación sucesiva con fibras de politetrafluoroetileno (PTFE). Para la caracterización de estas muestras también se incorporaron ensayos termogravimétricos. La reacción se estudió en el RCBR y en el TBR. El recubrimiento resultó efectivo para reducir la pérdida de fase activa, pero incrementó las limitaciones para la difusión de los reactivos.

Para mejorar las características del recubrimiento se modificaron las variables del proceso de preparación. Las muestras se estudiaron mediante SEM. Los resultados indican que, mediante la adecuada selección de los parámetros de preparación, es posible recubrir los catalizadores con una película hidrofóbica delgada, completa y homogénea.

*Palabras clave: CWAO, fenol, CuO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, PTFE*